



**FARKLI ARITIM YÖNTEMLERİ KULLANARAK BİNGÖL
KATI ATIK DEPOLAMA SAHASI SIZINTI SUYUNUN
ARITILABİLİRLİĞİNİN ARAŞTIRILMASI VE KİNETİK
ÇALIŞMALAR**

Ayşenur ÖĞEDEY

Danışman: Prof. Dr. Ensar OĞUZ

Doktora Tezi

Çevre Mühendisliği Ana Bilim Dalı

2022

(Her hakkı saklıdır.)

T.C
ATATÜRK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANA BİLİM DALI

**FARKLI ARITIM YÖNTEMLERİ KULLANARAK BİNGÖL KATI ATIK
DEPOLAMA SAHASI SIZINTI SUYUNUN ARITILABİLİRLİĞİNİN
ARAŞTIRILMASI VE KİNETİK ÇALIŞMALAR**

(Investigation of Treatability of Bingöl Landfill Leachate Using Different Treatment
Methods, and Kinetic Studies)

DOKTORA TEZİ

Ayşenur ÖĞEDEY

Danışman: Prof. Dr. Ensar OĞUZ

Erzurum

Ağustos, 2022

T.C.
ATATÜRK ÜNİVERSİTESİ
Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürlüğü

TEZ KABUL VE ONAY TUTANAĞI

FARKLI ARITIM YÖNTEMLERİ KULLANARAK BİNGÖL KATI ATIK DEPOLAMA
SAHASI SIZINTI SUYUNUN ARITILABİLİRLİĞİNİN ARAŞTIRILMASI VE KİNETİK
ÇALIŞMALAR

Prof. Dr. Ensar OĞUZ danışmanlığında, Ayşenur ÖĞEDEY tarafından hazırlanan bu çalışma, 18/08/2022 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı Çevre Teknolojileri Bilim Dalı'nda Doktora tezi olarak oybirliği ile kabul edilmiştir.

Jüri Başkanı:	Prof. Dr. Alper NUHOĞLU <i>Atatürk Üniversitesi</i>	Aslı Islak İmzalıdır
Danışman:	Prof. Dr. Ensar OĞUZ <i>Atatürk Üniversitesi</i>	Aslı Islak İmzalıdır
Jüri Üyesi:	Prof. Dr. Enes ŞAYAN <i>Atatürk Üniversitesi</i>	Aslı Islak İmzalıdır
Jüri Üyesi:	Doç. Dr. Mehmet Fatih DİLEKOĞLU <i>Harran Üniversitesi</i>	Aslı Islak İmzalıdır
Jüri Üyesi:	Doç. Dr. Mustafa ASLAN <i>Harran Üniversitesi</i>	Aslı Islak İmzalıdır

Enstitü Yönetim
Kurulunun .../.../.... tarih
ve sayılı kararı.

Bu tezin Atatürk Üniversitesi Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliği'nin ilgili maddelerinde belirtilen şartları yerine getirdiğini onaylarım.

Prof.Dr. Saltuk Buğrahan CEYHUN

Enstitü Müdürü

Aslı Islak İmzalıdır

Bu çalışma BAP projeleri kapsamında desteklenmiştir.
Proje No: MFTUB015-20

ETİK BİLDİRİM VE İNTİHAL BEYAN FORMU

Doktora Tezi olarak Prof. Dr. Ensar OĞUZ danışmanlığında sunulan “Farklı Arıtım Yöntemleri Kullanarak Bingöl Katı Atık Depolama Sahası Sızıntı Suyunun Arıtılabilirliğinin Araştırılması ve Kinetik Çalışmalar” başlıklı çalışmanın tarafımızdan bilimsel etik ilkelere uyularak yazıldığını, yararlanılan eserlerin kaynakçada gösterildiğini, Fen Bilimleri Enstitüsü tarafından belirlenmiş olan Turnitin Programı benzerlik oranlarının aşılmadığını ve aşağıdaki oranlarda olduğunu beyan ederiz.

Tez Bölümleri	Tezin Benzerlik Oranı (%)	Maksimum Oran (%)
Giriş	2	30
Kuramsal Temeller	10	30
Materyal ve Yöntem	6	35
Araştırma Bulguları ve Tartışma	1	20
Sonuç ve Öneriler	4	20
Tezin Geneli	3	25

Not: Yedi kelimeye kadar benzerlikler ile Başlık, Kaynakça, İçindekiler, Teşekkür, Dizin ve Ekler kısımları tarama dışı bırakılabilir. Yukarıdaki azami benzerlik oranları yanında tek bir kaynaktan olan benzerlik oranlarının %5'den büyük olmaması gerekir.

Beyan edilen bilgilerin doğru olduğunu, aksi halde doğacak hukuki sorumlulukları kabul ve beyan ederiz.

Tez Yazarı (Öğrenci)
Ayşenur ÖĞEDEY
2.8.2022
İmza: Aslı ıslak imzalıdır

Tez Danışmanı
Prof. Dr. Ensar OĞUZ
2.8.2022
İmza: Aslı ıslak imzalıdır

* Tez ile ilgili YÖKTEZ’de yayınlamasına ilişkin bir engelleme var ise aşağıdaki alanı doldurunuz.

Tezle ilgili patent başvurusu yapılması / patent alma sürecinin devam etmesi sebebiyle Enstitü Yönetim Kurulunun/.../.... tarih ve sayılı kararı ile teze erişim 2 (iki) yıl süreyle engellenmiştir.

Enstitü Yönetim Kurulunun/.../.... tarih ve sayılı kararı ile teze erişim 6 (altı) ay süreyle engellenmiştir.

TEŐEKKÖR

Doktora eęitimim boyunca deęerli bilgi ve deneyimlerinden yararlandıęım, arařtırmamın planlanması konusunda yardımlarını esirgemeyen ve titizlikle beni yönlendiren deęerli danıřman hocam Prof. Dr. Ensar OęUZ'a; laboratuvar alıřmalarım esnasındaki, cihaz kullanımı ve alıřma zamanlaması konularındaki yardımları iin Munzur Üniversitesine,

Eęitim-öęretim hayatım boyunca maddi-manevi desteklerini esirgemeyen, sabır ve anlayıřla yanımda olan ok kıymetli babam Ali Macit CUMURCU, annem Iřıl CUMURCU, kardeřim Onur CUMURCU'ya,

Anlayıř ve desteęinden dolayı her zaman yanımda olan deęerli eřim Hayrullah ÖęEDEY'e; doęumuyla ailemize ayrı bir mutluluk getiren biricik kızım Doęa ÖęEDEY'e teőekkürlerimi sunarım.

Ayřenur ÖęEDEY

ÖZET

DOKTORA TEZİ

FARKLI ARITIM YÖNTEMLERİ KULLANARAK BİNGÖL KATI ATIK DEPOLAMA SAHASI SIZINTI SUYUNUN ARITILABİLİRLİĞİNİN ARAŞTIRILMASI VE KİNETİK ÇALIŞMALAR

Ayşenur ÖĞEDEY

Danışman: Prof. Dr. Ensar OĞUZ

Amaç: Bu çalışmada Bingöl'deki katı atık deponi sahasında oluşan sızıntı suyu kirlilik parametreleri açısından karakterize edildi. Karakterizasyondan sonra sızıntı suyunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının yüksek olduğu belirlendi. Kompleks ve toksik bir yapıya sahip olan sızıntı suları arıtılmadan göl, nehir ve akarsu gibi alıcı ortamlara deşarj edildiğinde suyun doğal yapısı bozularak sucul ortamı canlı organizmalar açısından yaşanmaz bir hale getirir. Bu dirençli ve toksik maddeler besin zinciri yoluyla insanların ve diğer canlıların bünyesinde birikerek çeşitli hastalıklara ve yaşam kalitesinin bozulmasına neden olur. Bu nedenle bu tez kapsamında değişik arıtım prosesleri kullanarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi amaçlanmıştır.

Yöntem: Bu çalışmada, Toz Aktif Karbon (TAK) ve Toz Aktif Karbon-Grafen Oksit (TAK-GO) adsorpsiyonu, Elektrokimyasal prosesler, Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu, Ardışık elektrooksidasyon/(TAK) ve Ardışık elektrooksidasyon/(TAK-GO) adsorpsiyonu gibi prosesler kullanılarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ve mekanizmaları belirlenmiştir. Ayrıca bu proseslere ait reaksiyon kinetikleri, adsorpsiyon izotermi, termodinamik parametreler ve elektrokimyasal prosesler ilgili işletme maliyetleri belirlenmiştir.

Bulgular: TAK-GO adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin TAK adsorpsiyonu prosesi ile elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinden daha büyük olduğu belirlendi. Elektrokoagülasyon prosesi ile pH 5 değerinde sızıntı suyundan KOİ giderim verimi %87 olarak belirlendi. Elektrokoagülasyon prosesi ile pH 5 değerinde sızıntı suyundan KOİ giderim veriminin TAK, TAK-GO adsorpsiyonu ve elektrooksidasyon prosesi ile KOİ giderim veriminden daha büyük olduğu ortaya konuldu. Diğer prosesler içerisinde pH 5 değerinde %88.5 KOİ, %76.5 NH₃-N ve %99.8 bulanıklık giderim verimleri ile ardışık elektrooksidasyon/elektrokoagülasyon prosesi sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde en etkili proses olarak belirlendi. Ardışık elektrooksidasyon/TAK-GO adsorpsiyonu ve elektrooksidasyon/TAK adsorpsiyon prosesi KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde etkili prosesler olarak belirlendi. Elektrooksidasyon prosesinin sızıntı suyundan NH₃-N ve bulanıklık gideriminde en uygun proses olduğu belirlendi.

Sonuç: Gerek maliyet gerek işletme süresi dikkate alındığında pH 5 değerinde %86 KOİ ve %91 bulanıklık giderim verimi ile kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonunun sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık gideriminde en etkili proses olduğu tespit edildi. Elde edilen veriler ışığında, sızıntı suyu arıtımında KOİ gideriminde toplam tüketim maliyeti açısından kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyon prosesinin elektrokoagülasyon ve elektrooksidasyon gibi kimyasal proseslerden daha düşük maliyetli bir proses olduğu belirlendi.

Anahtar Kelimeler: Sızıntı Suyu, TAK ve TAK-GO adsorpsiyonu, Elektrokimyasal prosesler, Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyon Prosesi, Ardışık Prosesler, Ti/(PdO-CoO), KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık

Ağustos 2022, 294 sayfa

ABSTRACT

DOCTORAL DISSERTATION

INVESTIGATION OF TREATABILITY OF BİNGÖL LANDFILL LEACHATE USING DIFFERENT TREATMENT METHODS, AND KINETIC STUDIES

Aysenur ÖGEDEY

Supervisor: Prof. Dr. Ensar OGUZ

Purpose: In this study, the leachate formed in the solid waste landfill in Bingöl was characterized in terms of pollution parameters. After characterization, it was determined that COD, NH₃-N and turbidity concentrations were high in the leachate. When leachate, which has a complex and toxic structure, is discharged to receiving environments such as lakes, rivers and streams without being treated, the natural structure of the water is deteriorated, making the aquatic environment uninhabitable for living organisms. These resistant and toxic substances accumulate in humans and other living things through the food chain, causing various diseases and deterioration of life quality. Therefore, within the scope of this thesis, it is aimed to remove COD, NH₃-N and turbidity from leachate by using different treatment processes.

Method: In this study, the processes such as Powdered Activated Carbon (PAC) and Powdered Activated Carbon-Graphene Oxide (PAC-GO) adsorption, Electrochemical processes, Combined electrocoagulation-PAC adsorption, Sequential electrooxidation/(PAC), and Sequential electrooxidation/(PAC-GO) adsorption were used to determine the efficiencies and mechanisms of COD, NH₃-N and turbidity removal from leachate. In addition, the reaction kinetics, adsorption isotherms, thermodynamic parameters of these processes, and the electrochemical processes' operating costs were determined.

Findings: It was determined that the COD, NH₃-N and turbidity removal efficiency from the leachate by PAC-GO adsorption were higher than the COD, NH₃-N and turbidity removal efficiency obtained by the PAC adsorption process. With the electrocoagulation process, the efficiency of COD removal from leachate at pH 5 was determined as 87%. It was revealed that the efficiency of COD removal from leachate at pH 5 with the electrocoagulation process is higher than that of COD removal with PAC, PAC-GO adsorption and electrooxidation process. Among the other processes, the sequential electrooxidation/electrocoagulation process with 88.5% COD, 76.5% NH₃-N and 99.8% turbidity removal efficiency at pH 5 was determined as the most effective process for COD, NH₃-N and turbidity removal from leachate. Sequential electrooxidation/PAC-GO adsorption and electrooxidation/PAC adsorption processes were determined as effective in COD, NH₃-N and turbidity removal. It was determined that the electrooxidation process was the most suitable for removing NH₃-N and turbidity from leachate.

Results: Considering both cost and operating time, it was determined that combined electrocoagulation-PAC adsorption with 86% COD and 91% turbidity removal efficiency at pH 5 was the most effective process for COD and turbidity removal from leachate. In the light of the data obtained, it was determined that the combined Electrocoagulation-PAC adsorption process is a lower cost process than chemical processes such as electrocoagulation and electrooxidation in terms of total consumption cost in COD removal in leachate treatment.

Keywords: Leachate, PAC and PAC-GO adsorption, Electrochemical processes, Combined Electrocoagulation-PAC adsorption Process, Sequential Processes, Ti/(PdO-CoO), COD, NH₃-N and Turbidity.

August 2022, 294 pages

İÇİNDEKİLER

KABUL VE ONAY TUTANAĞI.....	i
ETİK BİLDİRİM VE İNTİHAL BEYAN FORMU	ii
TEŞEKKÜR	iii
ÖZET	iv
ABSTRACT	v
İÇİNDEKİLER.....	vi
TABLolar DİZİNİ.....	xii
ŞEKİLLER DİZİNİ	xiv
SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ	xxv
GİRİŞ.....	1
KURAMSAL TEMELLER.....	4
Katı Atık Yönetim Süreci	4
Katı atıkların düzenli depolanması.....	4
Sızıntı suyu oluşumu	6
Sızıntı suyu özellikleri.....	7
Sızıntı Suyu Arıtımı	8
Depo içi arıtım.....	8
Depo dışı arıtım.....	9
Biyolojik arıtma prosesleri.....	9
Fiziksel–kimyasal arıtma prosesleri	11
Sızıntı suyu arıtımında elektrokimyasal teknolojiler	15
Metal kaplama süreci	27
Adsorpsiyon	30
Kaynak Özeti.....	33
MATERYAL ve METOT	38
Materyal	38
Deneyisel çalışmalarda kullanılan sızıntı suyu ve karakterizasyonu	38
Metot	39
Adsorpsiyon prosesi	39
Elektrokimyasal proses uygulamaları	41

Elektrokoagülasyon ve kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon proseslerinin işleyişleri	42
Kombine elektrooksidasyon-adsorpsiyon proseslerinin işleyişi	44
Anot materyalinin kaplanması	44
Grafen oksitin aktif karbonla muamele edilmesi	47
Analizler.....	48
Fiziksel analizler	48
Kimyasal analizler.....	49
Zeta potansiyeli analizleri	52
Biyolojik analizler.....	52
Matematiksel Hesaplamalar	53
Adsorpsiyon modellemesi.....	53
Adsorpsiyon termodinamiği.....	56
Adsorpsiyon kinetiği	57
Elektrokimyasal Proseslerde İşletme Maliyeti ve Kinetik Hesaplamalar	59
Kombine Prosesler ile İlgili Kinetik Çalışmalar	60
ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA	62
TAK Adsorpsiyonu Prosesi İle Sızıntı Suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklığın Giderimine Deneysel Parametrelerin Etkisinin İncelenmesi	62
TAK partiküllerinin BET yüzey alanı, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM görüntüleri	62
TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklığın giderimine TAK miktarının etkisi	66
TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklığın giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi.....	68
TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundann KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklık değerlerinin etkisi	71
TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklığın giderimine karıştırma hızının etkisi.....	73
Düzenli deponi sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri, denge izotermi ve termodinamik parametreler.....	75
Grafen Oksitli Partiküler Aktif Karbon (TAK-GO) Kullanarak Sızıntı Suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık Giderimine Deneysel Parametrelerin Etkisinin İncelenmesi	79

TAK-GO partiküllerinin BET yüzey alanı, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM görüntüleri	79
TAK-GO adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine TAK-GO miktarının etkisi.....	83
TAK-GO adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklığın giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi.....	85
TAK-GO adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine çözelti başlangıç sıcaklığın etkisi	88
TAK-GO adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderime karıştırma hızının etkisi.....	90
Düzenli deponi sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri, denge izotermi ve termodinamik Parametreler	92
Elektrokoagülasyon Prosesi ile Sızıntı Suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık Giderimine Deneysel Parametrelerin Etkisinin İncelenmesi	97
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklığın giderimine akım yoğunluğunun etkisi.....	97
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi	99
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklık değerlerinin etkisi.....	102
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine elektrotlar arası mesafenin etkisi	103
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine NaCl destek elektrolitinin etkisi	105
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine Na ₂ SO ₄ destek elektrolitin etkisi.....	107
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi	109
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait reaksiyon kinetikleri ve reaksiyon hız sabitleri	111
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ giderimi için işletme maliyetinin hesaplanması	118
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK Prosesi ile Sızıntı Suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık Giderimine Deneysel Parametrelerin Etkisinin İncelenmesi	118

Kombine Elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine adsorbent miktarının etkisi	118
Kombine Elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine akım yoğunluğunun etkisi.....	121
Kombine Elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanık giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi.....	123
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanık giderimine sıcaklığın etkisi	127
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine NaCl destek elektrolitinin etkisi.....	129
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine Na ₂ SO ₄ destek elektrolitinin etkisi	132
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine elektrotlar arası mesafenin etkisi	134
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi	137
Kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesinden önce ve sonra TAK partiküllerinin adsorpsiyon ve desorpsiyon izotermelri, BET yüzey alanları, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM ve EDX görüntüleri.....	139
Kombine Elektrokoagülasyon adsorpsiyon (EK-TAK) prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait reaksiyon kinetikleri ve reaksiyon hız sabitleri.....	143
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile sızıntı suyundan KOİ giderimi için işletme maliyetinin hesaplanması	147
Elektrooksidasyon Prosesi ile Sızıntı Suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklığın Giderime Deneysel Parametrelerin Etkisinin Araştırılması	148
Düzenli deponi alanı sızıntı suyunun Elektrooksidasyonunda kullanılan Ti/Pd-CoO elektrotunun üretimi	148
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine akım yoğunluğunun etkisi	152
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklığın giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi.....	155
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklık değerlerinin etkisi	159

Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi.....	161
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine elektrotlar arası mesafenin etkisi.....	163
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklığın giderimine NaCl destek elktrolitinin etkisi	165
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklığın giderimine Na ₂ SO ₄ destek elktrolitinin etkisi.....	168
Elektrooksidasyon prosesi ile Sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon kinetikleri ve reaksiyon hız sabitleri	171
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ gideriminde işletme maliyetinin hesaplanması	179
Ti/PdO-CoO Anot ile Elektrookside Olmuş Sızıntı Suyundan Elektrokoagülasyon Prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık Giderimi.....	180
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderim verimine akım yoğunluğunun etkisi ...	181
Ti/PdO-CoO anot ile elektrookside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi	183
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklık değerlerinin etkisi	185
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine elektrotlar arası mesafenin etkisi ...	187
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi.....	189
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine NaCl elektrolitinin etkisi.....	190
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine Na ₂ SO ₄ elektrolitinin etkisi	193
Elektrookside olmuş sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait reaksiyon kinetikleri ve reaksiyon hız sabitleri ...	194
Ti/PdO-CoO Anot ile Elektro Okside Olmuş Sızıntı Çıkış Suyundan TAK Adsorpsiyonu Prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık Giderimi	201
TAK partiküllerinin BET yüzey alanı, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM-EDS görüntüleri.....	201

Ti/PdO-CoO anot ile elektrookside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine adsorbent miktarının etkisi	206
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklığının etkisi	208
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi	210
Ti/PdO-CoO anot ile elektrookside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi	211
Elektrookside olmuş sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri, denge izotermi ve termodinamik parametreler	213
Ti/PdO-CoO Anot ile Elektro Okside Olmuş Sızıntı Çıkış Suyundan TAK-GO Adsorpsiyonu Prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık Giderimi	218
TAK-GO partiküllerinin BET yüzey alanı, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM-EDS görüntüleri	218
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine adsorbent miktarının etkisi	222
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklığının etkisi	225
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi	226
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine başlangıç pH değerinin etkisi	228
Elektro okside olmuş sızıntı çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri, denge izotermi ve termodinamik parametreler	230
SONUÇ VE ÖNERİLER	235
KAYNAKÇA	245
ÖZGEÇMİŞ	261

TABLÖLAR DİZİNİ

Tablo 1. Sızıntı Suyunun Yaşına Göre Bazı Fiziko-Kimyasal ve Biyolojik Parametreler	8
Tablo 2. Sızıntı Suyunun Bazı Karakteristik Özellikleri	39
Tablo 3. Toz Aktif Karbona Ait Temel Fiziksel ve Kimyasal Özellikler.....	40
Tablo 4. Toz Aktif Karbona Ait Karakteristik Özellikler.....	40
Tablo 5. R_1 Değerleri ve İzoterm Tipleri.....	54
Tablo 6. KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderim Kinetiklerine Ait Adsorpsiyon Hız Sabiti ve R^2 Değerleri	76
Tablo 7. Sızıntı Suyundan TAK ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderimi ile İlgili İzoterm Parametreleri ve Korelasyon Katsayıları	77
Tablo 8. Sızıntı Suyundan TAK Adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderimine Ait ΔG° , ΔH° ve ΔS° Değerleri	79
Tablo 9. KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderim Kinetiklerine Ait Adsorpsiyon Hız Sabiti ve R^2 Değerleri	93
Tablo 10. Sızıntı Suyundan TAK-GO ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderimi ile İlgili İzoterm Parametreleri ve Korelasyon Katsayıları	95
Tablo 11. Sızıntı Suyundan TAK Adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderimine ait ΔG° , ΔH° and ΔS° Değerleri.....	96
Tablo 12. Elektrokimyasal Proseslerin Maliyet Analizleri.....	118
Tablo 13. Kombine Elektrokoagülasyon-TAK Adsorpsiyon Prosesleri İçin Maliyet Analizleri.....	148
Tablo 14. Elektrooksidasyonda Farklı Akım Yoğunlukları İçin Maliyet Analizleri.....	180
Tablo 15. Elektro Okside Olmuş Çıkış Sızıntı Suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderim Kinetiklerine Ait Adsorpsiyon Hız Sabiti ve R^2 Değerleri.....	214
Tablo 16. Elektro Okside Olmuş Sızıntı Suyundan TAK Adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderimi İle İlgili İzoterm Parametreleri ve Korelasyon Katsayıları..	216
Tablo 17. Elektro Okside Olmuş Sızıntı Suyundan TAK Adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderimine ait ΔG° , ΔH° ve ΔS° Değerleri.....	217
Tablo 18. Elektro Okside Olmuş Çıkış Sızıntı Suyundan TAK-GO Adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderim Kinetiklerine Ait Adsorpsiyon Hız Sabiti ve R^2 Değerleri.....	231

Tablo 19. Elektro Okside Olmuş Sızıntı Suyundan TAK-GO Adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık Giderimi ile İlgili İzoterm Parametreleri ve Korelasyon Katsayıları	233
Tablo 20. Elektro Okside Olmuş Sızıntı Suyundan TAK-GO Adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık Giderimine ait ΔG° , ΔH° ve ΔS° Değerleri	234



ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1. Katı atıkların stabilizasyon evreleri	5
Şekil 2. Sızıntı suyu oluşumu	7
Şekil 3. İki elektrotlu elektrokoagülasyon prosesinin şematik diyagramı.....	16
Şekil 4. (a) 25°C'de pH'a bağlı Al^{3+} türleriyle dengede bulunan Al_2O_3 'ün çözünürlüğü, (b) 25°C'de pH'a bağlı Al^{3+} türleriyle dengede $Al(OH)_3$ (Amorf) çözünürlüğü	17
Şekil 5. Paralel bağlantılı monopolar elektrotlar (MP-P)	22
Şekil 6. Seri bağlantılı monopolar elektrotlar (MP-S).....	23
Şekil 7. Seri bağlantılı bipolar (BP-S) iki kutuplu elektrotlar	23
Şekil 8. Elektrooksidasyon mekanizması	24
Şekil 9. Akımsız ve elektrolitik kaplama prosesleri şeması	28
Şekil 10. Adsorpsiyon oluşumu	30
Şekil 11. Bingöl düzenli katı atık depo sahasının faaliyet alanı.....	38
Şekil 12. Adsorpsiyon Prosesi: (a) Ham atıksu, (b) adsorpsiyon prosesine numunelerin hazırlanması, (c) Adsorpsiyon prosesi çıkış suyu	41
Şekil 13. Elektrokoagülasyon prosesi: (a) Elektrokimyasal proseslerin şematik gösterimi, (b) Elektrokoagülasyon prosesinin uygulanışı, (c) Elektrokoagülasyon prosesinin çıkış suyu.....	43
Şekil 14. Elektrooksidasyon prosesi: (a) Elektrooksidasyon prosesinin uygulanışı, (b) Elektrooksidasyon prosesinin çıkış suyu	43
Şekil 15. Kaplanmamış titanyum elektrodun SEM görüntüsü	46
Şekil 16. Re-anodizasyon yöntemiyle kaplanmış Ti/PdO-CoO elektrodun SEM görüntüleri	46
Şekil 17. Sabit yataklı kolon reaktör sistemin şematik görüntüsü	48
Şekil 18. KOİ analizi için kalibrasyon eğrisi	50
Şekil 19. Amonyak analizi için kalibrasyon eğrisi.....	51
Şekil 20. 373 K sıcaklığında adsorpsiyondan önce ve sonra TAK partiküllerine ait N_2 adsorption/desorption izotermi (a, b) ve adsorbent por boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (c, d).	63
Şekil 21. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra FTIR spektrum değerleri ve SEM görüntüleri	65

Şekil 22. TAK adsorpsiyonu ile farklı TAK miktarları değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg-O ₂ /L, NH ₃ -N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, pH 8.35, T 20°C, karıştırma hızı 300 rpm).	67
Şekil 23. TAK adsorpsiyonu ile farklı başlangıç pH değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana göre değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg-O ₂ /L, NH ₃ -N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5g/L, T 20°C, karıştırma hızı 300 rpm).....	69
Şekil 24. TAK adsorpsiyonu ile farklı başlangıç sıcaklık değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana göre değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg O ₂ /L, NH ₃ -N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, pH 8.35, TAK 5g/L, karıştırma hızı 300 rpm).	72
Şekil 25. TAK adsorpsiyonu ile farklı karıştırma hızlarında sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana göre değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg-O ₂ /L, NH ₃ -N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L, pH 8.35, T 20°C).	74
Şekil 26. TAK ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklığın giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri (KOİ 1047 mg-O ₂ /L, NH ₃ -N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L, Karıştırma hızı 300 rpm, pH 8.35, T 20°C).....	75
Şekil 27. TAK ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanık giderimine ait Langmuir izotermi (TAK 5 g/L, Karıştırma hızı 300 rpm, pH 8.35, T 20°C).....	77
Şekil 28. TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine yönelik (1/T) değerlerine karşı LN (Kc) grafikleri.....	78
Şekil 29. 373 K sıcaklığında adsorpsiyondan önce ve sonra TAK-GO partiküllerine ait N ₂ adsorption/desorption izotermi (a, b) ve adsorbent por boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (c, d)	80
Şekil 30. TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra FTIR spektrumları ve SEM görüntüleri	82
Şekil 31. TAK-GO miktarına bağlı olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı değişimi ve giderim verimleri.....	84
Şekil 32. Başlangıç pH değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri.....	86
Şekil 33. Başlangıç sıcaklık değerlerinin sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarına ve giderim verimlerine etkisi.....	89

Şekil 34. Farklı karıştırma hızlarında sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı değişimi ve giderim verimleri.....	91
Şekil 35. TAK-GO ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri	93
Şekil 36. TAK-GO ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve bulanık giderimine ait Langmuir izotermi.....	94
Şekil 37. TAK-GO adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine yönelik (1/T) değerlerine karşı Ln (Kc) grafikleri	96
Şekil 38. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı akım yoğunluklarında sızıntı suyunda KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O ₂ /L, NH ₃ -N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, t 40 dak. ve elektrotlar arası mesafe 1 cm)	98
Şekil 39. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı başlangıç pH değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	100
Şekil 40. pH'nın fonksiyonu olarak deiyonize suda alüminyumun türlerinin dağılımı	101
Şekil 41. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı başlangıç sıcaklık değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	103
Şekil 42. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak elektrotlar arası mesafeye bağlı olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	104
Şekil 43. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı NaCl destek elektrolit konsantrasyonuna bağlı olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri.....	106
Şekil 44. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı Na ₂ SO ₄ konsantrasyonlarında sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	108
Şekil 45. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak karıştırma hızının sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimine etkisi ve giderim verimleri	110
Şekil 46. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerinin fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	113

Şekil 47. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklığının fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	113
Şekil 48. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	113
Şekil 49. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafenin fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	114
Şekil 50. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızının fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	114
Şekil 51. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl konsantrasyonunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	114
Şekil 52. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait Na ₂ SO ₄ konsantrasyonunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	115
Şekil 53. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	115
Şekil 54. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	116
Şekil 55. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	116
Şekil 56. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafe değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri.....	116
Şekil 57. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızı değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	117

Şekil 58. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri.....	117
Şekil 59. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait Na ₂ SO ₄ elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	117
Şekil 60. Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile farklı TAK miktarlarında sızıntı suyunda KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	120
Şekil 61. Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile farklı akım yoğunluklarının fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri.....	123
Şekil 62. Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile farklı pH değerlerinin fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri.....	126
Şekil 63. Kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile farklı başlangıç sıcaklık değerlerinin fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri.....	128
Şekil 64. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyon prosesi ile farklı NaCl destek elektrot konsantrasyonlarının fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	131
Şekil 65. Kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile farklı Na ₂ SO ₄ destek elektrot konsantrasyonlarının fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	133
Şekil 66. Kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile farklı elektrot mesafeleri fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri.....	136
Şekil 67. Kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile farklı karıştırma hızlarının fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	138
Şekil 68. 373 K sıcaklığında kombine EK-TAK prosesinden önce ve sonra TAK partiküllerine ait N ₂ adsorption/desorption izotermi (a, b), adsorbent por	

boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (c), FTIR spektrumları (d), SEM görüntüleri (e, g) ve EDX grafikleri (f, h).....	140
Şekil 69. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait TAK miktarına bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	145
Şekil 70. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	145
Şekil 71. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	145
Şekil 72. S Kombine elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	146
Şekil 73. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafe değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri.....	146
Şekil 74. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızı değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	146
Şekil 75. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	147
Şekil 76. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait Na ₂ SO ₄ elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	147
Şekil 77. (a ve b) Titanyum malzemenin PdO-CoO ile kaplanmadan önceki ve sonraki XRD grafikleri.....	149
Şekil 78. (a ve b) Titanyum malzemenin Pd-Co ile kaplanmadan önce (a, b) ve sonra (c, d) SEM ve EDX görüntüleri.....	150
Şekil 79. Ti/ PdO-CoO anot kullanılarak düzenli deponi sızıntı suyunun elektrokimyasal oksidasyonunda yer alan reaksiyonları ve prosesleri gösteren şema.....	151

Şekil 80. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak farklı akım yoğunluklarında sızıntı suyundaki $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	154
Şekil 81. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak farklı pH değerlerinde sızıntı suyundaki $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	157
Şekil 82. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak sızıntı suyundaki $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	160
Şekil 83. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak karıştırma hızına bağlı olarak sızıntı suyundaki $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	163
Şekil 84. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak elektrotlar arası mesafeye bağlı olarak sızıntı suyundaki $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	165
Şekil 85. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak $NaCl$ destek elektrotuna bağlı olarak sızıntı suyundaki $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	167
Şekil 86. Farklı pH değerlerinde $HOCl$ ve OCl^- arasındaki ilişki.....	168
Şekil 87. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak Na_2SO_4 destek elektrotuna bağlı olarak sızıntı suyundaki $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri	169
Şekil 88. Sızıntı suyunda bulunan $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	173
Şekil 89. Sızıntı suyunda bulunan $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerinin fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	173
Şekil 90. Sızıntı suyunda bulunan $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklığının fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	174
Şekil 91. Sızıntı suyunda bulunan $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızının fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	174

Şekil 92. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafenin fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	175
Şekil 93. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl konsantrasyonunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri.....	175
Şekil 94. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait Na ₂ SO ₄ konsantrasyonunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri	176
Şekil 95. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	176
Şekil 96. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	177
Şekil 97. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	177
Şekil 98. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızı değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	178
Şekil 99. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafe değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri.....	178
Şekil 100. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	179
Şekil 101. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık parametrelerine ait Na ₂ SO ₄ elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	179
Şekil 102. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine akım yoğunluklarının etkisi	182

Şekil 103. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç pH değerlerinin etkisi	184
Şekil 104. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç sıcaklık değerlerinin etkisi.....	186
Şekil 105. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine elektrotlar arası mesafenin etkisi.....	188
Şekil 106. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine karıştırma hızı değerlerinin etkisi.....	190
Şekil 107. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine NaCl elektrolitinin etkisi	192
Şekil 108. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine Na ₂ SO ₄ elektrolitinin etkisi	194
Şekil 109. Elektrookside olmuş çıkış suyundan EK prosesi ile farklı pH değerlerinde KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri	196
Şekil 110. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı sıcaklık değerlerinde KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri	196
Şekil 111. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı akım yoğunluğu değerlerinde KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri	196
Şekil 112. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı elektrotlar arası mesafe değerlerinde KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri	197
Şekil 113. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı karıştırma hızı değerlerinde KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri	197
Şekil 114. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı NaCl konsantrasyon değerlerinde KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri	198

Şekil 115. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı Na_2SO_4 konsantrasyonu değerlerinde KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız kinetikleri	198
Şekil 116. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı pH değerlerinde KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	199
Şekil 117. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı sıcaklık değerlerinde KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	199
Şekil 118. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı akım yoğunluğu değerlerinde KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	199
Şekil 119. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı elektrotlar arası mesafe değerlerinde KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	200
Şekil 120. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı karıştırma hızı değerlerinde KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri	200
Şekil 121. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı NaCl konsantrasyonu değerlerinde KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri.....	201
Şekil 122. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı Na_2SO_4 konsantrasyonu değerlerinde KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri.....	201
Şekil 123. 373 K sıcaklığında adsorpsiyondan önce ve sonra TAK partiküllerine ait N_2 adsorption izotermi (a), adsorbent por boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (b, c) ve TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra FTIR spektrumları	202
Şekil 124. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce (a, b) ve adsorpsiyondan sonra (c, d) SEM-EDX görüntüleri.....	205
Şekil 125. Elektrookside olmuş düzenli deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimlerine adsorbent miktarının etkisi	208

Şekil 126. Elektrookside olmuş düzenli deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç sıcaklığının etkisi	209
Şekil 127. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine karıştırma hızının etkisi	211
Şekil 128. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç pH değerinin etkisi.....	212
Şekil 129. Elektro okside olmuş çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri	214
Şekil 130. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanık giderimine ait Langmuir izotermi	215
Şekil 131. Elektro okside olmuş TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine yönelik (1/T) değerlerine karşı Ln (Kc) grafikleri.....	217
Şekil 132. 373 K sıcaklığında adsorpsiyondan önce ve sonra TAK-GO partiküllerine ait N ₂ adsorption ve desorpsiyon izotermi (a, b) ve adsorbent por boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (c) ve TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce sonra (d) FTIR spektrumları	219
Şekil 133. TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce (a, b) ve adsorpsiyondan sonra (c, d) SEM-EDX görüntüleri.....	222
Şekil 134. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine adsorbent miktarının etkisi	224
Şekil 135. Elektro okside olmuş düzenli deponi sızıntı çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç sıcaklığının etkisi	226
Şekil 136. Elektro okside olmuş düzenli deponi sızıntı çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine karıştırma hızının etkisi.....	227
Şekil 137. Elektro okside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç pH değerinin etkisi....	229
Şekil 138. Elektro okside olmuş çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri	230
Şekil 139. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH ₃ -N ve bulanık giderimine ait Langmuir izotermi.....	232
Şekil 140. Elektro okside olmuş TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH ₃ -N ve Bulanıklık giderimine yönelik (1/T) değerlerine karşı Ln (Kc) grafikleri.....	234

SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ

\$	Amerikan Para Birimi, Dolar
%	Yüzde
°C	Derece
Ads.	Adsorpsiyon
AgNO ₃	Gümüş Nitrat
AKM	Askıda Katı Madde
Al	Alüminyum
BDD	Bor Kaplamalı Elmas
BOİ ₅	Biyolojik Oksijen İhtiyacı
BP-S	Bipolar Seri Bağlantı
C	Karbon
C	Konsantrasyon, mg/L
C _{enerji}	Enerji Tüketimi
CH ₄	Metan
Cl ⁻	Klorür
Cl ₂	Klorür
ClO ⁻	Hipoklorit
Co	Kobalt
CO ₂	Karbon Dioksit
CoCl ₂	Kobalt Klorür
Cr	Katkı Yüzdeleri
DC	Doğru Akım Güç Kaynağı
dk.	Dakika
DOC	Çözünmüş Organik Karbon
D-R	Dubinini-Raduskevich
e ⁻	Elektron
EDTA	Etilendiamin Tetraasetik Asit
EEC	Elektrik Enerjisi Tüketimi
EEP	Elektrik Enerjisi Fiyatı
EF	Elektrofenton
EK	Elektrokoagülasyon

EO	Elektrooksidasyon
EOC	Elektriksel Tüketim Maliyeti
eV	Elektron Volt
F	Faraday Sabiti
F	Çizelgesi Standart Olarak Bilinen Bir Çizelge Değeri
FA	Fulvik Asit
Fe	Demir
g	Gram
GO	Grafen Oksit
H ₂	Hidrojen Gazı
H ₂ O ₂	Hidrojen Peroksit
H ₂ SO ₄	Sülfürik Asit
HA	Hümik Asit
HClO	Hipokloröz Asit
I	Akım Şiddeti, Amper
IrO ₂	İridyum (IV) Oksit
j	Joule
K	Kelvin
K ₂ Cr ₂ O ₇	Potasyum Dikromat
K ₂ CrO ₄	Potasyum Kromat
kJ	Kilojoule
km	Kilometre
KOİ	Kimyasal Oksijen İhtiyacı
kW	Kilowatt
kWh	Kilowatt.Saat
L	Litre
M	Molar
m ³	Metreküp
mA/cm ²	Akım Yoğunluğu
MC	Tüketilen Elektrot Malzemesinin Maliyeti
MF	Mikrofiltrasyon
mg	Miligram
MGO	Manyetik Grafen Oksit
mm	Milimetre
MO _x ⁺	Bağlı Oksijen

MP–P	Monopolar Paralel Bağlantı
MP–S	Monopolar Seri Bağlantı
MRGO	Manyetik İndirgenmiş Grafen Oksit
mS/cm	İletkenlik Birimi
mV	Milivolt
NaOH	Sodyum Hidroksit
NF	Nanofiltrasyon
NH ₃ -N	Amonyak Azotu
NH ₄ Cl	Amonyum Klorür
nm	Nanometre
NTU	Bulanıklık Birimi
O	Oksijen
OH*	Hidroksil Radikali
ORP	Yükseltgenme-İndirgenme Potansiyeli
ORR	Oksijen İndirgeme Reaksiyonu
TAK	Toz Aktif Karbon
PbO ₂	Kuşun (IV) Oksit
Pd	Paladyum
PdCl ₂	Paladyum Klorür
Pd-Co	Paladyum-Kobalt Alaşımı
Pt	Pilatin
qe	Adsorpsiyon Kapasitesi
R	Organik Bileşik
R	Gaz Sabiti
R _L	Dağılma Sabiti
RO	Ters Osmoz
rpm	Karıştırma Hızı
RuO ₂	Rutenyum (IV) Oksit
SEM	Scanning Electron Microscopy (Taramalı Elektron Mikroskobu)
SM	Standart Metot
SnO ₂	Kalay (IV) Oksit
SS	Paslanmaz Çelik
T	Mutlak Sıcaklık
t	Zaman
TDS	Çözünmüş Katı Madde

Ti	Titanyum
TiO ₂	Titanyum Dioksit (Anataz)
TKM	Toplam Katı Madde
U	Volt
UAKM	Uçucu Askıda Katı Madde
UASB	Yukarı Akışlı Çamur Yatağı Reaktörü
UED	Birim Enerji Tüketimi
UF	Ultrafiltrasyon
UV	Ultraviyole
V	Hacim
VFA	Uçucu Yağ Asidi
W	Watt
z	Kimyasal Ekvivalent Değeri
Δ	Fark
ΔG°	Gibbs Serbest Enerjisi
ΔH^0	Standart Entalpi Değişimi
ΔS^0	Standart Entropi Değişimi
μm	Mikrometre
Al(OH) ₃	Alüminyum Hidroksit

GİRİŞ

Katı atık sorunu ülkemizde çevre kirliliğinin önemli bir bölümünü oluşturmaktadır. Bu sorun aynı yerküreyi paylaşan insanların artan nüfus ve ilerleyen teknolojik gelişim süreçlerine bağlı olarak büyüyen tüketim ihtiyaçlarının sonucu ortaya çıkan sorundur. Katı atık miktarını azaltmak ve etkili bir şekilde bertarafını sağlamak amacıyla günümüzde en yaygın kullanılan ve maliyeti en az olan metotlardan biri düzenli depolama yöntemidir. Düzenli depolama sahasının belli prensiplere göre verimli bir şekilde işletilmesi atık bertarafının başarısını etkileyen önemli bir husus teşkil etmektedir. Düzenli depo alanları; katı atıklardan meydana gelen sızıntı sularının ve depo gazının olumsuz etkilerinin kontrol edilebildiği, sızdırmazlık ve gaz kontrolü sisteminin tertiplendiği alanlarda, katı atıkların kademeli olarak depolanarak bertaraf edilmesi işlemidir.

Kentsel katı atık depolama sahalarındaki sızıntı suları oldukça kirli ve tehlikeli olarak tanımlanmaktadır. Depolama sahasının yaşına bağlı olarak genç, orta ve olgun sızıntı suları olarak üç gruba ayrılabilir. Sızıntı suyu oluşumunda çeşitli fiziksel, kimyasal, biyokimyasal etkileşimler, atıktaki yüksek nem içeriği, yağmur suyu süzülmesi ve suyun katı atıklarla teması gibi çeşitli faktörler etkilidir. Sızıntı suyu, karmaşık ve çok değişken içeriğe sahip bir atık su olduğundan, atık suların arıtılması en zor olanıdır. Katı atık düzenli depolama sahalarında sızıntı suyu arıtma işlemleri depo içi arıtım ve depo dışı arıtım olarak iki grupta sınıflandırılabilir. Yüksek miktarlarda biyolojik olarak parçalanabilir organik maddeler içerebildiği gibi aynı zamanda biyodegradasyon açısından dirençli olan maddeleri de önemli derecede içerir. Bu nedenle klasik arıtma yöntemleri ile istenilen düzeyde yeterli arıtım sağlanamamakta, fiziksel, kimyasal, biyolojik ve ileri arıtım yöntemlerinin bir veya birkaçının birlikte kullanıldığı prosesler tercih edilmektedir.

Kombine arıtma prosesleri bu tür sorunların çözümünde tercih edilen en umut verici yöntemler arasında yer almaktadır. Bu yöntemler iki veya daha fazla prosesin bir arada uygulanması ile yürütülmektedir. Biyolojik arıtmadan önce fizikokimyasal arıtım veya farklı fizikokimyasal, elektrokimyasal, membran proses türleri, filtrasyon ve ileri oksidatif proseslerin biyolojik süreçlerle entegre edilmesi şeklinde uygulamaları sağlanmaktadır. Fiziksel prosesler genel olarak atıksu içerisinde katı, yüzebilen veya çökebilen maddeleri diğer ünitelerdeki ekipmanlara zarar vermemesi ve bu ünitelere fazla yük gelmemesi için uygulanan yöntemleri içerir. Adsorpsiyon süreci, kararlı yapıdaki kirlilik parametrelerini uzaklaştırma

verimliliği nedeniyle son zamanlarda tercih edilmektedir. Adsorpsiyon, ekonomik olarak tercih edilen bir yöntem olmasına karşılık oldukça yavaş işleyen bir süreçtir. Elektrokimyasal teknolojiler, çevresel uyumluluk bakımından pek çok avantaj sağlar. Bu teknolojiler içerisinde elektrooksidasyon prosesi, sızıntı suyu gibi karmaşık yapıda olan atıksuların arıtımında yüksek etkinlik göstermiş olmasıdır. Bunlardan en önemlisi oksidasyon işlemine katılan ana türler (serbest radikaller, peroksitler, ozon ve klor) yerinde üretilen elektronlar ve oksidan maddelerden oluşmaktadır. Diğer avantajları ise basit ekipman, kolay kullanım, etkinlik, çok yönlülük ve otomasyona duyarlılıktır. Elektrokimyasal teknolojiler arasında, düzenli depolama sahası sızıntı suyu arıtımı için en çok çalışılan prosesler, elektrokoagülasyon (EK), elektrofenton (EF) ve elektrokimyasal oksidasyon (EO) 'dur. Günümüzde çeşitli fiziksel-kimyasal kombine prosesler (adsorpsiyon, koagülasyon/flokülasyon, fenton, elektrokimyasal oksidasyon, elektrokoagülasyon vb. gibi) sızıntı suyu arıtımında başarılı bir şekilde uygulanmaktadır.

Bu tez çalışmasında, düzenli depo sahasında oluşan sızıntı suyundaki kirleticilerin elektrokimyasal kombine ve ardışık prosesler kullanılarak giderimi üzerine etkileri araştırılmıştır. Toz aktif karbon (TAK) ile adsorpsiyon, Toz aktif karbon-Grafen oksit (TAK-GO) ile adsorpsiyon, elektrokoagülasyon, kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyon prosesi, ardışık elektrooksidasyon/ elektrokoagülasyon prosesi, ardışık elektrooksidasyon/TAK adsorpsiyonu ve ardışık elektrooksidasyon/TAK-GO adsorpsiyonu proseslerinden oluşturulan deney düzeneklerinde başta KOİ olmak üzere amonyak ve bulanıklık giderimleri araştırılmıştır.

Elde edilen sonuçlara göre bu proseslerin sızıntı suyunda bulunan kirleticilerin gideriminde bir arıtım yöntemi olarak alternatifliği değerlendirilmiştir. Sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık gideriminde kullanılan prosesler bir birleri ile mukayese edilmiştir. Yapılan çalışmalara ilaveten tüm proseslere yönelik kinetik çalışmalar gerçekleştirilmiştir. Adsorpsiyon prosesleri ile ilgili kinetik, izoterm modelleri ve termodinamik parametreler belirlenip yorumlanmıştır. Ayrıca elektrokoagülasyon ve elektro oksidasyon çalışmalarına ait maliyetler belirlenmiştir.

Tez çalışmasının birinci bölümünde, TAK ve TAK-GO kullanarak filtrelenmiş sızıntı suyundan adsorpsiyon prosesi ile KOİ, amonyak ve bulanıklık kirletici parametrelerinin arıtılabilirliği araştırılmıştır. Arıtım verimine etki eden adsorbent dozu, pH, sıcaklık ve karıştırma hızının işletme koşullarına olan etkileri araştırılmıştır. Ayrıca, adsorpsiyon kinetikleri ve izotermelerinden yararlanılarak elde edilen veriler ile uygun işletme koşulları belirlenmiştir.

İkinci bölümde elektrokimyasal prosesler ve bunların adsorpsiyon prosesi ile kombinasyonları incelenmiştir. Elektrokoagülasyon ve kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesinde Alüminyum (Al) anot ve paslanmaz çelik (SS) katot çifti elektrooksidasyon ve ardışık elektrooksidasyon-adsorpsiyon prosesinde doğru akım elektrot kaplama yöntemiyle elde edilen Ti/PdO-CoO anot ve SS katot çifti monopolar-paralel elektrot bağlantı düzeneklerinde sızıntı suyunun arıtılabilirliği araştırılmıştır. Arıtım verimine etki eden adsorbent dozu, pH, sıcaklık, akım yoğunluğu, elektrolit konsantrasyonu, elektrotlar arası mesafe ve karıştırma hızının işletme koşullarına olan etkileri araştırılmıştır. Ayrıca, elektrokimyasal kinetikleri ve işletme maliyetleri hesaplanarak elde edilen veriler ile uygun işletme koşulları belirlenmiştir.

KURAMSAL TEMELLER

Katı Atık Yönetim Süreci

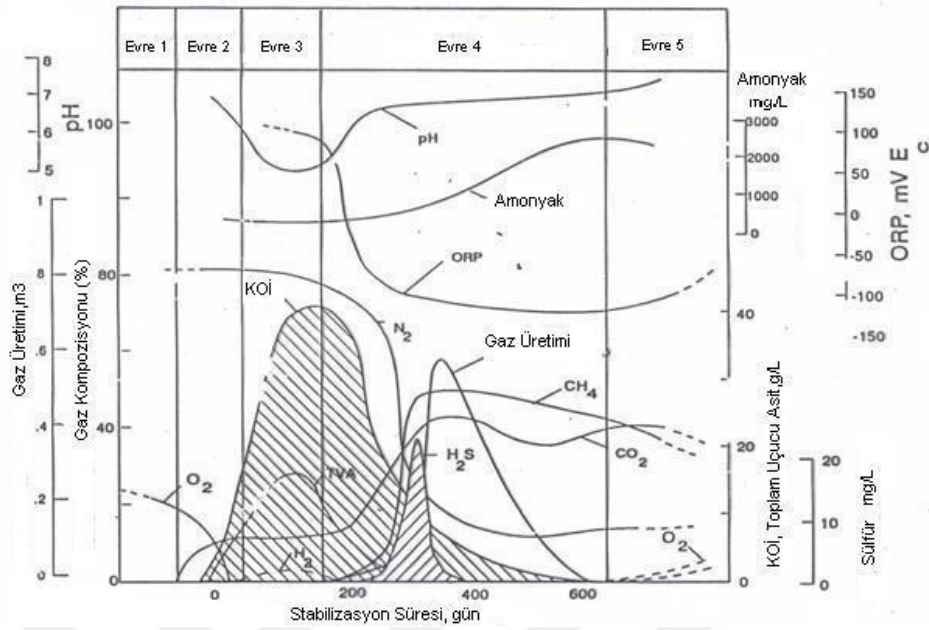
Katı atık yönetim stratejilerinin temel amacı, atıkların uygunsuz şekilde bertarafı ile ilişkili sağlık, çevre, estetik, arazi kullanımı, kaynak ve ekonomik konuları ele almaktır. Gelişmekte olan ülkelerde, büyüyen şehirlerin ürettiği atıklar, hem yerel yönetimleri hem de ulusal hükümetleri çok fazla etkilemektedir. Sınırlı kaynaklar, Katı atık yönetim sürecinin sürekliliğini kısıtlamaktadır. Gelişmiş ülkelerde katı atık yönetim süreçlerine yararlı olabilmesi bakımından 1960'lı yıllardan bu yana sistem analizli mühendislik modelleri, analiz platformları ve değerlendirme araçları ağırlıklı olarak uygulanmaktadır. Bu sistem modelleri katı atık yönetim süreçlerini hem planlama hem de izleme ve optimizasyona destek olacak şekilde kullanılmıştır. Gelişmekte olan ülkelerde bazı sistem analiz araçları kullanılırken Kanada ve ABD'de modellerin çoğu geliştirilerek kullanılmıştır. Bu ülkeler bağlamında bile 2000' li yıllardan önce az sayıda modelde ekonomik ve çevresel alanlara odaklanarak katı atık yönetiminin sosyal yönleri dikkate alınmıştır. Bugüne kadar, birkaç model katı atık yönetim sistemine bütünsel bir bakış açısı getirmektedir; çoğu model daha büyük sistemde izole sorunlara odaklanır ve karar vericiler için çok az kullanılmaktadır. Kentsel katı atık yönetimi konusundaki sistem analizlerinin geniş bir perspektife ulaşması, sosyo-kültürel, çevresel, ekonomik ve teknik olarak bütünleştirici metodolojilere olan gereksinim günümüzde de devam etmektedir. Bu ihtiyaç, gelişmekte olan ülkelerde katı atık yönetim sistemindeki çeşitli karmaşık durumlardan ötürü daha zordur (Marshall & Farahbakhsh, 2013).

Katı atıkların düzenli depolanması

Düzenli depolama, kentsel katı atıkların bertarafında ve dünya genelinde %95'inde en yaygın kullanılan yöntemlerden biridir. Günümüzde yakma ve kompostlama gibi bazı alternatif yöntemler kullanılmasına rağmen, kentsel katı atıkların tamamı yakılamaz veya kompostlanamaz.

Ülkemizde ve dünyada artan nüfus ve sanayileşme ile birlikte nüfusu artan şehirlerde miktarı artan katı atıkları etkili bir şekilde bertaraf etmek sosyal ve çevresel sorunlardan biri haline gelmiştir. Evsel katı atıkların bertarafında en ekonomik yolun düzenli depolama olduğu ve depolama alanlarında mezofilik ve termofilik şartlarda biyolojik olarak ayrıştırılarak biyogaza dönüştüğü süreçte birçok mikroorganizma aktif olarak rol almaktadır. Bu mikroorganizmaların anaerobik faaliyetler ile organik maddeleri beş ayrı evre sonucunda

stabilize ettikleri vurgulanmıştır (Varank, 2006). Katı atıkların stabilizasyon evreleri Şekil 1’de sunulmuştur.



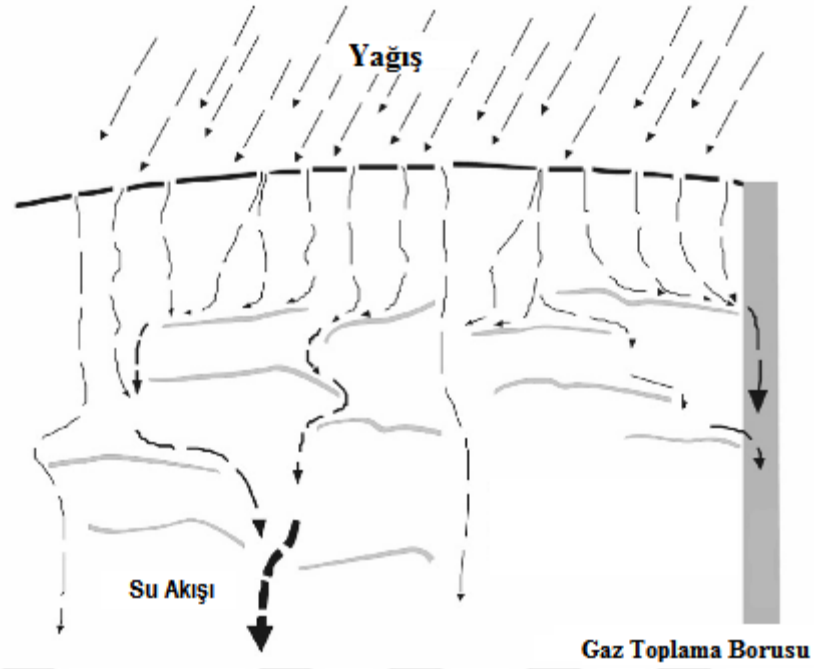
Şekil 1. Katı atıkların stabilizasyon evreleri

Şekil 1’de sızıntı suyu ve oluşan biyogazın içeriğindeki değişimler gösterilmiştir. Alışma evresi olarak tanımlanan birinci evre, katı atığın ilk kez depo hücresine yerleştirildiği ve bünyesindeki su miktarının arttığı dönemdir. Bu safhada depolama sırasında atıklar arasında kalan kısıtlı oksijen varlığında hidroliz gerçekleşir ve mikrobiyal topluluğun gelişebilmesi için yeterli koşulların meydana gelmesini sağlayan bir adaptasyon sürecidir. Geçiş evresi olarak tanımlanan ikinci evrede çözülmüş oksijen düzeyinde hızlı bir azalma meydana gelerek atık yapısındaki aerobik ortam koşulları anoksik ve anaerobiğe dönüşür. Bu evrede parçalanabilir organik yapıdaki maddelerin reaksiyonu için ihtiyaç duyulan O_2 gereksinimi fazla olması nedeniyle, belirli bir süreyi müteakiben gaz fazında bulunan O_2 tamamen tükenir. Bu fazda, oluşan CO_2 miktarı tüketilen O_2 miktarı ile orantılıdır. Bu evrenin sonunda ölçülebilir konsantrasyonlarda KOİ ve uçucu yağ asitleri sızıntı suyunun yapısında bulunur. Üçüncü evre olan asit oluşum evresinde, hidroliz aşamasında açığa çıkan ürünler, asit bakterileri (*clostridium sp.*, *butyribacterium sp.*, *diplococcus sp.*) tarafından anaerobik süreçlerle ayrışarak ortamda yüksek konsantrasyonlarda uçucu yağ asitlerine dönüştürülürler ve bunun sonucunda pH düşer ve metal iyonları konsantrasyonu artar. Bu evrede sızıntı suyundaki en yüksek KOİ ve BOİ₅ değerlerine rastlanır. Metan oluşum evresi sırasında oluşan organik asitler iki farklı grup metanojen bakterileri tarafından CH_4 ve CO_2 ’e dönüştürülür. Bu iki gruptan birincisi asetatı kullanan metanojenlerdir. Bunlar, asetatın parçalanması yoluyla CH_4 ve CO_2 üretirler. Diğer grup ise H_2 kullanan metanojenlerdir. Bu bakteriler, H_2 ve CO_2 ’i sentezleyerek metan üretirler. Bu evrede asidik sızıntı suyu nötral pH seviyelerine ulaşır ve uçucu organik asit ile metallerin

konsantrasyon deęerleri azalır. Bu evrede deponi yerinde gaz üretimi en yüksek seviyededir. Dördüncü kademe sonunda üretilen metanın yaklaşık olarak 2/3'ü asetattan, 1/3'ü ise H₂ ve CO₂'den kaynaklanır. Olgunlaşma evresi ile adlandırılan son evrede mikroorganizmalar tarafından kullanılabilir organik maddeler ve besi elementleri sınırlayıcı hale gelir. Biyolojik aktivitenin oldukça yavaşladığı bu evrede hümit maddeler üretilir. Depolama yerinde gaz oluşumunun azaldığı ve sızıntı suyu bileşimindeki parametrelerin duraęan konsantrasyonların ulaşıldığı bir evredir (Yildiz *et al.* 2010).

Sızıntı suyu oluşumu

Kentsel katı atık bertaraf alanlarından üretilen sızıntı suyu, fiziksel, kimyasal ve biyolojik olarak yoğun kirlilik içeren atıksu olarak ifade edilir. Sızıntı suyu, düzenli depolama alanlarındaki atık katmanları boyunca yağmur suyu ve nemin süzülmesiyle oluşur. Bu sıvı, atık kütlesi içindeki gözeneklerden aşağı doğru göç eder ve biyolojik bozulmanın etkisiyle depo sahalarında bulunan drenaj katmanlarından süzülerek bir çukur veya depolama rezervuarındaki en düşük noktada toplanır (Rafizul & Alamgir, 2012). Sızıntı suyu oluşumunda çeşitli fiziksel, kimyasal, biyokimyasal etkileşimler, atıktaki yüksek nem içerięi, yağmur suyu süzülmesi ve suyun katı atıklarla teması gibi çeşitli faktörler etkilidir. Sızıntı suyu miktarının artması, depo alanını çevreleyen topraktan sızma, gaz geri dönüşümü ve şev stabilitesi sorunları açısından ciddi sorunlar oluşturmaktadır. Sızıntı suyu, amonyak, uçucu yağ asitleri, organik bileşikler, inorganik bileşikler, doğal ve sentetik ligandlar, ksenobiyotikler, biyolojik olarak parçalanamayan organik maddeler, biyolojik organizmalar, toksik ve ağır metaller gibi çeşitli kirleticileri içerir. Sızıntı suyu bileşimi, atık tipi, atık bileşimi, deponi sahası hidrolojisi, iklim ve depolama yaşına göre deęişmektedir (Rani *et al.* 2020). Şekil 2'de sızıntı suyu oluşumu gösterilmiştir.



Şekil 2. Sızıntı suyu oluşumu (Fellner & Brunner, 2010)

Sızıntı suyu özellikleri

Kentsel katı atık deponi sahalarında oluşan sızıntı suları genellikle tehlikeli ve çok kirli atık su olarak tanımlanmaktadır. Yüksek miktarlarda biyolojik olarak parçalanabilir organik maddeler içerebildiği gibi aynı zamanda biyodegradasyon açısından dirençli olan hümik maddeleri de önemli derecede içerir.

Sızıntı suyu özellikleri, atığın türüne, katı atık stabilizasyon derecesine, saha hidrolojisine, nem içeriğine, mevsimsel değişimlerine, depo sahasının yaşına ve depolanan atığın ayrışma aşamasına bağlıdır (Abood *et al.* 2014). Düzenli depolama sahalarında açığa çıkan sızıntı suyu depolama sahasının yaşına bağlı olarak genç, orta ve olgun sızıntı suları olarak üç gruba ayrılabilir. Genç sızıntı suları depo yaşı beş yıldan daha az olan depolama sahalarından açığa çıkar ve yüksek konsantrasyonlarda biyolojik olarak bozulan organik maddeleri içerir. Olgun sızıntı suları ise depo yaşı on yıl ve üzerinde olan depo alanlarında oluşur. Genç deponi sahalarında açığa çıkan sızıntı suyunda, biyolojik olarak parçalanabilen uçucu yağ asitlerinin konsantrasyon değerleri yüksektir. Deponi yaşının artması ile biyolojik olarak parçalanmanın tamamlanmasından dolayı, kolay parçalanabilen organiklerin oranı azalır. Bu sebeple, genç depo alanlarındaki sızıntı sularında biyolojik bozunurluk oranı ($BOI_5/KOI > 0.5$) yüksektir. Olgun sızıntı suları, ağırlıklı olarak hümik maddelerden oluşan yüksek oranda refrakter bileşiklere sahip organik maddenin düşük konsantrasyonları ile karakterize edilir (Oumar *et al.* 2016). Olgun sızıntı suları nispeten stabilize olarak adlandırılır ve düşük KOI (< 4000 mg/L), hafif bazik ($pH > 7.5$) ve düşük biyolojik bozunurluk ($BOI_5/KOI < 0.1$) oranına sahiptirler. Olgun sızıntı sularının toksisitesi ve düşük biyolojik

bozunurluğu göz önüne alındığında, bu tür atıksuların arıtılması zordur ve biyolojik süreçler tamamen verimsizdir. Bu nedenle, fiziksel-kimyasal aşamalara dayanan alternatif teknolojiler gereklidir (W. Li *et al.* 2010). Tablo 1’de sızıntı suyunun yaşına göre bazı kirlilik parametreleri verilmiştir.

Tablo 1. Sızıntı Suyunun Yaşına Göre Bazı Fiziko-Kimyasal ve Biyolojik Parametreler (Labanowski *et al.* 2010; Oduncu, 2017; Teng *et al.* 2021).

	Genç	Orta	Yaşlı
Depo yaşı	< 5 yıl	5–10 yıl	> 10 yıl
pH	< 7	6,5 – 7,5	> 7,5
KOİ (mg O ₂ / L)	20.000 – 40.000	4.000 – 10.000	500 – 4.000
BOİ ₅	10.000 -20.000	4.000 -10.000	50 -100
BOİ ₅ / KOİ	> 0.5	0.1 – 0.5	< 0.1
TOK / KOİ	0.3	-	0.4
NH ₄ ⁺ -N (mg / L)	< 400	400	>400
Metaller (mg / L)	2.000	< 2.000	< 2.000
Organik asit konsantrasyonu (% DOC)	> % 80	% 20 – 30	-
Organik madde konsantrasyonu (% VFA)	% 80 UYA	% 5 – 30 VFA+HA+FA	HA +FA
Biyobozunurluk	Yüksek	Orta	Düşük

DOC: Çözülmüş organik karbon, VFA: Uçucu yağ asidi, HA: Hümkik asit
FA: Fulvik asit

Sızıntı Suyu Arıtımı

Kent sayısının artmasıyla birlikte büyüyen nüfus, sanayi faaliyetleri ve ekonomik gelişmelerdeki süreklilik neticesinde katı atıkların hem miktar hem de hacmindeki artışlardan dolayı açığa çıkan sızıntı suları başta bölge halkı olmak üzere büyük bir çevrenin etkilendiği bir sorun olmuştur. Sızıntı suyu, karmaşık ve çok değişken içeriğe sahip bir atık su olduğundan, atık suların arıtılması en zor olanıdır. Katı atık düzenli depolama sahalarında sızıntı suyu arıtma işlemleri depo içi arıtım ve depo dışı arıtım olarak iki grupta sınıflandırılabilir (İlhan, 2006).

Depo içi arıtım

Atık miktarının az olduğu küçük yerleşim yerlerinde uygulaması kolay ve ekonomik bir yöntem olan geri devir prosesi kullanılarak depo içerisinde üniform bir şekilde yayılmasını ve depo dışına çıkan sızıntı suyu miktarını en aza indirilmesini sağlayan bir metottur. Depo alanında toplanan sızıntı suyunun katı atık alanına üstten geri verilerek katı atıkların daha hızlı

ayrışması sağlanır. Bu sayede sızıntı suyu daha hızlı bir şekilde stabil hale gelir. Bu yöntem ile hem arıtım maliyeti hem de sızıntı suyu içerisindeki kirletici konsantrasyonlar azalırken depo gazı oluşum hızı artar (Bilgili, 2006; İlhan, 2006).

Depo dışı arıtım

Sızıntı suyu arıtımında en fazla tercih edilen yöntemdir. Depo sahasında toplanan sızıntı suları, kurulan arıtma tesisinde fiziksel, kimyasal ya da biyolojik olarak gerekli arıtım seviyesine ulaşılabilecek düzeye gelinceye kadar arıtımı yapılmak üzere dizayn edilir. Bu prosesler tek başına uygulanmak yerine çoğunlukla birbiriyle kombine olacak şekilde tasarlanır. Depo dışı arıtım yöntemlerinde arıtım dizaynı yapmadan önce bazı parametrelerin iyi incelenmesi gerekmektedir. Bunlardan biri BOI_5/KOI parametresidir. Bu veri, özellikle biyolojik arıtımın uygunluğunu ve ne derecede başarılı olabileceğini tespit etmektedir (İlhan, 2006).

Biyolojik arıtma prosesleri

Biyolojik arıtım yöntemler, genellikle biyolojik olarak parçalanabilir olmaları nedeniyle genç ve orta yaşlı sızıntı sularının arıtılmasında kullanılır. Bunlar içerisinde havalandırmalı lagün, aktif çamur, biyofilm prosesler, membran prosesler, ardışık kesikli reaktör gibi birçok biyolojik proses uygulanmaktadır. Biyolojik sistemlerin etkinliği iyi bilinmesine rağmen yüksek arıtmadan sonra genellikle önemli miktarda KOI ile biyolojik olarak oksitlenmesi zor olan hümkik maddeler kalır. Bu nedenle, sızıntı suyundaki bu kalıntıları uzaklaştırmak için daha kapsamlı işlemlere ihtiyaç duyulur (Oumar *et al.* 2016). Biyolojik arıtma prosesleri, aerobik ve anaerobik arıtım prosesleri olarak sınıflandırılır.

Aerobik arıtım

Aerobik proseslerde mikroorganizmalar, moleküler oksijeni elektron alıcı olarak kullanarak enzim eşliğinde elektron taşınımı ile enerji üretirler. Yaygın olarak kullanılan aerobik arıtım prosesleri; aktif çamur, damlatmalı filtre, döner diskler, havalandırmalı lagünler ve membran biyoreaktörleridir. Bu prosesler içerisinde aktif çamur prosesi, organik kirleticileri ve azotlu maddeleri atıksudan uzaklaştırmak için en fazla tercih edilen biyolojik arıtma sistemidir. Aktif çamur prosesi, sızıntı suyu arıtımı ile ilgili pek çok çalışmada başarı ile uygulanmış, KOI ve BOI_5 giderim verimlerinde %90 ve üzerinde başarı göstermiştir (Ahammad *et al.* 2020). Sızıntı suyu arıtımında amonyak giderimi büyük sorunlar oluşturmaktadır. Amonyak gideriminde uygulanan yaygın yöntem amonyak sıyırmadır. Bu yöntem genellikle dolgulu kulelerde gerçekleştirilir. Proses verimliliği birkaç faktöre bağlıdır: pH, sıcaklık, tutma süresi, hava besleme oranı ve besleme özellikleridir (Nas, 2019). Bu yöntemde gerek pH ayarlama ve gerekse havalandırma gereksinimleri maliyeti çok artırmakla

beraber ekonomik anlamda büyük kayıplar oluşturmaktadır. Bu yönteme alternatif olarak nitrifikasyon–denitrifikasyon prosesi daha uygundur. Yalnız bu proses havalandırma maliyetini artırmasından dolayı biyolojik arıtım prosesinin dezavantajları arasında yer almaktadır (Guo *et al.* 2010; He *et al.* 2005).

Aktif çamur yöntemi sonucu oluşan çamur çok problemlidir. Arıtımın yapıldığı tesislerde çamur kabarması problemleri ile karşılaşmaktadır. Bunun yanı sıra özellikle genç sızıntı sularındaki yüksek organik madde içeriği, enerji ihtiyacını arttırması, yüksek azotun biyolojik sistemlerde amonyak inhibisyonuna sebep olması, azalan sıcaklık değerlerinde arıtma veriminin yeterince sağlanamamasından dolayı havalandırma esnasında köpük oluşum problemi aerobik sistemlerin en önemli dezavantajları arasındadır (Tchobanoglous *et al.* 2003). Aerobik arıtma proseslerinden havalandırmalı lagünler, sızıntı suyu arıtımında uzun bekleme süresi ve düşük organik yükleme hızından dolayı yaygın kullanılmamaktadır. Damlatmalı filtre ve biyodisklerde uygun şartlar altında nitrifikasyon gerçekleşmesi halinde belli bir düzeye kadar organik maddeler giderilebilmektedir (Abdulhussain *et al.* 2009; Renou *et al.* 2008). Son yıllarda sızıntı suyundan organik maddelerin gideriminde kullanılan metotlardan biri de membran biyoreaktörüdür. Membran prosesler bileşenlerin molekül ağırlıkları ve boyutlarına göre moleküllere ayırır. Membran proseslerin düşük alan ihtiyaçları, konvansiyonel sistemlerle entegre edilebilmeleri, modüler olarak tasarlanabilmeleri ve taşınabilir olmaları, kirletici giderim skalasının genişliği, şok yüklemelere karşı dayanıklı olmaları ve konvansiyonel sistemlere oranla daha giderim verimlerinin daha yüksek olması ise membran proseslerin avantajları olarak ön plana çıkmaktadır (Abdel-Fatah, 2018; W. Chen *et al.* 2020; Renou, 2008; Teng *et al.* 2021).

Anaerobik arıtım

Sızıntı sularının arıtımında en fazla karşılaşılan biyolojik arıtma yöntemidir. Yüksek miktarda organik madde giderimi, çamur üretiminin ve enerji tüketiminin az olmasının yanında biyogaz gibi faydalı son ürünler sağlar. Anaerobik arıtma sistemleri standart-hızlı ve yüksek-hızlı olacak şekilde başlıca iki sınıfta gruplandırılırlar. Anaerobik reaktör türleri ise; askıda büyüyen mikroorganizmaları içeren reaktörler ve biyofilm reaktörler olarak iki grupta sınıflandırılırlar. Anaerobik reaktörlerin birçok konfigürasyonu olmasına rağmen literatürlerde en yaygın olarak kullanılanı yukarı akışlı çamur yatağı (UASB) reaktörleridir. UASB reaktörler ile arıtma, sızıntı suyu çamur yatağından yukarı doğru süzülürken gerçekleşir bu sırada ortaya çıkan biyogaz aynı zamanda reaktörde kısmi karışımı sağlar. Biyogaz, reaktörün üst fazına ulaştığında ortamdan ayrılır. Yukarı akışlı reaktörde biokütle, karışım sırasında yukarı çıkarsa da yerçekimi ile tekrar çamur yatağına döner ve çıkışta az miktarda katı madde gözlemlenir. UASB

sistemlerinde meydana gelebilecek olumsuzluklar sonucu bakterilerin kaçması, tıkanmalar ve köpük oluşumu gibi işletme problemleri sıklıkla yaşanmaktadır (Im *et al.* 2001).

Fiziksel–kimyasal arıtma prosesleri

Çeşitli fiziksel–kimyasal yöntemler (adsorpsiyon, koagülasyon/flokülasyon, fenton, elektrokimyasal oksidasyon, elektrokoagülasyon vb. gibi) sızıntı suyu arıtımda başarılı bir şekilde uygulanmaktadır (Gandhimathi *et al.* 2013).

Fiziksel prosesler

Fiziksel prosesler genel olarak atıksu içerisinde katı, yüzebilen veya çökebilen maddeleri diğer ünitelerdeki ekipmanlara zarar vermemesi ve bu ünitelere fazla yük gelmemesi için uygulanan yöntemleri içerir. Adsorpsiyon prosesi, hem maliyet açısından hem de kirleticileri uzaklaştırmadaki etkinliğinden dolayı son zamanlarda edilmektedir. Adsorpsiyon, düşük maliyetli uygun bir yöntem olmasına karşılık oldukça yavaş işleyen bir süreçtir. Prosesin etkinliği kullanılacak adsorbent türüne ve atık suyun karakteristik özelliklerine (pH, sıcaklık, yüzey alanı vb.) bağlıdır. Adsorbentin tekrar kullanımı kirletici giderim veriminde azalmaya sebep olurken bu dezavantaj fazla miktarda adsorbent kullanımıyla telafi edilmektedir (Biroğul, 2012). İyon değiştirme prosesleri, atıksuların arıtılması için geliştirilmiş yöntemlerden biridir. İyon değiştiriciler, 0.3–0.2 mm irilikte granüller halde çözünür olmayan, yer değiştirebilir katyon ve anyonları taşıyan katı maddelerdir. Kullanılacak katyonik reçinelerde iyon değiştirici türüne bağlı olarak hidrojen ya da sodyum iyonları ile çözeltideki pozitif yüklü katyonların, bir kısmı veya tamamı yer değiştirir. İyon değiştirme prosesleri, yüksek arıtma kapasitesi ve kinetik hızının yüksek olması gibi birçok avantajı nedeniyle atıksulardan ağır metalleri gidermek için yaygın olarak kullanılmaktadır. İyon değiştiriciler sadece sıvı faz ile temas halinde iken fonksiyon gösterirler (Helfferich, 1995).

İyon değiştiriciden geçirilen suda çok fazla miktarda çözünmüş gaz olursa bunlar iyon değiştiricilerin aktivitesini bozabilir. Flotasyon hava kabarcıklarının etkisi ile istenmeyen partiküllerin tutulması esasına dayanır. Flotasyonla arıtım sağlanmasının dışında metallerin tutulması sağlanarak değerli metallerin elde edilmesi sağlanmaktadır (Nikoloski & Ang, 2014).

Flotasyon prosesi ile ağır metallerin arıtılması flotasyonun; çözünmüş hava flotasyonu, iyon flotasyonu, çöktürme flotasyonu çeşitlerine bağlıdır (Rubio & Tessele, 1997). Membran proseslerde gözenek boyutlarından küçük olan bileşenler geçerken, büyük bileşenler alıkonulmaktadır. Partikül boyutlarına bağlı olarak bileşenler geniş aralıkta olabilmektedir. Membranlar bileşenleri boyutları ve molekül ağırlıklarına bağlı olarak ayıran bir ara faz olarak tanımlanabilir. Mikrofiltrasyon (MF), ultrafiltrasyon (UF), nanofiltrasyon (NF) ve ters osmos

(RO) gözenek boyutları ve basınç sürücü kuvvetlerine göre dört sınıfa ayrılmaktadır (Kayacan, 2010). MF membranlar özellikle partikülleri tutmakta, RO membranlar çözünmüş tuzlar gibi makro molekülleri tutmakta, UF veya MF membranlar tuz, mikroorganizma ve benzeri boyuttaki diğer büyük bileşenleri tutarken, su ve suda çözünmüş maddelerin çoğunun geçişine izin vermektedirler. Membran proseslerde, genellikle akıda meydana gelen azalmalar sonucunda membran performansında büyük değişiklikler olmaktadır. Akı azalması, membran yüzeyi veya gözenekleri üzerinde birikime uğrayan maddeler ile kirliliğe yol açmaktadır. Konsantrasyon polarizasyonu, adsorpsiyon, jel tabakası formasyonu ve gözeneklerin tıkanması gibi faktörler akı azalmalarına sebep olmaktadır (M. Aslan, 2016).

Kimyasal prosesler

Uzun zamanlardan beri Sızıntı sularının arıtılmasında kimyasal metotların kullanılması oldukça rağbet görmektedir. Bunun sebebi, sızıntı suyu kalitesinde oluşacak değişikliklerin kullanılan kimyasala veya uygulanacak dozajda yapılan değişimleri rahatça tolere edilebilmesinden kaynaklanmaktadır.

Bunlar içerisinde elektrokimyasal prosesler kalıntı kirleticilerin giderilmesinde yüksek etkinlik gösteren süreçlerdir.

Elektrokimyasal teknolojiler, çevresel uyumluluk yönünden pek çok avantaj sağlamaktadır. Sızıntı suyu olmak üzere başlıca karmaşık karakterde bulunan atıksulardan kirleticilerin uzaklaştırılmasında kullanılan arıtım prosesleridir. Bunlardan en önemlisi oksidasyon işlemine katılan ana türler, yerinde üretilen elektronlar ve oksidan maddelerden oluşmaktadır. Diğer avantajları ise basit ekipman, kolay kullanım, sağlamlık, çok yönlülük ve otomasyona duyarlılıktır. Elektrokimyasal teknolojiler arasında, düzenli depolama sahası sızıntı suyu arıtımı için en çok çalışılan prosesler, elektrokoagülasyon (EK), elektrofenton (EF) ve elektrokimyasal oksidasyon (EO) 'dur (Fernandes *et al.* 2015).

Son yıllarda yoğun olarak çalışılmakta olan proseslerden biri de fenton prosesidir. Fe^{2+} nin $OH^\bullet$ (güçlü bir oksitleyici) üretmek için H_2O_2 ile reaksiyona girdiği fenton oksidasyon işlemi, organik kirleticilerin ayrıştırılması için kullanılmaktadır. Fenton atıksu arıtma işlemi dört aşamadan oluşur: oksidasyon, nötralizasyon, pıhtılaşma/flokülasyon ve katı-sıvı ayrımı. Bu proseste organik maddeler hem oksidasyon hem de koagülasyonla birlikte uzaklaştırılır. Düzenli depo sahası sızıntı sularının biyolojik olarak parçalanabilirliğini arttırmak için fenton oksidasyonu da kullanılabilir. Bu yöntem, düzenli depo sahası sızıntı suyu arıtımı için en uygun maliyetli seçeneklerden biri olarak kabul edilmektedir. Fenton süreci hem görünür renk hem de $KOİ$ için yüksek giderim verimliliğine sahiptir (J. Li *et al.* 2016). Bunun nedeni,

oksidasyon reaksiyonları, ferrus/ferrik iyonlarının varlığında organik maddelerin koagülasyon (pıhtılaşma) ile birleştirilmesidir. Bu metalik iyonlar hem katalizör hem de koagülant görevi görürler. Üstelik Fenton sürecinde, hidrojen peroksit, demir iyonları ile reaksiyona girerek 2.8 V oksidasyon potansiyeline sahip güçlü bir oksitleyici ajan (hidroksil radikali) oluşturur. Bununla birlikte, biyolojik olarak parçalanamayan maddelerin varlığında, tek başına fenton işlemi uygulanmasında yetersiz kalabilir (J. Li *et al.* 2016).

Arıtım sonrasında KOİ değeri deşarj standartlarını karşılayamazsa fenton proses, kimyasal ve biyolojik arıtım ile kombine edilebilir (J. Li *et al.* 2016). Fenton prosesinin dezavantajlarının üstesinden gelebilmek için geliştirilen elektrofenton (EF) prosesi, çeşitli sentetik ve atıksuların arıtılmasında kullanılmaktadır. Fenton proses ile karşılaştırıldığında H_2O_2 , reaktöre oksijen veya hava verildiği takdirde reaksiyonlar ile katotta (karbon malzemeli katot varlığında) üretilir. Ayrıca H_2O_2 , soy metallerin varlığında doğrudan H_2 ve O_2 ' den de sentezlenebilir. Bu sayede reaktöre harici H_2O_2 ilavesi ortadan kaldırılmış olur. Ek olarak, Fe^{2+} reaksiyonda katotta sürekli olarak rejenere edildiği için çamur üretimi büyük ölçüde azaltılabilir. Elektro-fenton işleminin diğer faydaları arasında organik kirleticilerin yüksek bozunma hızı, düşük işletme maliyeti ve kolay bakımı bulunmaktadır (Y. Wang *et al.* 2012).

Elektrooksidasyon (EO) prosesi, biyobozunurluğu zor olan kirleticilerin pratik bir şekilde giderilmesine yönelik etkili proseslerden biridir. Genel olarak atık sularda bulunan organik bileşiklerin elektrooksidasyonla giderimi şu şekilde gerçekleşir: Dolaylı elektrooksidasyon prosesinde organik kirleticileri yok etmek için anodik olarak üretilen klor ve hipoklorit kullanır. Sızıntı suyunda bulunan kirleticiler elektrokimyasal olarak üretilen hidrojen peroksit sayesinde kolay bozulabilir hale getirilir. Kirleticilerin doğrudan anodik oksidasyonu, anodik veya doğrudan oksidasyon adı verilen bir işlemle fiziksel olarak adsorbe edilmiş “aktif oksijen” üretilerek doğrudan anotlarda da meydana gelebilir. Elektrooksidasyon ilave kimyasallar veya oksijen gerektirmez ve ikincil kirleticiler üretmez veya ilave teçhizat gerektirmez (Linares-Hernández *et al.* 2010). En önemli bileşen elektrooksidasyon işleminde anottur. Elektrooksidasyon için en yaygın anot malzemeleri camı karbon, Ti/RuO₂, Ti/Pt-Ir, karbon fiber ve paslanmaz çeliktir. Bununla birlikte, bu malzemelerin hiçbirisi, etkinlik ve dayanıklılık bakımından gerekli aktivite ve stabiliteye sahip değildir (Linares-Hernández *et al.* 2010). İleri oksidasyon prosesleri ile açığa çıkan serbest hidroksil radikalleri ($OH^\bullet$), sızıntı suyundaki parçalanması zor olan bileşikleri etkin bir şekilde parçalayabilen çok güçlü oksitleyicilerdir ($E = 2.73$ V) (Zhong *et al.* 2017).

Bu süreci sınırlayan bazı unsurlar da bulunmaktadır. Atıksuyun iletkenliği, sıcaklık değişimlerinden (Joule etkisi) dolayı meydana gelebilecek kinetik modifikasyonlardan

etkilenmeyecek kadar yüksek olmalıdır. Koagülasyon ve flokülasyon işlemi, su veya atıksuda bulunan askıda ve kolloidal yapıdaki maddelerin reaktif bir madde ilavesiyle topaklar haline getirilmesidir. Meydana gelen topakların yerçekimi etkisiyle çökmesi sonucu su ve atıksu ortamında bulunan kolloidal ve askıdaki yapılar uzaklaştırılmış olur. Bu proses, hem biyolojik aktif çamur ünitesinin arıtım yükünü azaltır hem de aynı zamanda zor parçalanabilir organik ve toksik yapılı bileşenlerin gideriminde yaygın kullanılan bir ön arıtma metodu olarak uygulanmaktadır. Son yıllarda, koagülasyon-flokülasyon proseslerinde kullanılması için klasik koagülant maddelere alternatif koagülant maddelerin kullanımı hız kazanmıştır. Böylece daha düşük maliyetli, düşük sıcaklıklarda etkili olması, düşük toksisite etkileri ve az miktarda kimyasal çamur oluşturan titanyum ve zirkonyum bazlı tuzlar ile son yıllarda doğal koagülant maddeler (kitosan, ksantan sakızı) kullanımı avantajlı bir duruma getirmektedir (Benamor & Hilal, 2010).

Kombine prosesler

Biyolojik sistemlerin etkinliği iyi bilinmesine rağmen biyolojik olarak parçalanabilen sızıntı suyu için, biyolojik yöntemler genellikle refrakter organik kirleticiler içeren atıklar için gerekli arıtma kalitesini sağlamaz. Örneğin, düzenli depolama sahası sızıntı sularında bulunan hümitik maddelerin biyolojik olarak oksitlenmesi zordur. Kombine arıtma prosesleri bu tür sorunların çözümünde tercih edilen en umut verici yöntemler arasında yer almaktadır. Bu yöntemler iki veya daha fazla prosesin bir arada uygulanması ile yürütülmektedir. Biyolojik arıtımı takiben fizikokimyasal arıtım veya farklı fizikokimyasal, elektrokimyasal, membran proses türleri, filtrasyon ve ileri oksidatif proseslerin biyolojik süreçlerle entegre edilmesi şeklinde uygulamaları sağlanmaktadır (Oumar *et al.* 2016).

Diğer arıtma yöntemleri

Sızıntı suyu arıtımında kullanılan yöntemlerden biri doğal arıtma yöntemleridir. Bu yöntemler, daha çok yoğun arazi gereksinimi olan sistemlerdir. En çok kullanılan ise sazlık sistemlerdir ancak direkt olarak bu sistemler kullanılmamaktadır. Daha çok nihai arıtma veya seyreltilmiş sızıntı sularının arıtılması şeklinde uygulamaları mevcuttur. Yaygın olarak kullanılan diğer bir yöntem ise sızıntı sularının evsel atıksularla karıştırılarak şehir atıksu arıtma sisteminde ortak arıtılmasıdır. Kanalizasyona doğrudan boşaltılması söz konusu olan çöp sızıntı sularının çevre üzerindeki olumsuz etkileri nedeni ile standartları karşılamak üzere sahada ön arıtmadan geçirilmesi gerekmektedir (Çeçen & Aktaş, 2004).

Bu şekilde bir ön arıtmadan geçirilen sızıntı sularının evsel atıksularla birlikte atıksu arıtma tesislerinde uygulanan kombine bir arıtım ile iyi kalitede bir çıkış suyu sağlamak

mümkün olabilmektedir. Bu kombinasyon ile sızıntı suyundaki yüksek konsantrasyondaki azot, yüksek hacimdeki evsel atıksu ile karışarak istenen düzeyde azot ve fosfor konsantrasyonuna ulaşılabilir (Ahn *et al.* 2002; Çeçen & Aktaş, 2004; Gandhimathi *et al.* 2013).

Sızıntı suyu arıtımında elektrokimyasal teknolojiler

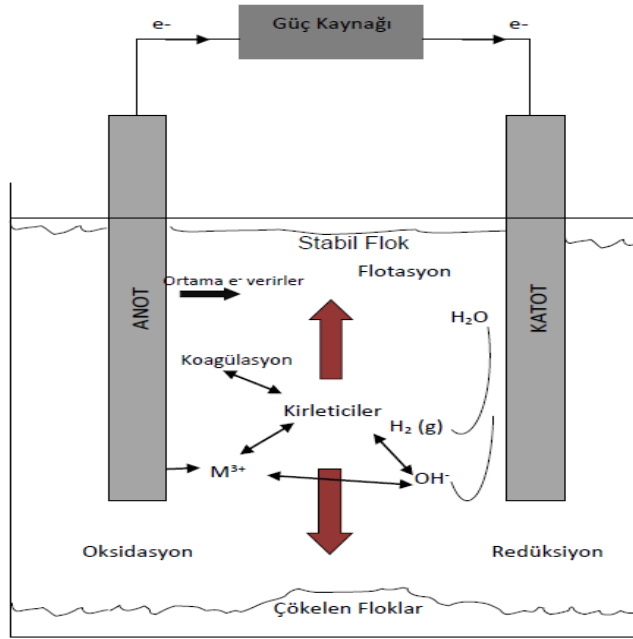
Elektrokimyasal teknolojiler, elektrolitik bir çözelti içerisinde belirli malzemelerden yapılmış anot ve katot arasında bir elektrik alanı uygulanarak gerçekleşen elektron transferine dayanır. Elektrokimyasal hücreye uygulanan akım veya potansiyel farkı, çözeltideki kirleticilerin yükseltgeme/indirgeme reaksiyonlarını teşvik etmek için gerekli itici gücü sağlar. Bu teknolojilerin otomasyonunun çevresel uyumluluğu, çok yönlülüğü ve uygunluğunun yanı sıra kalıcı kirleticilerin giderilmesinde gösterilen yüksek verim bu alanda yapılan çalışmaların artmasını sağlamaktadır (G. Chen, 2004; Deng & Englehardt, 2007; Martinez-Huitle & Ferro, 2006). Aşağıdaki alt bölümlerde elektrokoagülasyon ve elektrokimyasal oksidasyonun temelleri ile sızıntı suları arıtımındaki uygulamaları sunulmaktadır.

Elektrokoagülasyon prosesi

Elektrokoagülasyon (EK), alüminyum ve demir gibi metalleri çözmek için elektrik enerjisini kullanarak kirleticilerin topaklanmasına neden olan koloidal süspansiyonları kararsız hale getirebilmek için kullanılan bir atık su arıtma prosesidir (Mechelhoff *et al.* 2013). Elektrokimyasal proste elektrokoagülasyon, elektrooksidasyon ve elektroflotasyon mekanizmaları bir arada meydana geldiği düşünülmektedir. Proste anotta (negatif yüklü) yükseltgenme ve katotta (pozitif yüklü) indirgenme olmaktadır (Ilhan *et al.* 2008; Huijuan Liu *et al.* 2010; Mohammad Y A Mollah *et al.* 2004). Klasik flokülasyon ve koagülasyon ile karşılaştırıldığında çok küçük koloidal partiküller elektrokoagülasyon ile ortamdaki daha iyi giderilebilmektedir. Bunun nedeni bu küçük yüklü partikülleri harekete geçiren elektrik alanı nedeniyle çökelme olasılığının daha yüksek olmasıdır (Terrazas *et al.* 2010). Elektrokoagülasyon prosesi üç temel aşamadan oluşur.

- “kurban elektrot” un elektrolitik oksidasyonu ile pıhtılaştırıcı maddelerin oluşumu,
- Kirletici partikül ve süspansiyon halindeki maddelerin kararsız hale getirilmesi ve emülsiyonlarının kırılması,
- Flok oluşturmak için kararsız halde bulunan fazların bir araya getirilmesi.

Şekil 3’de iki elektrotlu elektrokoagülasyon prosesinin şematik diyagramı verilmiştir.



Şekil 3. İki elektrotlu elektrokoagülasyon prosesinin şematik diyagramı

Şekil 3'e göre bir elektrokoagülasyon prosesinin mekanizması şu şekilde açıklanabilir:

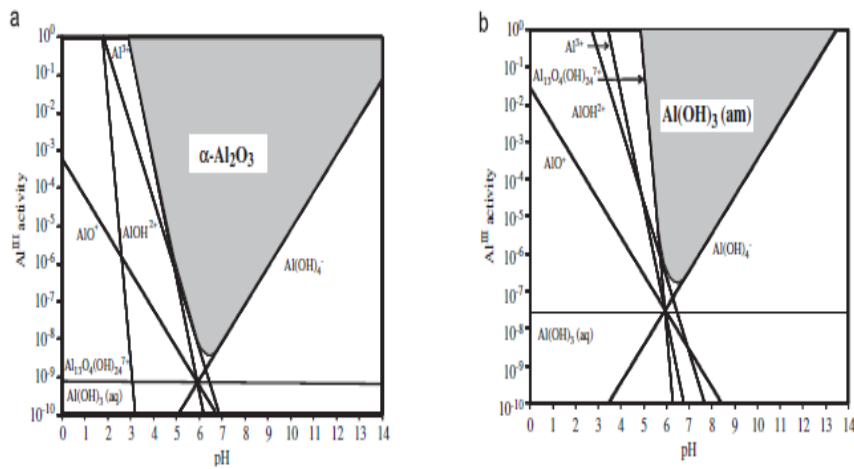
İlk aşama, anodun elektrolitik oksidasyonu ile koagülantların oluşumudur. Bu süreçte demir veya alüminyumdan imal edilmiş metal anotlara bir potansiyel uygulanır ve hemen hemen polimerik demir veya alüminyum hidroksitlere hidrolize olan metal iyonlarının üretilmesine neden olur. Aşağıdaki mekanizmalar ile metal hidroksitlerin oluşum aşamaları verilmiştir.

İkinci aşama, partikül, süspansiyon ve kirletici maddelerin kararsız hale getirilmesidir. Bu durum şu şekilde özetlenebilir:

- Kurban anodun oksidasyonu sonucu oluşan iyonların etkileşimi ile yüklü yapılar çevresindeki çift tabakanın sıkıştırılması,
- Kurban anodun elektrokimyasal çözünmesi ile oluşan farklı yükler ile atık suda bulunan iyonik türlerin nötralizasyonu gerçekleşir. Bu zıt yükler, Van Der Waals çekiminin etkili olduğu ölçüde partiküller arasında elektrostatik itmeyi azaltarak koagülasyonu sağlar (Saravanan *et al.* 2010).
- Koagülasyon sonucu oluşan flok, sulu ortamda kalan kolloidal partikülleri yakalayan ve köprüleyen bir çamur örtüsü oluşturur (El-Taweel *et al.* 2015; Ghernaout *et al.* 2009; Saravanan *et al.* 2010).

Koagüle olmuş partiküller, sedimentasyon veya katot tarafından üretilen hidrojen (H₂) gaz kabarcıklarına tutunur ve elektro-flotasyon ile yüzeye taşınarak sıvı fazdan ayrılırlar. Elektrokoagülasyon prosesinde ekonomik, etkili ve kolay çözünebilir olmasından dolayı en

fazla tercih edilen elektrot materyalleri alüminyum ve demirdir (Fernandes *et al.* 2015). Elektrokoagülasyonda anot olarak demir kullanıldığında, Fe oksidasyonu ile Fe^{2+} iyonları çözeltiye geçer ve $\text{Fe}(\text{OH})_n$ ($n = 2$ veya 3) oluşur. Oluşan $\text{Fe}(\text{OH})_2$ ve $\text{Fe}(\text{OH})_3$ flokları kolloidler, dağılmış parçacıklar ve iyonik türler için güçlü bir çekim gücüne sahiptir ve daha büyük parçacıklar oluşturan flokülasyona neden olur. Alüminyum elektrot kullanılması durumunda, alüminyum elektrotun elektrolitik çözünmesi sonucunda başlangıçta $\text{Al}(\text{OH})_3$ ' e dönüştürülen ve sonradan $\text{Al}_n(\text{OH})_{3n}$ ' e dönüştürülen Al^{3+} ve $\text{Al}(\text{OH})_2^+$ türlerini üretir. Ayrıca, çözelti ortamının pH değerine bağlı olarak, sistemde $\text{Al}(\text{OH})_2^+$, $\text{Al}_2(\text{OH})_2^{4+}$ ve $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ gibi kompleks yapılar da ortamda bulunabilir. Şekil 4'de alüminyum elektrotun potansiyel ve pH diyagramı verilmiştir.



Şekil 4. (a) 25°C'de pH'a bağlı Al^{3+} türleriyle dengede bulunan Al_2O_3 'ün çözünürlüğü, (b) 25°C'de pH'a bağlı Al^{3+} türleriyle dengede $\text{Al}(\text{OH})_3$ (Amorf) çözünürlüğü

Şekil 4(a)'ya göre $\text{pH} < 4.7$ olduğu durumlarda Al^{3+} , Al_2O_3 'ten çözülmüş halde bulunurken Şekil 4(b)'de ise $\text{pH} < 5.4$ olduğu durumlarda $\text{Al}(\text{OH})_3$ çözünerek $[\text{Al}_{13}\text{O}_4(\text{OH})_{24}]^{7+}$ iyonları halinde ortamda bulunur (Mechelhoff *et al.* 2013). pH değerine bağlı olarak demir veya alüminyum anotlar için metal hidroksit üretiminde iki farklı mekanizma bulunmaktadır.

Mekanizma 1 (asidik ortam)

Anot



Elektrokoagülasyon prosesinin avantajları

1. Elektrokoagülasyon basit donanım gerektirir ve çalışırken işletme problemi veya yeterli alan ihtiyacı sorunu yoktur.

2. Elektrokoagülasyon ile muamele edilmiş atık su, renksiz, berrak ve kokusuzdur.
3. Elektrokoagülasyon prosesi, düşük çamur üreten bir procestir. Açığa çıkan çamur, esasen metalik oksitler / hidroksitlerden oluştuğu için sudan kolaylıkla ayrılabilir ve arıtılması kolaydır.
4. Elektrokoagülasyon prosesinde oluşan floklar, kimyasal floklara benzer, ancak bu floklar, kimyasal nitelikli ve daha büyük ölçekli olma eğilimindedir. Floklarda bağlı su miktarı az, aside dayanıklı ve daha kararlıdır. Bu nedenle filtrasyon ile daha hızlı ayrılabilir.
5. Elektrokoagülasyon, diğer kimyasal arıtım metotlarına kıyasla daha az toplam çözünmüş katı madde (TDS) içeren atık üretir. Arıtılmış atıksuyun yeniden kullanılması halinde, daha düşük geri kazanım maliyetine olanak tanır.
6. Elektrokoagülasyon prosesi, çok küçük koloidal partikülleri giderme avantajına sahiptir, çünkü uygulanan elektrik alanı onları daha hızlı hareket ettirir, böylece koagülasyonu kolaylaştırır.
7. Elektrokoagülasyon süreci, kimyasalların kullanımından uzaktır, bu nedenle klasik koagülasyon prosesinde oluşan fazla kimyasal yapıları nötrleştirme sorunu ve kimyasal maddeler tarafından oluşturulan ikincil kirlilik olasılığı gibi sorunlar mevcut değildir.
8. Elektroliz sırasında üretilen gaz kabarcıkları, kirletici maddenin daha kolay konsantre edilebileceği, toplanabileceği ve çıkarılabileceği şekilde çözeltinin üst kısmına hareket eder.
9. Elektrokoagülasyon hücresindeki elektrolitik süreçler elektriksel olarak kontrol edilir, bu nedenle bakımları daha azdır.
10. Elektrokoagülasyon prosesi elektriğin olmadığı bölgelerde rahatlıkla kullanılabilir, çünkü prosese yerleştirilen bir güneş paneli işlemi gerçekleştirmek için yeterli olabilir (M Yousuf A Mollah *et al.* 2001).

Elektrokoagülasyon prosesinin dezavantajları

1. 'Kurban elektrotlar' oksidasyon sonucu atık su akımlarına karışır ve periyodik olarak değiştirilmelidir.
2. Birçok yerde elektrik kullanımı pahalı olabilir.
3. Katot üzerinde oluşan oksit film tabakası, elektrokoagülasyon prosesinin verimini azaltır.
4. Atık suyun yeteri kadar iletken olması gereklidir.

5. Bazı durumlarda Jelatinimsi hidroksit çözünme eğilimine sahiptir (M Yousuf A Mollah *et al.* 2001).

Elektrokoagülasyonu etkileyen unsurlar

Akım yoğunluğu

Proses hızının belirlenmesinde akım yoğunluğu önemli bir parametredir. Elektrokoagülasyon reaksiyon kinetiği ve enerji tüketimi üzerinde önemli bir etkiye sahiptir. Akım yoğunluğu arttıkça sarf elektrotların anodik çözünme hızı artar. Böylece kirleticilerin uzaklaştırılmasını sağlayan hidroksit floklarında artış olur.

Akım yoğunluğundaki artışla beraber kabarcık oluşum hızı artar ve kabarcıkların boyutu küçülmüş olur bu da H₂ flotasyonu ile kirleticilerin daha hızlı uzaklaştırılmasını sağlar (Fernandes *et al.* 2015). Elektrot yüzeyinin periyodik temizliği gerçekleştirildiği sürece elektrokoagülasyon sistemini uzun bir zaman kullanabilmek için tavsiye edilen akım yoğunluğu değeri 20-25 A/m²' dir (Tanattı, 2015).

pH

Elektrokoagülasyon prosesinde ortamın pH değeri tarafından etkilenen metal hidroksitlerin türü kirleticilerin uzaklaştırılmasında etkin bir rol almaktadır. Elektrokoagülasyon işleminde alüminyum elektrot kullanılması durumunda 8'den küçük olan başlangıç pH değerlerinde çıkış suyunun pH değeri başlangıç pH değerinden daha yüksek, 8'den büyük başlangıç pH değerlerinde ise çıkış suyu pH değeri başlangıç pH değerinden daha küçüktür. Bu bulgular elektrokoagülasyon prosesinin alkali ortamda az da olsa tamponlanma özelliğine sahip olduğunu belirtir. Çözelti ortamının pH değeri küçük olduğunda pH değerinde bir artış meydana gelirken, çözelti ortamının pH değeri büyük olduğunda ise pH değerinde bir azalma meydana gelmesi; elektrokoagülasyon prosesinin avantajlarından (G. Chen, 2004; Vik *et al.* 1984). Bu durum, asidik pH değerleri etkili bir oksitleyici madde olan HOCl oluşumuna imkân tanımaktadır. Hafif alkali veya Nötral pH değerlerinde ise etkili tür OCl⁻ iyonudur. pH>11 gibi yüksek pH değerlerinde OCl₃⁻ ve OCl₄⁻ komplekslerinin oluşumları sonucu oksidasyon gücünde etkili azalmalar söz konusudur (G. Chen, 2004; Vardar, 2006; Vik *et al.* 1984).

İletkenlik

Elektrokoagülasyon prosesinde pH ile birlikte elektriksel iletkenlik önemli bir rol oynar. Elektrokimyasal proseslerde, iletkenlik düşük olduğunda, akım verimi azalır ve daha yüksek potansiyellere ihtiyaç duyulur. Bu durum, elektrotun pasifleşmesine, ohmik elektrolitik

iletkenliđi arttırmak için direncin azalmasına ve enerji tüketiminin artmasına neden olur (Fernandes *et al.* 2015). Atıksuların elektrokimyasal arıtımında İletkenlik, belirli bir giderim verimine ulaşmak için gereken arıtım süresini etkileyen bir parametredir. Elektrolitik iletkenliđi arttırmak için NaCl sıklıkla kullanılan kimyasaldır. Klorür anyonları, kalsiyum karbonatın sert suda elektrotların yüzeyinde bir yalıtım tabakası oluşturabilecek şekilde çökmesini önlemek için diđer anyonların olumsuz etkilerinin azaltılmasında da rol oynar. Akım yoğunluđunun çok yüksek olması halinde klorür anyonları, organik bileşikleri ve demir iyonlarını okside edebilen veya su/atık su dezenfeksiyonuna katkıda bulunabilen hipoklorit anyonları gibi aktif klor formlarına oksitlenebilir. Atıksu arıtımında elektrokoagülasyon prosesinin normal çalışma koşullarını sağlamak için, mevcut anyonların %20'sinin Cl^- olması önerilmektedir. Ancak, atıksu arıtımında ve özellikle içme suyu arıtımında iletkenlik artışına kısıtlamalar uygulanmaktadır. Atıksu arıtımı için, iletkenliđin artmasıyla oluşabilecek ikincil bir kirliliđin yanı sıra, arıtılan atık suyun yeniden kullanılmasına veya ekosistemde dışarı atılmasına bađlı olarak uyulması gereken normlar vardır. İçme suyunun EC ile arıtılması sırasında maksimum 250 mg/L'lik iletkenlik artışına izin verilirken, endüstriyel atık sulardaki maksimum klorür konsantrasyonunu tanımlayan deđerler, standart normlara göre oldukça sınırlıdır (100 mg Cl^- /L) (Hakizimana *et al.* 2017).

Destek elektrolit türü

Elektrokoagülasyon prosesinde destek elektrolit kullanımı önemli bir unsurdur. Öte yandan, destek elektrolitin genellikle sadece elektrik tüketiminin azalmasına neden olmakla kalmayıp, aynı zamanda radikaller ve kararlı akıdanlar oluşturarak giderim veriminde önemli ölçüde etkiye sahiptir. NaCl, genellikle su veya atık suyun iletkenliđini arttırmak için kullanılır. Elektrik yükünün iletiminde iyonik katkı ile birlikte, HCO_3^- , SO_4^{2-} gibi anyonların olumsuz etkilerini de azaltır. Sülfat veya Karbonat iyonları, çözelti ortamında mevcut olan kalsiyum veya magnezyum iyonlarının sedimantasyonuna sebep olarak elektrot yüzeyinde iletken olmayan bir tabaka oluşturabilirler. Bu katman elektrotlar arasındaki potansiyeli aniden artırır, aynı zamanda akım verimliliđinde etkili bir düşüşe sebep olur.

Elektrotlar arası mesafe

Elektrotlar arası mesafe elektrokoagülasyon prosesinin performansını etkileyen bir parametredir. Yüksek iletkenli atıksularda elektrot mesafesi nispeten daha kısa tutulabilir. Elektrotlar arası mesafe kısa olması halinde yüksek organik yüke sahip olan sızıntı sularının arıtımında elektrotların pasivasyonunu (oksitlenme) güçlendirir. Bu olay, çökmeyi sađlayan iyonların daha yüksek çarpışmalarıyla ilişkili elektrik akımının artması ile sonuçlanan

durumdur (Verma, 2017). Elektrotlar arasındaki mesafe azaldıkça, elektrokimyasal olarak daha fazla üretilen gaz kabarcıkları türbülanslı hidrodinamikleri beraberinde getirir ve böylece yüksek kütle transferine yol açar (Hakizimana *et al.* 2017).

Elektrotlar arası mesafenin büyük olması halinde elektrokoagülasyon prosesinin elektrotlar üzerindeki etkinliğini yitirmesine neden olmaktadır (Fernandes *et al.* 2015). Ek olarak, anot ve katotlar arasındaki mesafe, hem sürekli sistem hem de kesikli sistem elektrokoagülasyon prosesleri için ve arzu edilen bir elektrokoagülasyon verimliliğine ulaşmak için gerekli reaksiyon süresinin belirlenmesini sağlar. Karmaşık bir elektrot düzenlemesi için, elektrotlar arası mesafe, hacmi belirlenen elektrokoagülasyon hücresine yerleştirilecek elektrot sayısını da belirler (Hakizimana *et al.* 2017).

Karıştırma hızı

Elektrokoagülasyon prosesi, uygulanan elektrik yükü yoluyla iyonların mobilizasyonu ile gerçekleşir ve karıştırma işlemi, iyonların süspansiyondaki hareketini etkilemektedir. Elektrokoagülasyon prosesinde karıştırma hızı, çökeltme için uygun hidroksit floklarının birbirine bağlanmasında etkilidir. Karıştırma, anodun çözünmesiyle oluşan koagülant maddeyi etkili bir şekilde aktarabilir. Ayrıca sıcaklık ve pH gibi sistem değişkenlerinin homojenizasyonuna katkıda bulunabilir. Bu durum göz önünde bulundurularak, karıştırma, kirletici ve koagülantlar arasındaki temas için çok daha verimli olur ve daha homojen bir çözelti ortamını teşvik edebilir (Modirshahla *et al.* 2008). Öte yandan, karışım iyonların mobilizasyonuna ve flokların parçalanmasına yönelik olumsuz etkiler de oluşturabilir. Ancak, yüksek karıştırma hızı, oluşan flokları yok eder ve reaktörde giderilmesi zor küçük floklar oluşur. Yüksek karıştırma hızı, flokların dağılmasına ve adsorbe edilen kirleticilerin desorbe edilmesine neden olur (An *et al.* 2017). Bu durumda, KOİ verimi azalır. Uygulanan deneysel koşullara bağlı olarak, makul bir karıştırma, sızıntı sularının elektrokoagülasyon ile arıtılmasında bir avantaj olmasına rağmen, ekstra maliyetlerle ilişkili dezavantajlara da neden olabilmektedir (Fernandes *et al.* 2015).

Sıcaklık

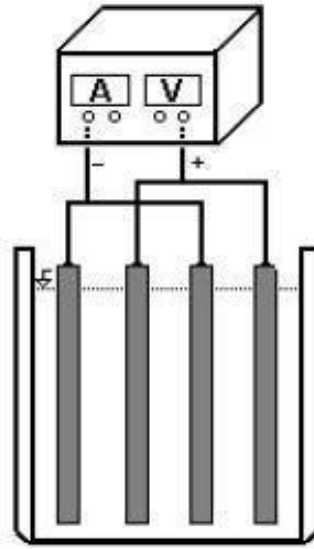
Elektriksel iletkenlik üzerinde diğer bir etkili parametre sıcaklıktır. Çözelti sıcaklığının artması ile çözeltinin viskozitesi azalarak akışkanlığı artar. Böylece kinetik enerjinin artması ile çözeltide bulunan iyonlar ile daha kolay hareket eder ve elektriksel iletkenliğin artmasına sebep olurlar.

Sıcaklığın fazla artması ($\geq 60^{\circ}\text{C}$) nedeniyle iyonların hareketleri de güçlenir. Bu durum iyonların birbiri ile şiddetle çarpışmasına neden olur ve iletkenliği azaltacak yönde katkıda

bulunur. Bu etkiler sonucu elektriksel iletkenlikte artışlar meydana gelmesine rağmen yüksek sıcaklık değerlerinde yeniden azalmalar görülür (Anglada *et al.* 2009; Camcıoğlu, 2016).

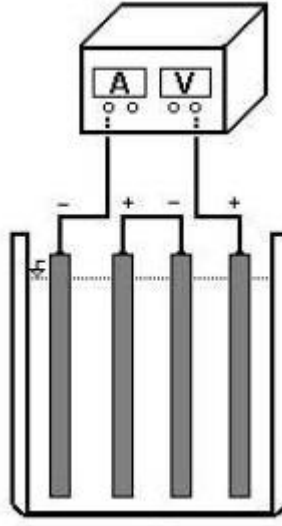
Elektrot yerleşimi

Elektrokoagülasyon proseslerinde, elektrokimyasal hücre içinde, monopolar elektrotlar seri-paralel bağlantılar ile monopolar ve bipolar elektrot bağlantıları gibi farklı elektrot düzenlemeleri sunulabilir. Paralel bağlantılı monopolar elektrotlar (MP-P) Şekil 5'teki gibi oluşturulan bir elektrot düzenine sahiptir. Sırasıyla aynı anodik veya katodik potansiyele alternatif olarak yerleştirilen katotlardan ve anotlardan oluşan bir elektrot düzenine sahiptir. Her bir katot/anot çifti, voltajın aynı olduğu küçük bir elektrolitik hücreye karşılık gelir. Dolayısıyla reaktör paralel bağlı elektrolitik hücrelerden oluşur. Akım, her bir elektrolitik hücredeki voltajın toplamıdır.



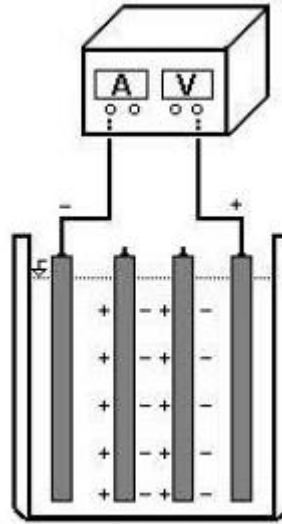
Şekil 5. Paralel bağlı monopolar elektrotlar (MP-P)

Seri bağlı monopolar elektrotlar (MP-S) Şekil 6'deki gibi oluşturulan bir elektrot düzenine sahiptir. Her bir anot (kurban) elektrot çifti dahili olarak bağlanmıştır. Elektrotlar, birbirleriyle bağlantılıdır ve iki dış yüzeyle hiçbir bağlantısı yoktur. Bu durumda, tüm elektrotlardan geçen elektrik akımı aynıdır, voltaj her bir elektrolitik hücredeki voltajın toplamıdır.



Şekil 6. Seri bağlı monopolar elektrotlar (MP-S)

Seri bağlı bipolar (BP-S) iki kutuplu elektrotlar, iki dış kısımdan oluşur. Elektrik güç kaynağına bağlı elektrotlar ve iki dış elektrot arasına yerleştirilen kurban elektrotlar, Şekil 7'deki gibi oluşturulan bir elektrot düzenine sahiptir. Dış elektrotlar monopolar, iç elektrotlar bipolardır. İki kutuplu elektrotlar birbirine bağlı değildir ve her iki tarafı aynı anda bir anot ve bir katot olarak işlev görür. Bu, her iki kutuplu elektrotun zıt taraflarınının zıt olarak yüklendiği, anodik çözünmenin pozitif tarafta gerçekleştiği, negatif tarafın katodik reaksiyonlara eğilimli olduğu anlamına gelir (Hakizimana *et al.* 2017).



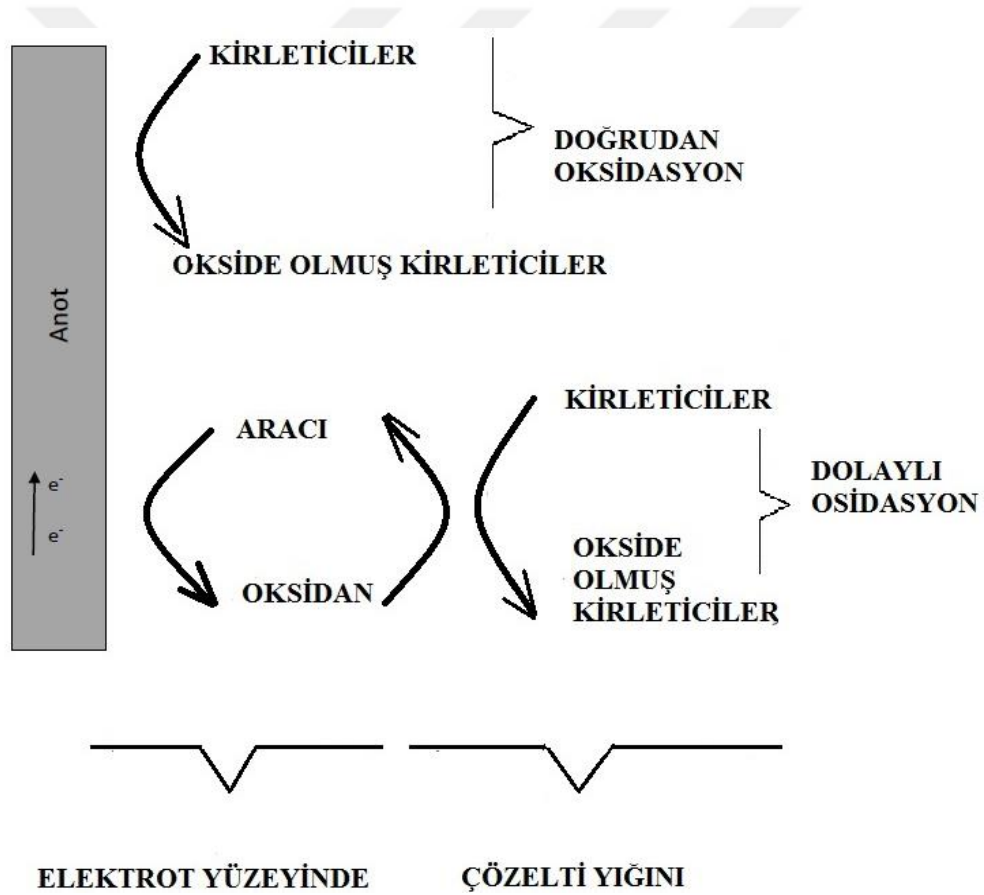
Şekil 7. Seri bağlı bipolar (BP-S) iki kutuplu elektrotlar

Genel olarak, monopolar elektrotlar düşük voltaj ve yüksek bir akım gerektirse de yüksek voltaj ve düşük bir akım altında çalışan bipolar elektrotların aksine daha düşük akım gerektirir. BP-S bağlantının yüksek bir elektrokoagülasyon verimliliği gösterebileceği göz önüne alındığında, sadece elektrokoagülasyon verimi göz önüne alındığında hangi elektrot düzenlemesinin diğerinden daha iyi olduğu sonucuna varmak çok zordur. Maliyet etkisi dikkate

alındığında, monopolar elektrotlar makbul kabul edilebilir, çünkü bipolar elektrotun her zaman yüksek bir enerji tükettiğini göz önünde bulundurarak, daha düşük enerji tüketimi ile yüksek kirleticiler giderimi sağlamak için yapılan monopolar elektrot düzenlemesi tercih edilmektedir. Kullanımı kolay olan monopolar mod, çalışma sırasında daha az bakım maliyetine ihtiyaç duyar (Hakizimana *et al.* 2017).

Elektrooksidasyon prosesi

Elektrooksidasyon (EO) prosesi, çok yönlülüğü ve ölçeklenebilirliği nedeniyle organik kirleticilerin arıtılmasında kullanılan en yaygın elektrokimyasal yöntemdir. Anodik oksidasyon, çok çeşitli pH koşullarında oksidan türleri ($\text{OH}^\bullet$) üretmek için kimyasal madde eklemeden sadece reaktif olarak elektron kullanan bir prostestir (Ghanbari *et al.* 2020). Elektrooksidasyon mekanizması Şekil 8’de verilmiştir.



Şekil 8. Elektrooksidasyon mekanizması

Elektrooksidasyon ile atıksuda mevcut kirleticiler, doğrudan anodik oksidasyon ve dolaylı oksidasyon olmak üzere iki yolla parçalanabilir. Birincisi elektron transferi yoluyla elektrot yüzeyi üzerindeki kirleticileri doğrudan oksitlerken, ikincisi elektroliz sırasında üretilen hidroksil radikalleri gibi oksitleyici maddeler tarafından kirleticiler oksidasyonuna aracılık eder (Meng *et al.* 2020). Dolaylı elektrooksidasyonda, anodik olarak üretilen klor ve hipoklorit, klorür iyonlarının varlığında inorganik ve organik maddeler için oksitleyici ajanlar

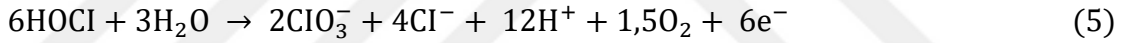
olarak kullanılır. Bu iyonlar, prosesin ara basamaklarda organik kirleticileri, klorlu organik bileşiklere dönüştürebilir. İyi bir proses verimliliği sağlamak için sodyum klorür konsantrasyonu yeterince yüksek olmalıdır.

Dolaylı elektrooksidasyonda başka bir teknik, Fe^{2+} varlığında elektrokimyasal olarak hidrojen peroksit üretilir ve elektrofenton reaksiyonu meydana gelir. Dolaylı elektrooksidasyon, atıksularda düşük değerlikli metal iyonlarının yüksek değerlikli metal iyonlarına oksitlendiği bir prosestir. Yüksek değerlikli bu metal iyonları, doğrudan organik kirleticilere saldırır ve ayrıca organik kirleticilerin giderilmesini sağlayan serbest hidroksil radikallerini de üretebilir. Doğrudan oksidasyon tekniğinde, fiziksel olarak "aktif oksijen" adsorbe edilir yani hidroksil radikali ($OH^\bullet$) veya 'aktif oksijen' yani bağlı oksijen (MO_x^+) anotlar üzerindeki organik bileşiklerle (R) reaksiyona girer.



Elektrot materyali olarak titanyum (Ti) elektrot, katot materyali olarak paslanmaz çelik (SS) kullanıldığında meydana gelen reaksiyon basamakları şu şekildedir.

Anotta:



Katotta:



Çözeltide:



Böylece organik bileşikler, fiziksel olarak adsorbe edilmiş hidroksil radikalleri tarafından parçalanır. Elektrooksidasyon prosesinin en önemli sorunu, elektrot yüzeylerinde meydana gelen yüksek kütle aktarımıdır. Bu durum Prosesin verimini azalttığından reaktör tasarımı değiştirilir.

Elektrooksidasyonda arıtma verimliliğini etkileyen parametreler akım yoğunluğu, pH atıksuyun veya kirletici maddenin konsantrasyonu ya da bileşimidir. Elektrooksidasyon

teknığının temel avantajları sağlamlık, çok yönlülük, kimyasal madde gereksinimi olmayışı, oldukça basit donanım ve kolay kullanımdır (Pulkka *et al.* 2014).

Elektrooksidasyon ile yapılan çalışmalarda seçilen anot malzemesi büyük önem taşımaktadır. Elektrot materyali seçimi ise; anot yüzeyi ile adsorplanmış hidroksil radikalının etkileşimi sebebiyle kullanılabilen anot materyalleri aktif ve pasif olarak sınıflandırılmıştır. Aktif olmayan anotlar, reaktiflerin veya ürünlerin sulu çözelti ortamından adsorpsiyonu için herhangi bir katalitik aktif bölge sağlamaz. Bu durumda, anot sadece elektronların ortama verildiği inert bir substrat olarak işlev görür. Aktif anotlar durumunda yüzeyde adsorbe edilmiş hidroksil radikallerine aracılık eder, anotta üretilen diğer oksitleyici türler: ozon, anotta Cl^- oksidasyonu ile açığa çıkan H_2O_2 ve Cl_2 , HClO ve ClO^- ile bisülfat, bikarbonat ve fosfatın anodik oksidasyonu ile açığa çıkan peroksidisülfat, peroksidikarbonat ve peroksidifosfattır.

Organik bileşiklerin hidroksil radikalleri ile oksidasyonu dikkate alınarak "aktif" ve "aktif olmayan" olmak üzere iki tip anot vardır. Aktif anotlardan bazıları platin (Pt), iridyum (IV) oksit (IrO_2), rutenyum (IV) oksit (RuO_2), kurşun dioksit (PbO_2), kalay dioksit (SnO_2) tir. Bor katkılı elmas (BDD) elektrotları ise "aktif olmayan" anotlara örnektir. Bir "aktif olmayan" elektrot, reaktiflerin ve/veya ürünlerin sulu ortamdan adsorpsiyonu için herhangi bir katalitik aktif bölge sağlamaz. Bir atık suyun elektrokimyasal oksidasyonu sırasında, oksidasyon mekanizmaları iki farklı yol izleyebilir:

- (i) organik bileşiklerin kısmen okside olduğu ve daha fazla biyolojik olarak bozulabilir reaksiyona dönüştürüldüğü elektrokimyasal dönüşüm
- (ii) organik bileşiklerin tamamen mineralize olduğu ve su, karbondioksit ve diğer inorganik türlere dönüştürüldüğü elektrokimyasal dönüşümdür.

Elektrooksidasyon prosesinde kullanılan elektrot türleri platin (Pt), iridyum (IV) oksit (IrO_2), rutenyum (IV) oksit (RuO_2), kurşun dioksit (PbO_2), kalay dioksit (SnO_2), bor katkılı elmas (BDD) anot ile son yıllarda sızıntı suyu arıtımında değişik kaplama metotları ile kaplanan titanyum elektrotlar platin-iridyum kaplı titanyum (Ti/Pt/Ir), rodyum oksit-titanyum oksit kaplamalı titanyum (Ti/RhOx-TiO₂), paladyum (IV) oksit-kobalt (II, III) oksit kaplamalı titanyum (Ti/PdO-CO₃O₄), rutenyum (IV) oksit kaplamalı titanyum (TiO₂/RuO₂), kalay dioksit - kurşun dioksit kaplamalı titanyum (Ti/PbO₂/SnO₂), platin kaplamalı titanyum (Ti/Pt), kalay-paladyum-rutenyum kaplamalı titanyum (SPR) ve kurşun dioksit kaplamalı titanyum elektrot (Ti/PbO₂) bulunmaktadır (Cabeza *et al.* 2007).

Elektrooksidasyona etki eden unsurlar

Akım yoğunluğu

Akım yoğunluğu/hücre voltajı, sadece elektrokimyasal oksidasyonu değil, aynı zamanda elektrotlarının polarizasyon davranışını da etkilediğinden en önemli değişken parametrelerden biridir. Uygun bir voltaj/akım yoğunluğu ile partiküller elektrosorpsiyon veya oksidasyonu ile polarize edilmektedirler. Akım yoğunluğu veya hücre voltajı kontrol parametresi olarak kullanılır ve genellikle akım yoğunluğu arttıkça arıtım performansı, enerji tüketiminin artışıyla birlikte artar. Akım yoğunluğundaki daha fazla artış, birçok atık su için KOİ ya da renk giderim verimini önemli ölçüde artırmamaktadır. Bu nedenle, giderim verimini ve enerji tüketimini dengelemek için optimize etmek gerekir.

pH

Başlangıç pH değeri, çok önemli bir parametredir, çünkü hem doğrudan oksidasyonu hem de dolaylı oksidasyonu etkiler, elektrotun adsorptif özelliklerini değiştirir. Atıksu arıtımı için pH, anodik oksidasyon ve dolaylı oksidasyon ile renk ve KOİ giderimi üzerinde zıt etkilere neden olur. Anodik oksidasyon için, muhtemelen oksijenin yan reaksiyonunun artması nedeniyle artan pH ile giderim verimi azalmaktadır (Chao Zhang *et al.* 2013)

Başlangıç konsantrasyonu

Genel olarak, giriş konsantrasyonu yüksek olan atıksularda, adsorpsiyon ve oksidasyon yükündeki artışa bağlı olarak giderim verimi düşer. Bu durum, reaktörün ömrünü azaltarak, adsorpsiyon kapasitesini ve katalitik kabiliyetini kısmen kaybettirir (Chao Zhang *et al.* 2013).

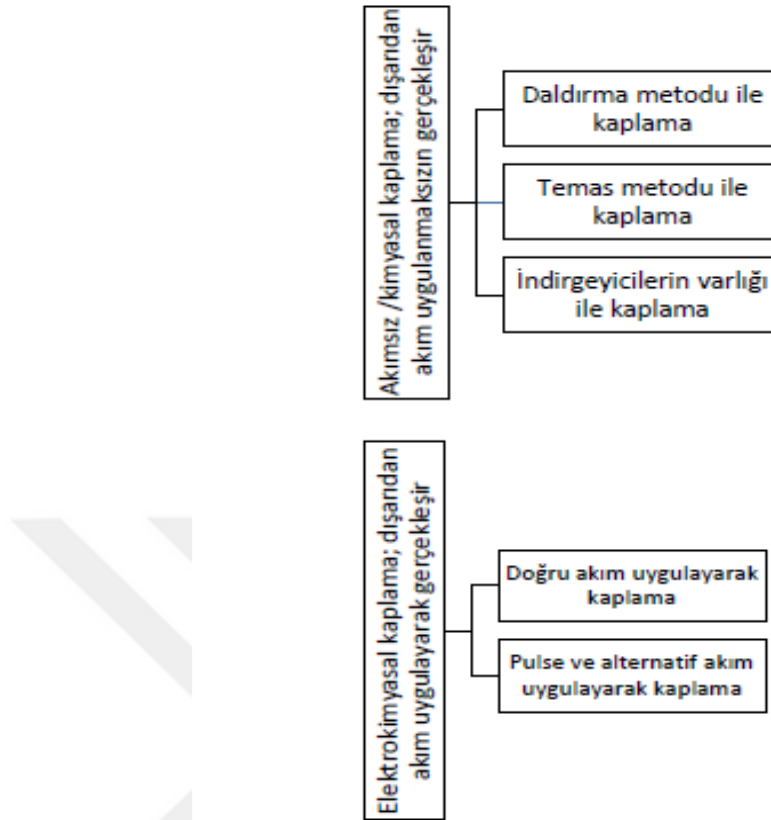
Arıtım süresi

Arıtma süresi enerji tüketimi ve atıksudaki kirleticilerin giderim performansı ile ilgilidir ve bu nedenle en uygun olanı, atık su deşarj standardını minimum enerji tüketimi ile karşılamasıdır. Uzun arıtım süreleri, giderim verimini çok etkilemez aksine arıtım maliyetini artırır (Chao Zhang *et al.* 2013).

Metal kaplama süreci

Metal kaplama, sadece metal tuzlarının bulunduğu çözeltiden, ortamda yeterli derecede elektron var ise altlık malzeme üzerine, çözeltideki metal iyonlarının tamamı indirgenecek şekilde gerçekleşir. Metal kaplamalarda iki temel yöntem kullanılmaktadır. İlki akımsız veya kimyasal kaplama, dışarıdan potansiyel veya elektron kaynağı kullanmaksızın gerçekleştirilen kaplamadır. İkincisi ise elektrolitik kaplamadır, dışarıdan uygulanan potansiyel aracılığıyla

elektronların desteklenmesi ile gerçekleştirilir. Şekil 9'da akımlı ve akımsız kaplamanın özet şeması verilmiştir.



Şekil 9. Akımsız ve elektrolitik kaplama prosesleri şeması (Adigüzel, 2015)

Akımsız kaplama, elektrik akımı kullanmadan, çözeltideki, indirgeyici madde ve metal iyonları arasında meydana gelen kimyasal reaksiyon sonucunda oluşan metalik kaplama işlemidir.

Akımsız kaplamalar, sadece kimyasal reaksiyonlar ile meydana gelir. Akımsız kaplamalar; nikel tuzlarının sulu çözeltilerinin sodyum hipofosfit, NaPH_2O_2 ile indirgenmesiyle, istenen şekilde olan yüzeylerde kendiliğinden oluşur. Elektrolitik kaplama, elektroliz olayı ile yapılır. Belirli tuz çözeltilerinin, kaplama metaline elektrolitik olarak uygulanmasıyla gerçekleşir. Bu kaplamada, yüklü iyonların elektrik alanı mevcudiyetinde elektrolit içerisinde hareketi esasına dayanır. Elektrotta yükseltgenme ve indirgenme reaksiyonları gerçekleşir. Banyo sıcaklığı, banyo bileşimi ve pH derecesi gibi faktörler kaplama kalınlığını etkiler (Adigüzel, 2015).

Titanyum dioksit (Ti/TiO₂) elektrot

Metalik bir materyalin pasifleştirici oksit (metal/oksit yapıları) ile kaplanmasıyla oluşturulan yapıların elektronik ve elektrokimyasal özellikleri büyük önem taşımaktadır.

Aslında pasifleştirici oksitler titanyum gibi çeşitli metallere elektrokimyasal korozyona karşı dayanma kabiliyeti sağlar.

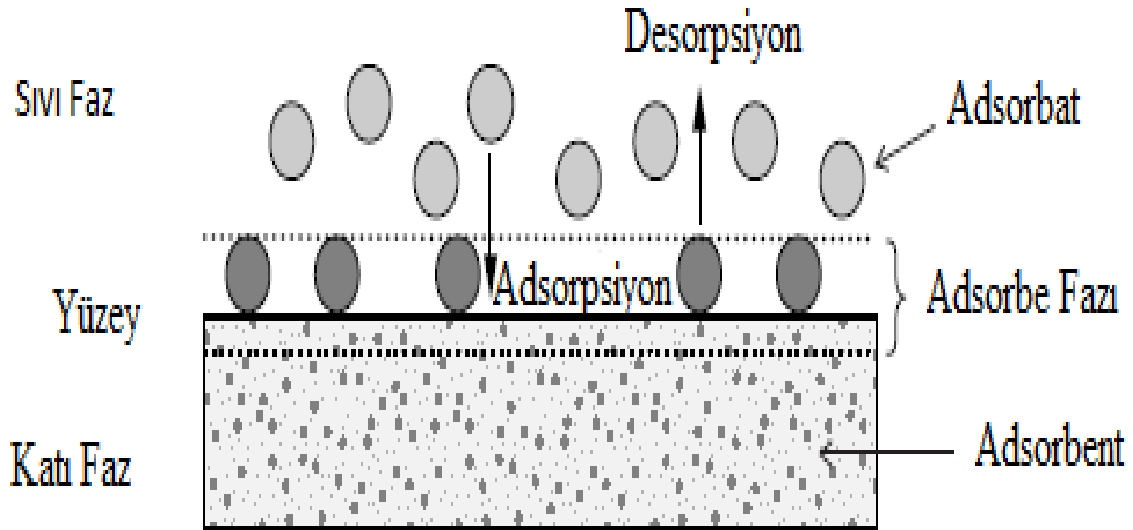
TiO₂ üzerine yapılan kaplamaların kimyasal stabilitesi ve elektrokimyasal özellikleri, hazırlanma işlemlerine büyük ölçüde bağlıdır. Bu özelliklerin dikkatli bir şekilde incelenmesi, elektrolitik hücrelerdeki anotlar için bir substrat olarak titanyum önerilmesi için önemli bir adımdır. TiO₂ üzerinde oluşturulabilen pasif kaplamalar, termal oksidasyon, kimyasal oksidasyon veya anodizasyon yoluyla yapılır. Bu kaplamalar genellikle n-tipi yarı iletken gibi davranır. Modifiye titanyum elektrotlar iletken bir bileşiğin spesifik elektrokimyasal reaksiyonları ile meydana gelir. Titanyum elektrotların metalik bir oksitle modifikasyonu DSA olarak bilinen boyutsal olarak kararlı anotların hazırlanmasına yol açar (Zuo *et al.* 2007). Titanyum dioksit (anataz), foto kataliz alanında yoğun olarak araştırılmıştır. UV ışığı altında enerjili fotonlar, bant aralığında veya üzerinde (yaklaşık 3.2 eV veya $\lambda \leq 400$ nm) değerlik elektronlarını (e^-) uyarır ve iletim bandına taşıyarak iletim bandında çukurlar oluşur. Bu uyarılmış yük taşıyıcıları, yarı iletken yüzeye adsorbe edilen moleküller ile reaksiyona girerek foto katalizör görevi görebilir. Fotojenere edilmiş delikler kirleticiyi oksitler ve aynı zamanda elektron alıcıları olarak hareket eder. Ayrıca, TiO₂ bant aralığı H₂O/OH[•] reaksiyonu (-2.8 V) için redoks potansiyelini içerir, böylece birçok organik bileşiğin degradasyonu sağlanır. Ne yazık ki, atık su arıtımında TiO₂ kullanımı, düşük enerji dönüşüm verimliliği (<%5) nedeniyle sınırlıdır, çünkü fotojenere edilmiş şarj taşıyıcılarının çoğu yarı iletken yüzeyine ulaşmadan ve daha sonra adsorbe edilen moleküller ile etkileşime girmeden rekombinasyona uğrar (Gracien *et al.* 2007). Pd-Co alaşımlarının esas olarak elektro katalitik özelliklerinden dolayı araştırmalarına ve sentezine büyük ilgi duyulmaktadır. Bu alaşımların 4 elektronluk bir oksijen indirgeme reaksiyonu (ORR) için katalitik özellikleri saf platin özellikleri ile karşılaştırılabilir (Mech *et al.* 2013).

Pd-Co alaşımları, yüksek sertlik ve korozyon direnci ve sonuç olarak yüksek dayanıklılık gibi mükemmel mekanik özelliklere sahiptir. Bu alaşımlar aynı zamanda dik manyetik anizotropi ve yüksek Kerr dönme açıları gibi ilginç manyetik özellikler sergiler, bu da manyeto-optik kayıt alanında iki önemli özelliktir. Bu özellikler Pd-Co alaşımlarını manyetik ve manyeto-optik kayıt alanlarındaki uygulamalar için ümit verici malzemeler haline getirmektedir. Bu alaşımlar bazı pratik önem arz etseler de, bu tür alaşımların elektrodpozisyonu üzerine çok az çalışma vardır (Noce *et al.* 2006). Alaşım elementine ve bileşimine bağlı olarak, Pd alaşım katalizörlerinin asidik ortamdaki ORR için mükemmel aktivite sergilemektedir. Çeşitli araştırmalarda, Pd_xCo_y sisteminin katalitik aktivitesinin alaşımdaki Co içeriği ile değiştiği belirtilmiştir (Oishi & Savadogo, 2013). Şimdiye kadar

yapılmış çalışmalarda sol-gel metodu geçiş metallerinin titanyum dioksit üzerine aktarılmasında yaygın kullanılan bir metot olmasına rağmen re-anodizasyon metodu ile geçiş metallerinin anataz TiO_2 elektrotları üzerinde elektrokimyasal depozisyonuna yönelik çalışmalar az sayıdadır (Gracien *et al.* 2007).

Adsorpsiyon

Bir katı atık deponi sahasından deşarj edilen sızıntı suları, bir dizi organik ve inorganik kirleticilerden oluşur. Bu kirleticilerin alıcı su ortamlarına verilmeden önce atık sudan uzaklaştırılması önemlidir. Sızıntı suyu içeriğindeki kirletici konsantrasyonların izin verilen sınırlar içerisinde çeşitli fiziksel ve kimyasal teknikler kullanılarak kontrol etmek mümkündür. Adsorpsiyon prosesi bu tür atık suların arıtılmasında kullanılan arıtma tekniklerinden biridir (Midda *et al.* 2020). Adsorpsiyon, ara yüzeyde belirli bir madde konsantrasyonunun tutunma prosesidir. Adsorpsiyon, çok yönlü bir süreç olduğundan maddenin bir fazdan ayrılmasına, birikmesine ve diğer faza konsantre olmasına bağlı olarak, gaz-sıvı, gaz-katı, sıvı-sıvı gibi farklı iki fazın ara yüzeyinde oluşur. Atom, iyon veya moleküllerin katı bir yüzeye bağlanmasına adsorpsiyon, adsorbe edilen partiküller yüzeyden ayrıldığında desorpsiyon, katı adsorbent ya da adsorban ve katı bir yüzeyde adsorbe edilen maddeye adsorbat veya adsorplanan denir (Demir & Yalçın, 2014).



Şekil 10. Adsorpsiyon oluşumu

Şekil 10 adsorpsiyon prosesinin oluşumunu göstermektedir. Şekil 9'a göre sıvı ortamda adsorbat ile adsorbent arasındaki moleküler çekim kuvvetlerinin etkisiyle adsorbent yüzeyine adsorbat difüzyonu meydana gelerek adsorbat, adsorbentin gözenekleri içine doğru taşınır. Sonraki adımda ise adsorbat partikülleri adsorbent gözeneklerini doldurduğunda adsorbat partikülleri, adsorbentin yüzeyinde reaksiyona giren iyon, molekül ve atomlar ile tabaka halinde birikir (Zeybek, 2019).

Uygulanabilirlik açısından ekonomik olan adsorpsiyon yöntemi atık sulardan kirleticilerin uzaklaştırılmasında oldukça elverişlidir. Günümüzde en çok kullanılan adsorbent türleri; kömürler, zeolitler, metal filizleri, killer, silika jeller, metal oksitler, yapay zeolitler ve karbon nanotüplerdir. Bunlar geniş yüzey alanı ve poroz yapıya sahip olmaları nedeniyle adsorplama kapasitesi yüksek adsorbentlerdir. Bir adsorbentin adsorpsiyon kapasitesi, o adsorbentin kimyasal karakterizasyonunun yanı sıra por boyutu dağılımı, toplam por hacmi ve spesifik yüzey alanına bağlı olarak değişebilir (Balci, 2018).

Adsorpsiyon türleri

Adsorpsiyonda, adsorbent ve adsorbat arasında zayıf ya da kuvvetli etkileşimler olmakla birlikte bu etkileşimlere göre sınıflandırılma yapılmaktadır.

Fiziksel adsorpsiyon

Adsorbent ile adsorbat madde arasında zayıf Van der Waals etkileşimlerinin olduğu adsorpsiyondur. Düşük sıcaklıklarda meydana gelir ve ortam sıcaklığının artması ile adsorpsiyon azalır. Genel olarak adsorpsiyon ısısı 10 kcal/mol'den azdır. Adsorpsiyon dengesi ekzotermik ve tersinirdir. Fiziksel adsorpsiyon hızlı ve tersinir bir işlemdir. Adsorpsiyonda meydana gelen artış sıcaklığın azalması ile orantılıdır. Fiziksel adsorpsiyon çok tabakalı olabilir (Keyis, 2020).

Kimyasal adsorpsiyon

Adsorbent ile adsorbat arasında kovalent bağ oluşmaktadır. Adsorpsiyon, yüksek sıcaklıklarda meydana gelir ve sıcaklık yükseldikçe adsorpsiyon artar. Adsorpsiyon ısısı 40 kcal/mol değerinden daha büyüktür. Kimyasal adsorpsiyon endotermiktir ve tersinmezdir. Adsorpsiyon hızını aktivasyon enerjisinin büyüklüğü belirler. Adsorbatın basıncındaki artış adsorpsiyon miktarının azalmasına neden olur. Kimyasal adsorpsiyon, adsorbentin tüm yüzeyinde gerçekleşmez. Bu nedenle yüzey örtünmesi en fazla tek tabakalı olabilir ve moleküller yüzey üzerinde hareket etmezler (Strawn, 2021).

Adsorpsiyon prosesini etkileyen etmenler

Adsorbanın (Adsorbentin) özellikleri

Kullanılan adsorbentin geniş yüzey alanına, belirli bir gözenek dağılımına ve hacmine sahip olması istenir. Tanecik boyutu küçük olan adsorbentler tercih edilir. Çünkü bu tür adsorbentlerin yüzey alanları büyük olduğundan adsorpsiyon kapasitesi artmaktadır. Adsorbent miktarı ise, adsorplanacak maddenin çözeltiden uzaklaştırılmasında etkili olan parametredir. Düşük adsorbent miktarlarında, adsorbent başına tutulan kirletici miktarı yüksektir ancak çözelti ortamından giderim verimi düşük olur. Adsorbent miktarının artmasıyla adsorbent kapasitesi azalırken, kirleticinin çözeltiden giderim verimi artar (Topal Canbaz, 2020). Bunun nedeni ise; adsorbent miktarının artmasıyla adsorbat ile etkileşecek yüzey alanının artmasıdır. Adsorbent miktarı belirli bir miktarın üzerinde olursa, partiküllerin topaklaşmaları aktif yüzey alanının ve adsorplanacak miktarının azalmasına neden olacaktır.

Çözücü ile adsorplanan maddenin özellikleri

Bir adsorpsiyonun gerçekleşebilmesi çözünen maddenin çözücüsünden ayrılabilmesi ve adsorbentin gözeneklerine taşınması gerekmektedir. Çözünmüş maddenin hidrofobik özelliğe sahip olması adsorbatın adsorbent yüzeyine adsorplanmasını olumsuz yönde etkilemektedir (Zeybek, 2019).

Sıcaklık

Sıcaklığın adsorpsiyon üzerindeki etkisi reaksiyonun endotermik ya da ekzotermik olmasına bağlıdır. Endotermik adsorpsiyon sıcaklıkla doğru orantılı, ekzotermik adsorpsiyon ise sıcaklık ile ters orantılıdır. Ekzotermik adsorpsiyon reaksiyonlarında Sıcaklık arttıkça adsorpsiyon kapasitesinde düşüş meydana gelmektedir (A. Aslan, 2020).

pH

Ortam pH değeri adsorbent yüzeyindeki merkezlerde hidrojen ve hidroksil iyonlarının etkileşimini doğrudan etkiler. Adsorpsiyonda anyonik iyonların adsorpsiyonu düşük pH değerlerinde meydana gelirken katyonik iyonların adsorpsiyonu ise spesifik pH değerlerinde gerçekleşir. Organik kirletici içeren sulu çözeltilerin adsorpsiyonu düşük pH değerlerinde artış göstermektedir (A. Aslan, 2020).

Karıştırma hızı

Adsorpsiyon prosesine etki eden diğer bir parametre karıştırma hızıdır. Adsorpsiyon prosesi, film veya por difüzyonu ile kontrol edilmektedir. Düşük karıştırma hızında adsorban

çevresindeki sıvı film kalınlığı artar ve film difüzyon hızı adsorpsiyonu kontrol eder. Ortamda yeterli bir karıştırma hızı uygulanırsa, film difüzyonu gözenek difüzyon noktasına doğru hareket eder (Topal Canbaz, 2020).

Kaynak Özeti

Hussin *et al.* (2019), çalışmalarında kombine elektrokoagülasyon ve adsorpsiyon süreçlerini tek bir sistemde birleştirmişlerdir. Bipolar konfigürasyona göre oluşturulan sistemde 7cmx5cmx0.5cm boyutlarında Zn elektrot kullanmışlardır. Akım yoğunluğu 0.484 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 250 rpm, sıcaklık 25°C olan sisteme çeşitli adsorbent dozu 2-4 g/L eklenerek Pb (II) giderimini yüzey yanıt yöntemi (RSM) kullanılarak incelemişlerdir. En yüksek giderim, başlangıç Pb (II) konsantrasyonu 15 mg/L, pH 6.01 ve adsorbent dozu 2.5 g/L değerinde %99.88 olarak elde etmişlerdir. Elde ettikleri verilere göre kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesinin Pb (II) gideriminde alternatif bir yöntem olduğunu belirtmişlerdir (Hussin *et al.* 2019).

Barhoumi *et al.* (2019), çalışmalarında kombine elektrokoagülasyon ve adsorpsiyon prosesi ile hümik asit giderimini sentetik bir deney ortamında araştırmışlardır. 1 L hacimli bir reaktörde 23cmx8cmx0.2cm ebatlarında paralel bağlı iki adet alüminyum (Al) elektrot kullanmışlardır. 10 dakikalık bir reaksiyon zamanı için başlangıç hümik asit konsantrasyonu 70 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm, destek elektrolit konsantrasyonu 150 mg/L (Na₂SO₄), 300 rpm ve pH 4'te çeşitli granüller aktif karbon (GAC) dozu 0-0.7 g/L olan çalışmalar yapılmıştır. Elde edilen sonuçlara göre en yüksek hümik asit giderimini 0.7 g/L adsorbent dozunda 2 dakika zaman sürecinde %94 olarak belirlemişlerdir. Elde ettikleri bu sonuçlara göre kombine elektrokoagülasyon ve adsorpsiyon prosesinin iki dakikalık uygulama sürecindeki giderim verimi, tek başına yürütülen elektrokoagülasyon prosesinin on dakikalık sürecindeki giderim verimi ile aynı bulunması kombine proseslerin etkili bir giderim sağladığını öne sürmüşlerdir (Barhoumi *et al.* 2019).

Nigri *et al.* (2020), çalışmalarında petrol endüstrisi atıksuyundan kombine elektrokoagülasyon ve adsorpsiyon prosesi ile KOİ, kalsiyum ve stronsiyum giderimlerini 1.5 L'lik kesikli bir deney ortamında araştırmışlardır. 15.5cmx12cmx1.5cm ebatlarında monopolar paralel bağlı dört adet alüminyum (Al) plaka elektrot kullanmışlardır. Optimum koşullara göre elde edilen sonuçlar 120 dakika, 7.5 mA/cm² akım yoğunluğunda, 25°C sıcaklığında, 0.5 cm elektrotlar arası mesafe 0.5 cm ve 0.5 g/L adsorbent dozunda elde etmişlerdir. Bu koşullara göre KOİ %52, kalsiyum %88 ve stronsiyum %72 giderim verimiyle uzaklaştırılmıştır. Elde ettikleri bu sonuçların kombine adsorpsiyon ve elektrokoagülasyon prosesinin arıtım süresini kısaltan bir alternatif sunduğunu belirtmişlerdir (Nigri *et al.* 2020).

Liu and He (2020), çalışmalarında, çöp sızıntı suyundan kombine elektrooksidasyon prosesi ile dezenfeksiyon yan ürünlerin giderimlerini Ti/SnO₂ aktif olmayan anot ve bakır/çinko alaşımı (Cu/Zn) katot kullanarak 200 mL'lik çözelti ortamında araştırmışlardır. 20 cm²'lik elektrotlar ile yapılan çalışmalarda optimum koşullara göre elde edilen sonuçlar 4 saatlik elektroliz süresi, 30 mA/cm² akım yoğunluğunda, 25°C sıcaklığında, 2 cm elektrotlar arası mesafe, 35 mM Na₂SO₄, ve 100 rpm karıştırma hızında elde etmişlerdir. Bu koşullara göre dezenfeksiyon yan ürünlerinin % 67.5 giderim verimiyle uzaklaştırılmıştır (X. Liu & He, 2020).

Mukimin *et al.* (2015), Ti/β-PbO₂ anot ve paslanmaz çelik (SS) katot elektrotları kullanılarak tekstil atıksuyundan BOİ₅, KOİ TSS, NH₃, fenol ve H₂S giderimini elektrooksidasyon yöntemi ile araştırmışlardır. Elektrodpozisyon yöntemiyle titanyum elektrot yüzeyine kurşun oksit kaplaması ile elektrot hazırlanmıştır. 100 mL atıksu içeren bir tankta, karıştırma hızının 120 rpm, elektroliz süresinin 2-4 saat, elektrolit konsantrasyonunun 3000-4000 mg/L NaCl, pH (6-9) aralığında çalışmışlardır. Elde edilen optimum değerler 5.6 V, 4000 mg/L NaCl, pH 6, 4 saat elektroliz süresi olarak tespit etmişlerdir. Bu verilere göre; BOİ₅ (96%), KOİ(59%), TSS (91%), NH₃ (74%), fenol (70%), H₂S (82%) oranlarında giderildiğini belirtmişlerdir (Mukimin *et al.* 2015).

Davilla *et al.* (2011), çalışmalarında damıtma tesisinden aldıkları atıksuyun arıtılmasında Taguchi yöntemini uygulamışlardır. Elektrokoagülasyon-elektroflotasyon prosesinin uygulandığı çalışmalarda toplam katıların, bulanıklığın ve toplam organik karbonun (TOC) giderilmesinde optimum koşulları araştırmışlardır. Araştırma sonucunda optimum koşulların demir elektrot, pH 4, akım yoğunluğu 20 mA/cm², 60 ppm H₂O₂ konsantrasyonunda toplam katı %50, bulanıklık %89, toplam organik madde içeriği %25 kimyasal oksijen ihtiyacının (KOİ) % 61 oranında giderildiğini elde etmişlerdir (Davila *et al.* 2011).

Zielinska *et al.* (2020), Polonya'nın kuzey doğusunda bulunan 16 yıllık bir belediye depolama sahasından temin ettikleri stabilize sızıntı suyundan organik bileşiklerin TAK adsorpsiyonu ve bunun ultrafiltrasyon (UF), ince-UF ve Mikrofiltrasyon (MF) gibi membran proseslerle olan kombinasyonları kullanarak giderilmesini araştırmışlardır. Elde ettikleri sonuçlar TAK adsorpsiyonunun sızıntı suyu arıtımında en büyük katkıyı sağladığını belirtmişlerdir. 30 dakikalık deney süresinde optimum adsorbent dozu 3g/L olduğu durumda KOİ %73.1 ve renk %94.4 giderim verimine ulaşmışlardır. TAK + MF, TAK + UF ve TAK + ince UF ile sızıntı suyu arıtım veriminde önemli ölçüde farklılık göstermediğini (KOİ % 87 ve renk % 97) belirtmişlerdir. Uyguladıkları membran proseslerin arıtımdaki etkisini TAK + MF> TAK + UF> TAK + ince-UF şeklinde sıralamışlardır (Zielińska *et al.* 2020).

Ozbey Unal *et al.* (2019), çalışmalarında elektrokoagülasyon (EK) ve elektrooksidasyon (EO) proseslerinin membran performansı ve tıkanması üzerinde etkilerini araştırmışlardır. Elektrokoagülasyon için demir anot ve paslanmaz çelik katot (Fe/SS), elektrooksidasyon için titanyum anot ve paslanmaz çelik katot (Ti/SS) kullanmışlardır. Deneyler iki farklı voltajda (15 ve 30 V), uygulanan voltajın membran filtrelenebilirliği, geçirgen akı ve membran kirlenmesi üzerindeki etkisini gözlemlemişlerdir. Elde ettikleri sonuçlara göre 30 V'ta Ti ve Fe anotlar üzerinde uygulanan elektrik alanı KOİ gideriminde daha etkili olduğunu belirtmişlerdir. Bu koşullarda elektrokoagülasyon ile KOİ giderimi elektrooksidasyondan daha etkili olduğunu gözlemlemişlerdir. Ti anot ise 30 V ve 6 saatlik filtrasyon süresi boyunca oluşan çamuru daha iyi filtrelediğini belirtmişlerdir. Sonuç olarak EO mekanizması, membran kirlenmesinin kontrolünde umut verici sonuçlar gösterdiğini belirtmişlerdir (Unal *et al.* 2019).

Hiew *et al.* (2019), çalışmalarında adsorpsiyon prosesi ile diklorofenak giderimini indirgenmiş grafen oksit (rGO) ile optimum adsorpsiyon koşulları ve bazı adsorpsiyon parametrelerinin (adsorbent dozu, başlangıç konsantrasyonu, karıştırma hızı ve sıcaklık) etkilerini incelemişlerdir. En yüksek diklorofenak adsorpsiyon kapasitesi (596.71 mg/g), 0.25 g/L adsorbent dozunda, 325 mg/L başlangıç konsantrasyonunda, 200 rpm karıştırma hızında ve 30°C sıcaklık değerindeki optimum koşullarda elde etmişlerdir. Adsorpsiyon denge verileri, 0.95 ila 0.98 arasında değişen korelasyon katsayısı (R^2) ile en iyi Freundlich modeline uygun olduğunu belirtmişlerdir. Adsorpsiyon kinetik verileri 0,8467 ila 0,9621 arasında değişen R^2 ile en iyi yalancı-birinci dereceden modelle ilişkilendirmişlerdir (Hiew *et al.* 2019).

Dia *et al.* (2016), çalışmalarında önceden biyo-filtre sistemi ile arıtılmış sızıntı suyunun, elektrokoagülasyon prosesi ile arıtılmasını incelemişlerdir. Anot tipi, akım yoğunluğu ve deney süresinin EK prosesi üzerindeki etkilerini araştırmışlardır. Ayrıca, EK'den önce ve sonra organik maddelerin (hümkik asitler, fulvik asitler ve hidrofilik bileşikler) fraksiyonlarını incelemişlerdir. 20 dakikalık deney sürecinde en iyi KOİ giderim performansları, alüminyum elektrot için %70, demir elektrot için %65 olarak belirtmişlerdir. Bu koşullarda her iki elektrot kullanılarak hümkik asitin (HA), ortamdan giderildiğini belirtmişlerdir. Bununla birlikte, alüminyum elektrotla Fulvik asit %57 ve hidrofilik bileşiklerin %60'ı demir elektrotla Fulvik asit %37 ve hidrofilik bileşiklerin %46'sının giderildiğini belirtmişlerdir.

Li *et al.* (2011), elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan amonyak ($\text{NH}_3\text{-N}$) ve KOİ gideriminin etkilerini kesikli bir sistemde araştırmışlardır. Elektrot türü, akım yoğunluğu, elektroliz süresi, Cl^- konsantrasyonu ve çözeltinin pH'ı gibi parametrelerin giderim verimindeki etkilerini değerlendirmişlerdir. Elde ettikleri sonuçlara göre, demir (Fe) elektrot ile 90 dakikalık proses sürecinde pH 6.4, akım yoğunluğu 4.96 mA/cm², 2319 mg/L Cl^- konsantrasyonunda

KOİ %49.8, amonyak (NH₃-N) %38.6 oranında toplam fosfor (TP) %82.2, BOİ₅ %84.4 ve bulanıklık %69.7 değerlerinde giderildiğini belirtmişlerdir (Xiangdong Li *et al.* 2011).

Mao *et al.* (2018), düzenli depolama sahalarında biriktirilen sızıntı sularının yer altı suyuna sızması ve yer altı suyunda oluşabilen amonyak kaynaklı kirliliğin elektrooksidasyon prosesi ile giderimini araştırmışlardır. Çalışmalarında anot materyalleri olarak titanyum kaplamalı rutenyum (IV) oksit (RuO₂/Ti) ve titanyum kaplamalı kurşun dioksit (PbO₂/Ti) kullanmışlardır. Elde ettikleri sonuçlara göre amonyak gideriminde RuO₂/Ti anotun PbO₂/Ti anottan daha iyi olduğunu belirtmişlerdir. Deneysel çalışmaların ilk dakikalarında doğal olarak oluşan bikarbonatlar, zayıf alkali bir ortam sunarak amonyak giderimini kolaylaştırdığını ileri sürmüşlerdir. 20 mg/L başlangıç konsantrasyonuna göre elde edilen optimum koşullar 15 mA/cm² akım yoğunluğunda, 6 saat deney süresinde, 250 mg/L klorür konsantrasyonunda, 80 mm su seviyesinde, 6 mL/dak akış hızında %70 oranında amonyak gidermiş olduklarını belirtmişlerdir (Mao *et al.* 2018).

Myllymäki *et al.* (2018), kombine elektrokoagülasyon ve adsorpsiyon prosesi ile Finlandiya kömür madeninden temin ettikleri turba kömürü içeren su ortamında toplam organik karbon (TOK) giderimini araştırmışlardır. Elektrokoagülasyonda demir ve alüminyum elektrotlar ile adsorbent olarak aktif karbon kullanmışlardır. Çalışmalarında prosesler şu şekilde uygulanmıştır: adsorpsiyon sonrası elektrokoagülasyon ve elektrokoagülasyon sonrası adsorpsiyon uygulaması. Optimize edilmiş hibrit yöntemle, toplam organik karbon (TOK) içeriği, ilk adsorpsiyon prosesi sonrası elektrokoagülasyon prosesinde alüminyum elektrot kullanılarak %94.4, demir elektrot kullanılarak %94.5 oranında TOK giderildiğini belirtmişlerdir. Elektrokoagülasyon sonrası adsorpsiyon prosesinde ise alüminyum elektrot kullanılarak % 79, demir elektrot kullanılarak %89 oranında TOK giderildiğini belirtmişlerdir (Myllymäki *et al.* 2018).

Demirbas and Kobya (2017), kimyasal koagülasyon (KK) ve elektrokoagülasyon (EK) prosesleri kullanılarak gerçek metal işleme sıvısı atık suyundan KOİ ve TOK arıtma performansları ve işletme maliyetlerini değerlendirmişlerdir. 50-1000 mg/L'lik koagülant dozaj aralığında KOİ ve TOK giderim verimleri alum için % 65–97 ve % 49–81, alüminyum klorür için % 48–96 ve % 38–80, ferrik sülfat için % 43–92 ve %36-76, ferrik klorür için % 55-93 ve % 41-77 olarak elde etmişlerdir. Alüminyum bazlı pıhtılaştırıcıların KOİ ve TOC giderimleri açısından demir bazlı pıhtılaştırıcılardan daha iyi performans gösterdiğini belirtmişlerdir. EK işleminde KOİ ve TOK giderme verimleri Al elektrot için pH 5, 80 A/m² ve 25 dakika %93 ve %80, Fe elektrot için pH 7, 80 A/m² ve 25 dakikada %93 ve %82 olarak belirtmişlerdir.

Optimum kořullarda iřletme maliyetleri sırasıyla Al iin 1,190 \$/m³ ve Fe elektrotlar iin 1,813 \$/m³ olarak hesaplamıřlardır (Demirbas & Koby, 2017).

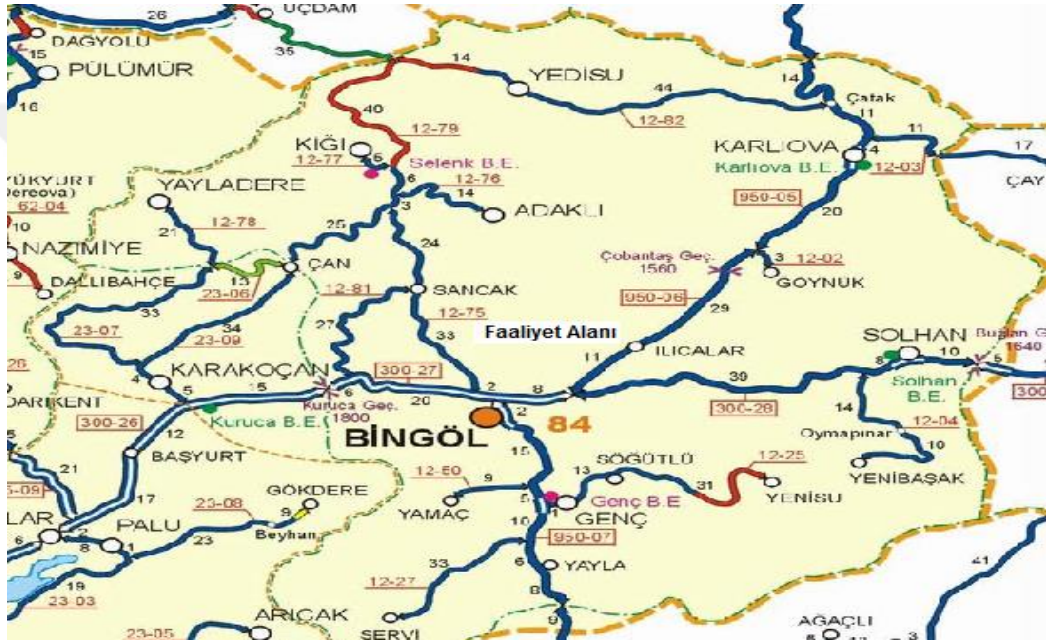


MATERYAL ve METOT

Materyal

Deneysel çalışmalarda kullanılan sızıntı suyu ve karakterizasyonu

Bu çalışmada kullanılan sızıntı suyu Bingöl İli düzenli katı atık depolama tesisinden temin edilmiştir. Şekil 11’de Bingöl düzenli katı atık depo sahasının faaliyet alanı gösterilmiştir.



Şekil 11. Bingöl düzenli katı atık depo sahasının faaliyet alanı

Tesis öncelikli olarak evsel nitelikli katı atıkların bertarafı göz önünde bulundurularak inşa edilmiştir. Tesisin faaliyet alanı Bingöl-Muş yolu istikametinde (ilin doğu yönünde) Merkez ilçe, Beyaz toprak köyü civarında projelendirilerek il merkezine 13 km uzaklıktadır. Tesis, iki aşamalı olarak projelendirilmiş ve her aşama kendi içerisinde üç etaptan oluşmakta ve günlük atık kapasitesi toplamda 831.950 m³ olup Merkez, Genç, Solhan, Ilıcalar, Sancak, Arakonak, Çaytepe ve Servi Belediyeleri tarafından kullanılmaktadır. Proje kapsamında yer alan bu belediyelerin nüfus projeksiyonları yapılarak depo tabanı sızdırmazlık sistemi mineral tabaka ve bunun üzerindeki sentetik geomembran tabakalardan oluşmaktadır. Dolgu sahasındaki sızıntı suyunu drene etmek amacıyla taban izolasyonunun en üst kısmında drenaj tabakası teşkil edilmiştir. Yağış esnasında depo alanına dışarıdan gelen yüzeysel sular sızıntı suyu toplama havuzunda biriktirilmekte ve yüzey suyu toplama hendekleri vasıtasıyla doğaya deşarj edilmektedir. Deneysel çalışmalarda kullanılan sızıntı suyu, laboratuvarında uygulanacak

analizlerden önce bozulmaması için buzdolabında +4°C’de muhafaza edilmiştir. Sızıntı suyunun bazı karakteristik özellikleri Tablo 2’de gösterilmiştir.

Tablo 2. Sızıntı Suyunun Bazı Karakteristik Özellikleri

Parametre	Birim	Değer	Parametre	Birim	Değer
pH		8.35	Alüminyum (Al)	ppm	6,363
İletkenlik	mS/cm	47	Potasyum (K)	ppm	687,9
Toplam Katı madde	mg/L	7700	Kalsiyum (Ca)	ppm	13,188
Toplam Uçucu Katı Madde	mg/L	2871	Titanyum (Ti)	ppm	0,426
Askıda Katı Madde	mg/L	221	Vanadyum (V)	ppm	0,242
Uçucu Askıda Katı Madde	mg/L	35	Krom (Cr)	ppm	0,312
TDS	mg/L	6654	Manganez (Mn)	ppm	0,808
KOİ	mg/L	4175	Demir (Fe)	ppm	3,398
BOİ ₅	mg/L	1650	Kobalt (Co)	ppm	0,106
Klorür	mg/L	2872	Nikel (Ni)	ppm	0,03
BOİ ₅ / KOİ	mg/L	0.4	Rubidyum (Rb)	ppm	0,436
NH ₃ - N	mg/L	2438.7	Stronsiyum (Sr)	ppm	1,053
Bulanıklık	NTU	228	Molibden (Mo)	ppm	0,012
Renk (RES)			Rodyum (Rh)	ppm	0,18
436 nm, R.Yellow RR Gran	cm ⁻¹	1063	Paladyum (Pd)	ppm	2,907
525 nm, R.Red RR Gran	cm ⁻¹	576	Kalay (Sn)	ppm	0,007
620 nm, R.Blue RR Gran	cm ⁻¹	415	Hafniyum (Hf)	ppm	0,222
Lityum (Li)	ppm	0,604	Tantal (Ta)	ppm	1,538
Bor (B)	ppm	4,954	Wolfram (W)	ppm	0,261

Metot

Adsorpsiyon prosesi

Deneysel çalışmaların ilk aşamasında, 45 µm’lik filtre ile filtrelenmiş ve 1/4 oranında seyreltilmiş sızıntı suyundan alınan 400 mL’ lik numuneler, 500 mL’lik erlenlere doldurulmuştur. pH 3, 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerinde sıcaklık 20, 30, 40, 50 ve 60°C, adsorbent dozu 1, 2, 3, 4, 5 g/L ve karıştırma hızı 100, 200, 300 rpm değerlerinde 40 dakikalık uygulama zamanında 1, 3, 5, 10, 15, 20, 25, 30, 35 ve 40 dakikalık örnekleme aralıkları sonunda sızıntı suyundaki KOİ, amonyak ve bulanıklık değerlerindeki giderim verimleri adsorpsiyon prosesi ile belirlenmiştir. Adsorpsiyon deneyleri, altı adet karıştırıcısı bulunan konvensiyonel Daihan marka JT-M6C model jar-test cihazında ve ecs kimya inş. san. ve ltd. şti. firmasından satın alınan kömür bazlı toz aktif karbon (ENCARB, CPW900) kullanılmıştır. Tablo 3 ve Tablo 4’te toz aktif karbona ait temel fiziksel, kimyasal ve karakteristik özellikleri verilmiştir.

Tablo 3. Toz Aktif Karbona Ait Temel Fiziksel ve Kimyasal Özellikler

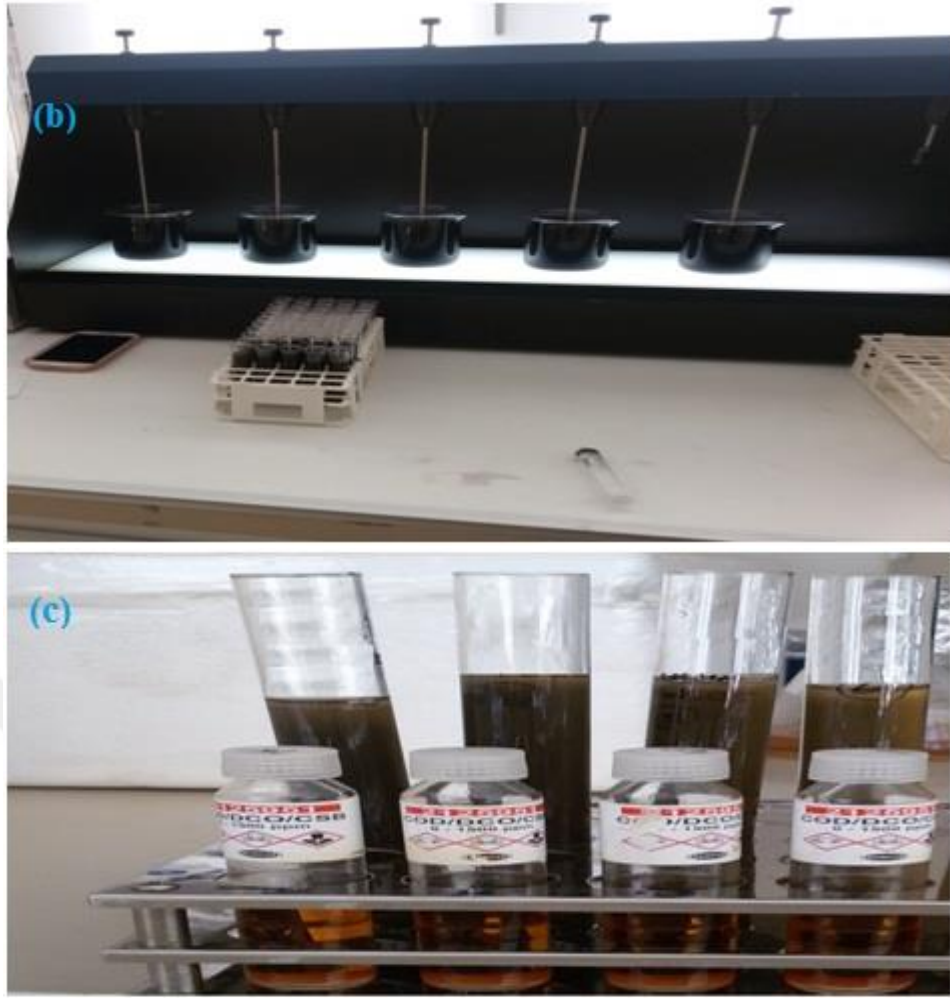
Fiziksel Özellikler		Kimyasal Özellikler	
Görünüm	Toz	Buhar Basıncı	1 mm Hg @ 3586°C
Koku	Karakteristik	Özgül Ağırlık (H₂O=1)	Bilgi yok
Renk	Siyah	Erime/Donma Noktası	3652°C
pH (Seyreltik çözelti)	4 -11	Kaynama Noktası	Uygulanamaz
Hacimsel Yoğunluk	~250 - 550 kg / m ³	Parlama Noktası	Uygulanamaz
Çözünürlük:	Suda çözünmez	Kendiliğinden Tutuşma Sıcaklığı	> 400°C
Viskozite	Uygulanamaz	Bozunma Sıcaklığı	Bilgi yok.
Buhar Yoğunluğu	Uygulanamaz	Dağılım Katsayısı	< 0

Tablo 4. Toz Aktif Karbona Ait Karakteristik Özellikler

Karakteristik Özellikler	Değerler
Partikül Boyutu (min. % 90)	200 mesh
İyodin no (mg / g)	> 900
Yüzey Alanı (m² / g)	900 - 950
Görünür Yoğunluk (kg / m³)	500
Nem (%)	< 5
pH	8 - 10
Kül miktarı (%)	< 18

Şekil 12’de adsorpsiyon prosesinin uygulanışı gösterilmiştir.

**Şekil 12.** Adsorpsiyon Prosesi: (a) Ham atıksu, (b) adsorpsiyon prosesine numunelerin hazırlanması ve (c) Adsorpsiyon prosesi çıkış suyu (devam)



Şekil 12. Adsorpsiyon Prosesi: (a) Ham atıksu, (b) adsorpsiyon prosesine numunelerin hazırlanması ve (c) Adsorpsiyon süreci çıkış suyu

Elektrokimyasal proses uygulamaları

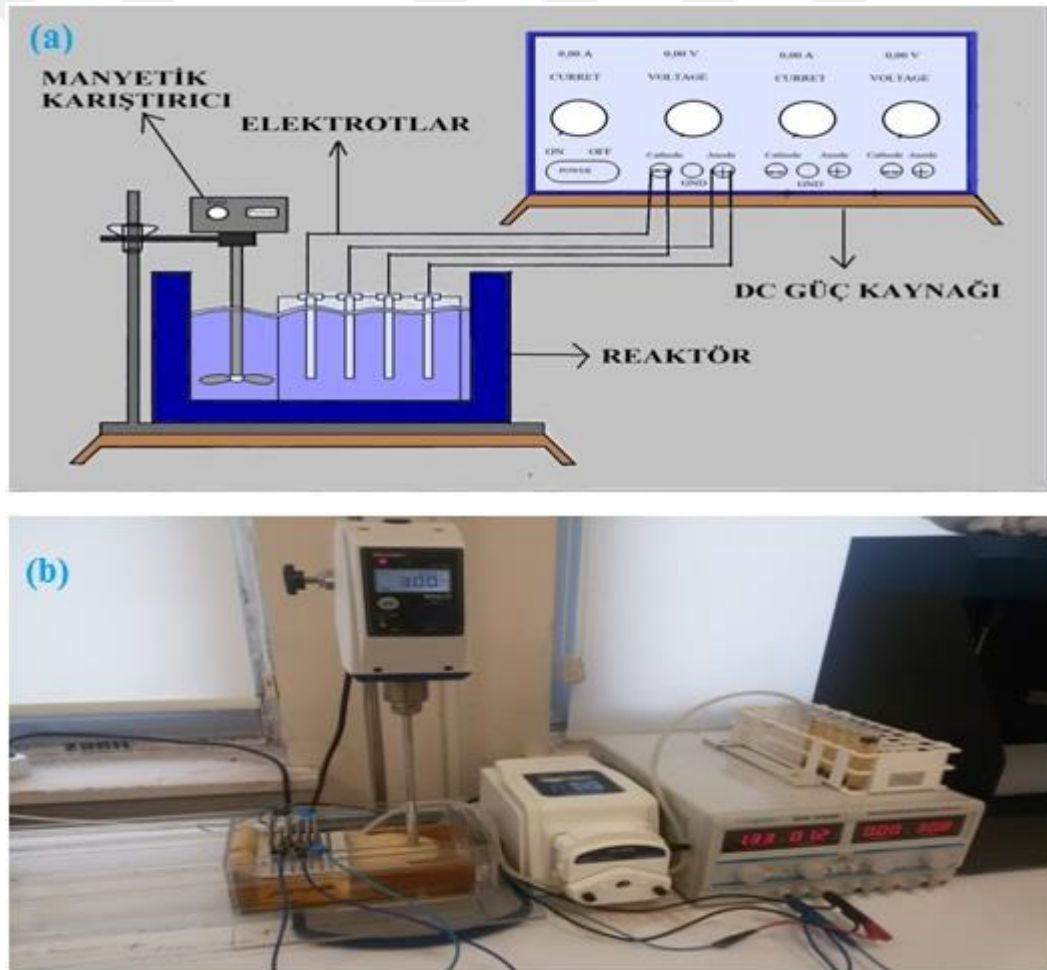
Elektrokimyasal prosesler, elektrokoagülasyon, kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon ve kombine elektrooksidasyon-adsorpsiyon proseslerinden oluşmaktadır. Proseslerde 20cmx8cmx10cm boyutlarında pleksiglastan yapılmış bir reaktör kullanılmıştır. Elektrotlar, monopolar paralel bir düzeneğe üç anot ve üç katot olacak şekilde dizilmiştir. Tam karışımın sağlanması için üstten reaktör içerisine daldırılan Daihan marka HS-30D model bir mekanik karıştırıcı vasıtasıyla reaksiyon süresi boyunca karıştırılmıştır. Elektrokimyasal proseslerde, filtrelenmiş ve 1/4 oranında seyreltilmiş ham sızıntı suyundan alınan 400 mL' lik numuneler, reaktör içerisine konulmuştur. Deneylerde, akım yoğunluğu 15, 20, 25 mA/cm², pH 3, 5, 7, 8.35, 9.5 olan, sıcaklık 20, 30, 40, 50, 60°C, karıştırma hızı 100, 200, 300 rpm değerlerinde, elektrotlar arası mesafe 1, 1.5 ve 2 cm, elektrolit konsantrasyonu 1 mM, 5 mM ve 10 mM Na₂SO₄ değerlerine göre KOİ, amonyak azotu ve bulanıklık değerlerinin giderim verimleri değerleri 1, 3, 5, 10, 15, 20, 25 30, 35 ve 40 dakikalık örnekleme aralıkları sonunda

üst duru suyu 45 µm'lik filtre kâğıdı ile süzildükten KOİ, amonyak ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir.

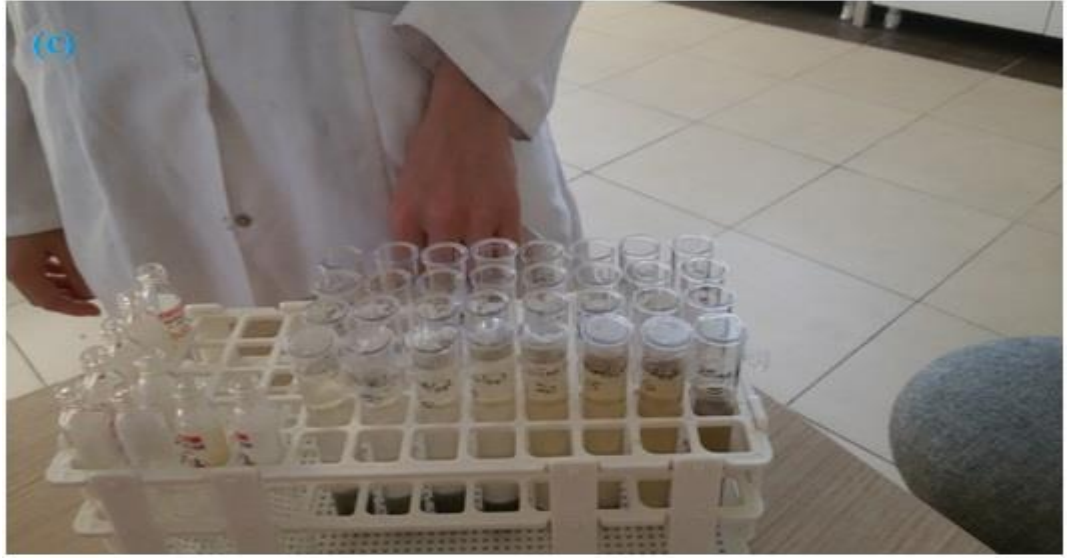
Elektrokoagülasyon ve kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon proseslerinin işleyişleri

Elektrokoagülasyon ve kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon proseslerinde, anot materyali olarak alüminyum katot olarak paslanmaz çelikten oluşan boyutları 6cmx5cmx3mm olan plaka elektrotlar kullanılmıştır. Deneylerden önce her iki elektrot ince zımpara ile temizlendikten sonra 1 M nitrik asit içeren çözeltiye daldırılmıştır. Bu uygulamadan sonra önce musluk suyu ardından saf su ile temizlendikten sonra 105°C'de kurutulmuştur (Myllymäki *et al.* 2018).

Şekil 13'te elektrokimyasal proseslere ait çalışma şekli gösterilmiştir.



Şekil 13. Elektrokoagülasyon prosesi: (a) Elektrokimyasal proseslerin şematik gösterimi, (b) Elektrokoagülasyon prosesinin uygulanışı ve (c) Elektrokoagülasyon prosesinin çıkış suyu (devam)



Şekil 13. Elektrokoagülasyon prosesi: (a) Elektrokimyasal proseslerin şematik gösterimi, (b) Elektrokoagülasyon prosesinin uygulanışı ve (c) Elektrokoagülasyon prosesinin çıkış suyu

Şekil 14’te elektrooksidasyon prosesine ait çalışma şekli gösterilmiştir.



Şekil 14. Elektrooksidasyon prosesi: (a) Elektrooksidasyon prosesinin uygulanışı, (b) Elektrooksidasyon prosesinin çıkış suyu

Kombine elektrooksidasyon-adsorpsiyon proseslerinin işleyişi

Kombine elektrooksidasyon-adsorpsiyon prosesi çalışmalarında bugüne kadar sızıntı suyu arıtımında çok az rastlanan platin ailesinden yüksek katalitik aktivitesi ve korozyona karşı dayanıklılığının yanında güçlü bir hidrojen adsorbenti olmasının yanı sıra aşırı sıcaklık ve akım yoğunluğuna karşı dirençli olan titanyum metalinin elektrolitik metotlarla kaplanmasıyla elde edilen Ti/PdO-CoO elektrotu kullanılmıştır.

Böylece sızıntı suyunun elektrooksidasyon ile arıtımına yönelik çalışmalarda bugüne kadar yapılmış fiziko-kimyasal çalışmalarla kıyaslanabilmesi açısından yeni bir ışık oluşturması çevresel ve teknik olarak güvenilir olması bakımından akabinde tamamlayıcı bir proses olarak uygunluğu bu tez çalışması ile araştırılmıştır. Çalışmalarda, titanyum (TiO_2 , Ti (%82), O (%16.3), C (% 1.4), Fe (%0.2), Al (% 0.2)) ve boyutları 6cmx5cmx3mm olan plaka elektrotlar kullanılmıştır. Toz aktif karbon ile muamelede grafenbiotech nano teknoloji mühendislik san. ve tic. ltd. şti'den satın alınan sentezleme yöntemiyle hazırlanmış nanopartiküler grafen oksitin toz formu kullanılmıştır. Anot materyali, elektrolitik kaplama yöntemiyle kaplanmış ve Ti/PdO-CoO elde edilmiş ve katot materyali olarak paslanmaz çelik kullanılmıştır. Elektrotlar, monopolar paralel bir düzenek ile kurulan üç anot ve üç katottan oluşan bir sistemle sürdürülmüştür.

Anot materyalinin kaplanması

Deneyisel çalışmalarda anot (TiO_2) materyalinin kaplanması re-anodizasyon metoduyla yapılmıştır. Elektrotlar, iki elektrot yöntemi uygulanarak kaplanmıştır. Kaplama banyosunun hazırlanışında paladyum klorür (PdCl_2) ve kobalt klorür (CoCl_2) kimyasalları kullanılmıştır. Bu tuz formlarının kaplama banyosundaki miktarları kütlece yüzde ($\text{Pd}(100-x)\text{Co}_x$) ile hesaplanmıştır (Noce *et al.* 2006). Kurulan çalışma düzeneğinde çalışma elektrotlarının (anot ve katot) her ikisi de aynı metalden olacak şekilde yerleştirilmiştir. Kaplama işlemi dört basamaklı bir sistemden oluşmaktadır.

Deneyler, 500 mL'lik bir beherde yapılmış ve kaplama kalınlığı Faraday yasalarına göre elektrot yüzeyinde 1–3 μm olacak şekilde hesaplanmıştır. Çalışma sonucunda kaplanan elektrotlardan 1 cm^2 'lik örnekler alınarak SEM-EDX analizi HiTAKhi marka HD3500 model cihaz ile XRD analizi Rigaku marka miniflex 600 model cihaz ile yapılmıştır.

Titanyum elektrotun temizlenmesi

Ti plakaları ultra saf su ve aseton içeren çözeltide beş dakika boyunca Isolab marka ultrasonik su banyosunda temizlenmiştir. Ardından, %40 NaOH içinde 30 dakika bekletilen elektrotlar, %15 oksalik asit içinde 90°C'de 180 dakika süreyle TiO_2 giderilene kadar muamele

edilmiştir. Bu işlemden sonra elektrotlar ultra saf su ile durulanmış ve daha sonra kullanılmak üzere etanol içinde saklanmıştır (Wang *et al.* 2020).

Anodizasyon işlemi

Bu işlem, 0.8 mol/L oksalik asit çözeltisinde 90-100 mA/cm² akımda ve 25°C sıcaklıkta beş dakika olarak uygulanmıştır. Böylece titanyum filmin üzerinde iletken gözenekli bir titanyum dioksit katmanı oluşmuştur. Yüzeyde oluşan film daha sonra geçiş metallerinin elektrodpozisyon yoluyla birleştirilmesi için kullanılmıştır.

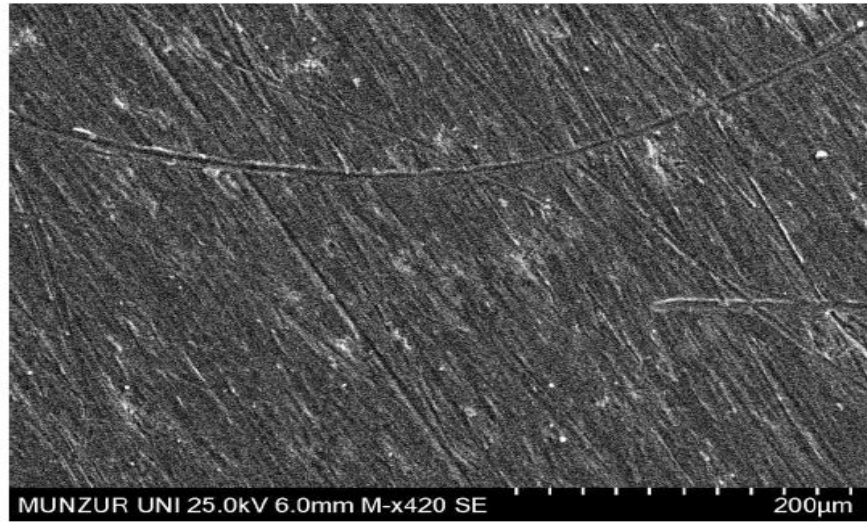
Geçiş metallerinin gözenekli titanyum dioksit içine elektrodpozisyonu

Bu işlemde elektrodpozisyon 75-90 mA/cm² akım yoğunluğunda, banyo sıcaklığı 40°C ve pH 2 olacak şekilde kaplama banyosu hazırlanmıştır. İşlem süresi beş dakika, anot ve katot arasındaki mesafe 1.5 cm ve karıştırma hızı 250 rpm olarak seçilmiştir. Su banyosu ısıtıcılı manyetik karıştırıcı üzerine konulmuştur. Bu işlemde akımın yüksek olması geçiş elementlerinin kaplama tabakasına yapışmasını artırmak için düşük pH değerinin seçilmesi ise yüksek pH değerlerinin banyo içeriğinin stabilitesini bozmasından ileri gelmektedir (Gracien *et al.* 2007).

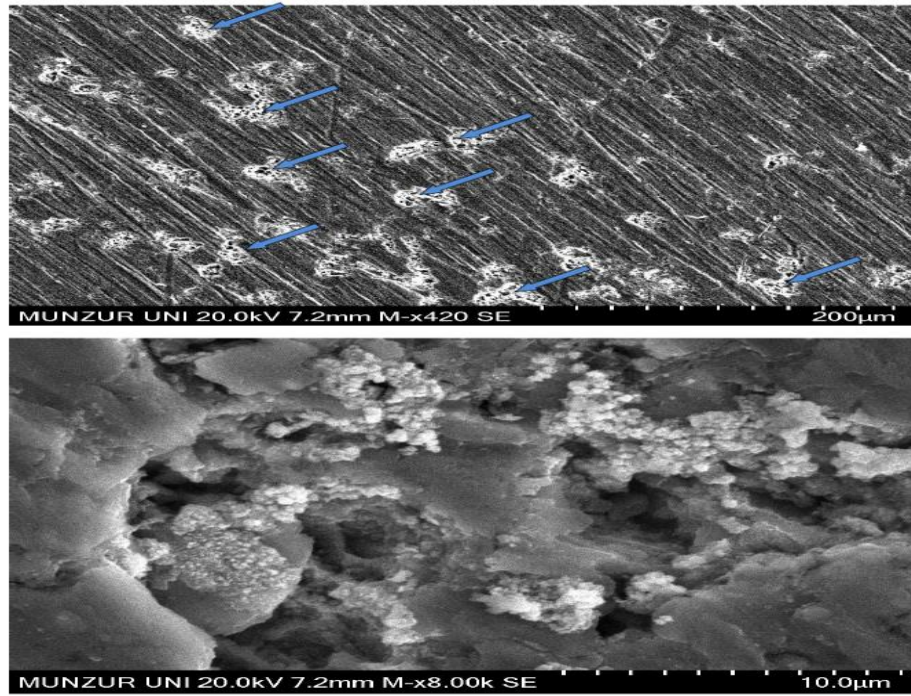
Banyo içeriğinde bulunan diğer kimyasallar 7 mM PdCl₂, 1 mM CoCl₂, 1.68 M NH₄Cl, 0.02 M EDTA ve 10 g/L borik asittir. EDTA şelatlaştırıcı olarak, Borik asit ise doygunluğu artırmak için kullanılmıştır (J. Li *et al.* 2016).

Elektrodun re-anodizasyonu

Bu işlem, 1 mol/L'lik H₂SO₄ çözeltisinde 15-20 mA/cm² akım yoğunluğunda ve 25°C sıcaklıkta beş dakika olarak uygulanmıştır. Bu işlemden sonra elektrot saf su ile durulanarak açık ortamda kurutulduktan sonra kül fırınında 350°C'de içinden azot gazı geçirilen bir ortamda 10 dakika boyunca kalsinasyon ile metal üzerinden tuz ve metal oksit formlarının termal ayrışması sağlanmıştır (Hummelgård *et al.* 2013). Bu işlemlerin sonunda SEM analizi ile kaplanmış ve kaplanmamış elektrotların yüzeyel görüntüleri alınmış ve deneysel çalışmalar için hazır hale getirilmiştir. Uygulanan işlemler sonrasında paladyum oksit ve kobalt oksitle kaplanmış titanyum elektrotun kaplama öncesi ve sonrası görüntüleri Şekil 15 ve Şekil 16'da verilmiştir.



Şekil 15. Kaplanmamış titanyum elektrotun SEM görüntüsü



Şekil 16. Re-anodizasyon yöntemiyle kaplanmış Ti/PdO-CoO elektrotun SEM görüntüleri

Şekil 15'teki SEM mikrograflarına göre Pd ve Co moleküllerinin pH 2'deki kaplama banyosu koşullarında Ti elektrot yüzeyinde yüksek oranda adsorbe edildiğini göstermektedir (Gracien *et al.* 2007). Bu asidik koşullarda ortama verilen H^+ iyonlarının yüksek olması elektrodpozisyonu hızlandırdığı söylenebilir (Noce *et al.* 2006). Bu durumda elektrot yüzeyindeki gözenekler, foto katalitik reaksiyon için bir adsorpsiyon merkezi görür ve foto katalitik aktivitenin ilerlemesi için faydalıdır (Gracien *et al.* 2007). Meydana gelen PdO-CoO filmi küresel yapılıdır (Hummelgård *et al.* 2013) ve kristal yapıları oldukça küçüktür (Noce *et al.* 2006).

Grafen oksitin aktif karbonla muamele edilmesi

Grafen belirli bir atom kalınlığına sahip iki boyutlu karbon bazlı bir nano malzemedir. Grafen oksit (GO) ise grafenin oksitlenmiş şeklidir. Hidroksil, karboksil ve epoksi grupları gibi çeşitli fonksiyonel gruplardan oluşur. Böylece, çok hidrofiliktir ve suda şişebilir. Ayrıca oksijen içeren fonksiyonel gruplar sayesinde yüksek negatif yük yoğunluğuna sahiptir.

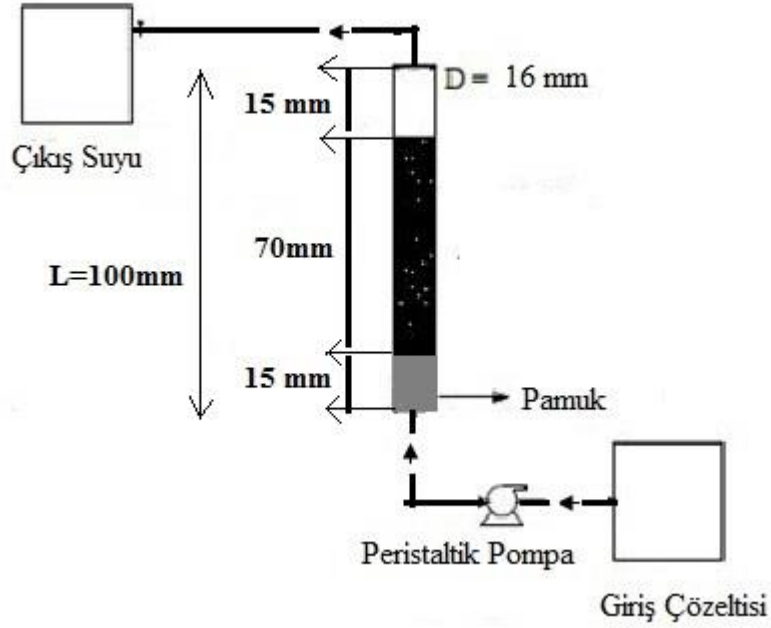
GO, metal katyonlar veya pozitif yüklü organik moleküller ile iyon değişimine izin veren iyonlaşabilir karboksil grupları nedeniyle zayıf asit katyon değişim reçinesi görevi görebilir. Bu fonksiyonel gruplar metal iyonları, polimerler ve biyomoleküller gibi pozitif yüklü türlerle etkileşime girebilir (Othman *et al.* 2018). Deneysel çalışmalarda grafenbiotech nano teknoloji mühendislik san. ve tic. ltd. şti'den satın alınan sentezleme yöntemiyle hazırlanmış nanopartiküller grafen oksit toz formu satın alınmış ve toz aktif karbonla basit bir kolon düzeneği kurularak muamele edilmiştir. İşlem sırası şöyledir.

Grafen oksit çözeltisinin hazırlanması

250 mL'lik beherler içerisinde toz halindeki indirgenmiş ve indirgenmemiş grafen oksit nanopartiküllerinden 50 mg/L'lik bir çözelti hazırlanmıştır. Bu çözeltiler üç saat boyunca ısıtıcılı karıştırıcılar ile $45^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$ ' de ve 500 rpm hızında karıştırılarak suda yeterince çözünebilmesi için beklenmiştir.

Çözeltilerin kolondan geçirilmesi

Hazırlananmış çözeltiler giriş kısmı alt çıkış kısmı üstten olacak şekilde boyutları çapı 16 mm ve uzunluğu 100 mm olan dibi yuvarlak bir deney tüpünden faydalanılarak sabit yataklı bir kolon sisteminden geçirilmiştir. Sabit yataklı kolon reaktör sistemin şematik görüntüsü Şekil 17'de verilmiştir.



Şekil 17. Sabit yataklı kolon reaktör sistemin şematik görüntüsü

Çözeltilerin tüp içerisine verilmesinde peristaltik pompadan yararlanılmıştır. Deney tüpü içerisine bir miktar İzocam konulmuş ve üzerine 2 g toz aktif karbon eklenmiştir. Toz aktif karbon materyali kolon içerisine yerleştirildikten sonra kolondan saf su geçirilerek kolon doymun hale getirilmiştir. Daha sonra peristaltik pompa ile akış hızı 10 mL/dk olan indirgenmiş ve indirgenmemiş grafen oksit çözeltileri, kolonun alt kısmından verilmiş üst kısmından durusu akışı sağlanıncaya kadar işleme devam edilmiştir. İşlem sonrasında pamuk üzerinde kalan kısım 80°C’ de bir gece boyunca etüvde kurutulmuş ve ağırlıkları ölçülmüştür.

Bu işlem sonrasında 2 g kuru toz aktif karbonla muamele edilen GO için işlem sonrasında 2.332 g kuru adsorbent, indirgenmiş grafen oksit için işlem sonrasında 2.415 g kuru adsorbent elde edilmiştir. Bu adsorbentler, manyetik adsorbent adı altında kombine adsorpsiyon elektro oksidasyon prosesinde kullanılmıştır.

Analizler

Fiziksel analizler

Sızıntı suyu karakteristiğine etki eden pH, iletkenlik, toplam çözünmüş katı madde (TDS) parametreleri hem arazi hem de laboratuvar ortamlarında tespitinin yapılması başlangıç koşullarının laboratuvar koşullarında deneysel çalışmalarda sağlamak amacıyla Thermo Scientific Orion Versa Star pH/ISE/Conductivity/DO/RDO/Temperature Benchtop multiparametre cihazı ile aletsel ölçüldükten sonra sızıntı suyu toplama havuzundan alınan numunelerin laboratuvara taşınmasında dış ortamdan herhangi bir kirletici faktör bulaşmaması

iin kahve renkli numune ŐiŐelerine doldurularak +4°C’de numune taŐıma antalarında muhafaza edilmiŐtir.

Katı madde tayinleri

Toplam katı madde tayini, darası alınmıŐ porselen kroze bir kapta belirli bir hacimde alınan numune 103°C’ de etüvde buharlaŐtırılır. Müteakiben porselen kroze etüvden alınır, desikatörde soğutulur ve tartılır. Yapılan iki tartım farkı toplam katı madde miktarını verir. Uucu askıda katı madde (UAKM) tayini ise mevcut organik madde miktarının tespit edilebilmesi amacıyla askıda katı madde tayini yapılmıŐ filtre kalıntısının 550°C’de yakma iŐlemi esnasında ağırlık kaybı ile tespit edilir (Association, 2005).

Bulanıklık tayini

Aqualytic marka AL250T-IR model türbidimetre alınan örneklerin bulanıklık analizinde kullanılmıŐtır.

0, 20, 200, 800 NTU bulanıklık deęerlerine sahip kalibrasyon özeltileri ile cihaz 4 noktalı olarak kalibre edilmiŐtir. Analizler, örneklerden cihazdaki numune ŐiŐesine 10 mL konularak gerekleŐtirilmiŐtir. Deęerler NTU olarak ifade edilmiŐtir (Association, 2005).

Renk tayini

Yapılan bu araŐtırmada renk tayini, renklilik sayısı (RES) metodu kullanılarak gerekleŐtirilmiŐtir. Atıksu numunesi 45 µm’lik membran filtreden geirildikten sonra filtrat 25.4 mm kalınlığında cam malzemeden üretilmiŐ UV küvetine konularak Shimadzu marka UV 1800 UV-VIS spektrofotometrede 436 nm, 525 nm ve 620 nm dalga boylarında deiyonize suya karŐı absorbensları belirlenmiŐtir. Elde edilen absorbens deęerlerinden renklilik sayısı m⁻¹ olarak ifade edilmiŐtir.

Kimyasal analizler

KOİ deneyi

KOİ deneyinde standart olarak, SM 5220.D Kapalı Reflux Kolorimetrik yöntem uygulanmıŐtır. Bu yöntem, ısıtma bloklu KOİ tespiti ile KOİ deęeri 0-2000 mg O₂/L arasında deęiŐen konsantrasyonlar iin kimyasal oksijen ihtiyacının belirlenmesini saęlar. Okside olmuŐ standartların renklerini ölçerek (renk, artan KOİ deęerlerine göre portakaldan yeŐile deęiŐecek biimde) konsantrasyonu bilinmeyen örnekler iin kullanılabilen bir kalibrasyon eęrisi hazırlanmıŐtır.

Deneyde kullanılan KOİ parçalama tüpleri 16mm x100mm boyutundadır. KOİ tüpleri ve kapakları kirliliği önlemek amacıyla önceden %20'lik H₂SO₄ çözeltisiyle yıkanmıştır. Parçalama tüplerine 3,5 mL sülfürik asit reaktifi eklenir ve çalkalanır. Ardından 1.5 mL K₂Cr₂O₇ çözeltisinden eklenir. Karıştırıldıktan sonra 2.5 mL numune veya 2,5 mL'ye seyreltilmiş numune eklenip karıştırılır. Tüpler 150°C'deki ısıtıcı blokla yerleştirilir. Karışımın reaksiyona girebilmesi için 2 saat beklenir.

2 saatlik bir reaksiyon sonunda ısıtıcıdan çıkarılan örnekler, oda sıcaklığına gelene kadar soğumaya bırakılmıştır. 600 nm'de absorbans değerleri okunup ve konsantrasyon hesaplamaları yapılmıştır (Association, 2005).

Hesaplama

Spektrofotometre ile ölçüm yapıldığında;

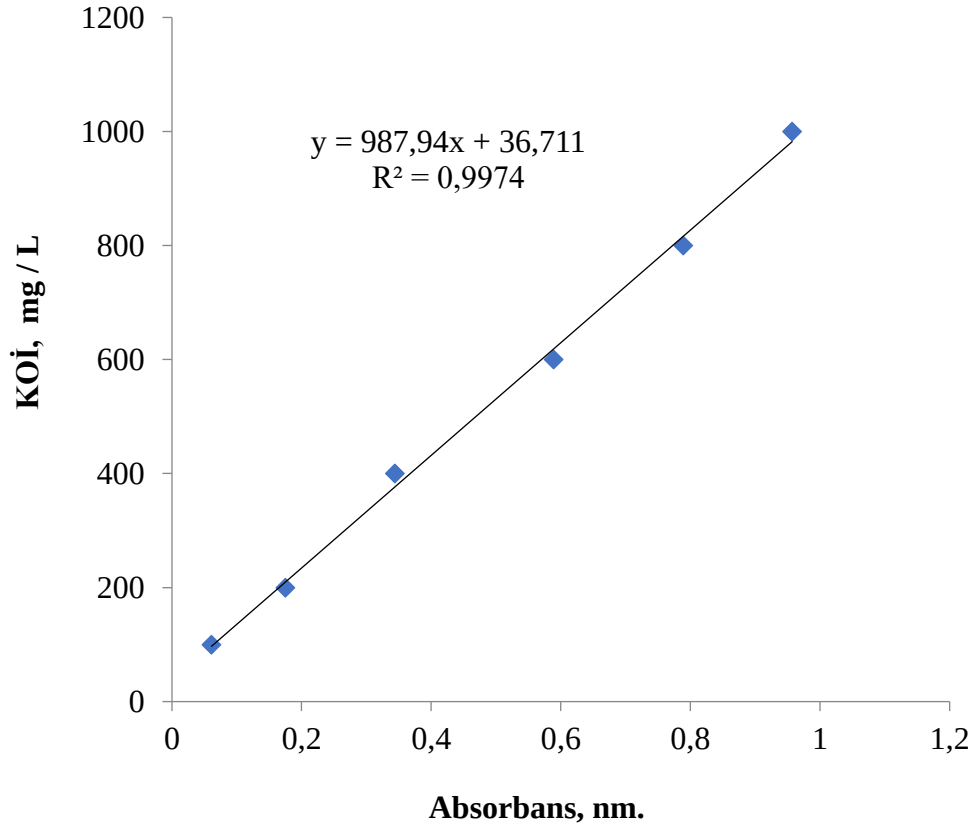
$$KOİ = Ax + B \quad (11)$$

Burada,

x: Absorbans değeri,

A, B: Kalibrasyon doğrusu katsayıları.

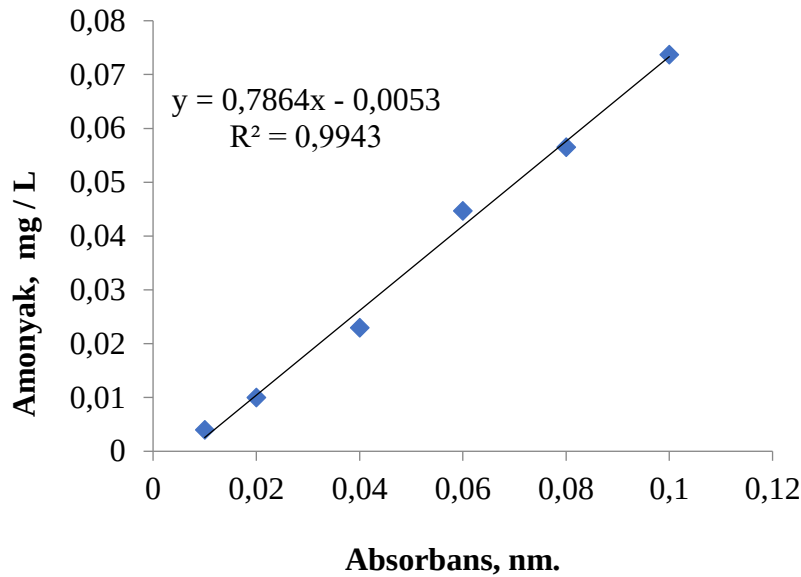
KOİ analizi için kalibrasyon eğrisi Şekil 18'de verilmiştir.



Şekil 18. KOİ analizi için kalibrasyon eğrisi

Amonyak azotu (NH₃-N) tayini

Amonyak Azotu (NH₃-N) Tayini standart metot 4500-F Fenat metodu kullanılarak yapılmıştır. Fenat metodu, amonyak konsantrasyonunun 0.02–2.0 mg NH₃-N/L aralığında çok düşük konsantrasyonlarda uygulanabilen, spektrofotometrik bir yöntemdir. Deneysel çalışmada 50 mL’lik bir erlenmayere 25 mL atıksu numunesi konulduktan sonra 1 mL sıvı fenol ($\geq 99\%$) çözeltisi, 1 mL sodyum nitroprussidin çözeltisi ve 2.5 mL parçalama reaktifi eklenerek karıştırılmıştır. Erlenmayerin etrafı parafilm bantla kapatılmış numunede renk-oluşumu için oda sıcaklığında (22-27°C) ve yoğun ışık altında 1 saat bekletilmiştir. Kalibrasyon eğrisinin oluşturulmasında standart çözeltiler hazırlanmıştır. Bunun için stok amonyum çözeltisinden 0.01, 0.02, 0.04, 0.08 ve 0.1 mg/L’lik çözeltiler hazırlanmıştır. Bu işlemlerin akabinde numune ve standart çözeltilerin 640 nm’deki absorbans ve konsantrasyon değerlerinden oluşturulacak kalibrasyon eğrisinden elde edilen denklem vasıtasıyla numunenin–konsantrasyonu tespit edilmiştir (Association, 2005). Amonyak analizi için kalibrasyon eğrisi Şekil 19’da verilmiştir.



Şekil 19. Amonyak analizi için kalibrasyon eğrisi

Klorür (Cl⁻) tayini

Klorür tayini, Arjantometrik yöntem olarak bilinen standart metot 4500-ClB metodu ile tayin edilmiştir. Sızıntı suyu numunesinden alınan 25 mL’lik numunenin pH değeri 7-10 arasında olacak şekilde ayarlanmıştır. Sülfid veya tiyosülfidlerin girişiminin engellenmesi için 1 ml H₂O₂, numune renginin yüksek olması halinde 3 mL Al(OH)₃ çözeltisi eklenmiştir. Aynı işlemler şahit numune için tekrarlanmıştır. Bu işlemlerin ardından 1’er mL K₂CrO₄ eklenerek karıştırılan numuneler 0.0141 N AgNO₃ ile sarı-pembemsi renk oluşuncaya kadar titre edilmiştir. Dönüm noktasına kadar harcanan miktar tespit edilerek şahit numune ile harcanan miktarlar arasındaki fark ile numunenin konsantrasyonu hesaplanmıştır (Association, 2005).

Elementel analizler

Sızıntı suyunun elementel analizleri Bingöl Üniversitesi Merkezi Laboratuvar Uygulama ve Araştırma Merkezinde ICP-MS Nex ION 2000 C (Perkin Elmer Inc., USA) cihazı ile ölçülmüştür.

FTIR analizleri

Toz aktif karbon, grafen oksit ve toz aktif karbon ile muamele edilmiş grafen oksitin deneylerden önce ve adsorpsiyon, kombine adsorpsiyon ve elektrokoagülasyon, kombine adsorpsiyon ve elektrooksidasyon prosesleri sonunda alınan numuneler 24 saat 103°C'de kurutulduktan sonra 0,5 gr ağırlığındaki örnekler FTIR (Fourier Transform Infrared) analizi uygulanmıştır. Bu analizler, Fırat Üniversitesi Merkez Laboratuvarında Thermo Scientific marka Nicolet "IS" 5 model cihazı ile gerçekleştirilmiştir.

SEM-EDX analizleri

Adsorpsiyon, kombine adsorpsiyon ve elektrokoagülasyon, kombine adsorpsiyon ve elektrooksidasyon proseslerinin sonrasında süzülen numunelerinden 24 saat 103°C'de kurutulduktan sonra 2 gr ağırlığındaki toz aktif karbon, grafen oksit ve toz aktif karbon ile muamele edilmiş grafen oksit numuneleri Fırat Üniversitesi Merkez Laboratuvarında Zeiss marka EVA MA10 model SEM-EDX cihazı ile ölçülmüştür.

Zeta potansiyeli analizleri

Adsorpsiyon, kombine adsorpsiyon ve elektrokoagülasyon, kombine adsorpsiyon ve elektrooksidasyon proseslerinin sonrasında süzülen 100 mL numunelerin analizleri, Fırat Üniversitesi Merkez Laboratuvarında PSS NICOMP marka 380 ZLS model cihaz ile belirlenmiştir.

Biyolojik analizler

Beş günlük biyolojik oksijen ihtiyacı (BOİ₅) tayini

BOİ kavramı, aerobik koşullarda organik karbon kaynağı içeren bir suyun bakterilerin biyolojik reaksiyonlarla stabilize edebilmeleri için gereken oksijen miktarı olmasının yanı sıra atıksularda kirlenme potansiyelini temsil eden bir parametredir. Tez çalışması kapsamında BOİ₅ tayini Orbeco marka Oxi 700 model cihaz ile aletsel olarak ölçülmüştür.

Matematiksel Hesaplamalar

Adsorpsiyon modellemesi

Adsorpsiyon modellemesi, adsorbentın adsorbat giderim verimini tahmin etmede kullanılır. Adsorpsiyon izotermi, kinetik ve termodinamik parametreler kesikli adsorpsiyon uygulamaları ile gerçekleştirilmiştir.

Adsorpsiyon dengesi

Adsorpsiyon dengesi, bir adsorpsiyon prosesinde belirli bir sıcaklık ve adsorbat arasındaki ilişkiyi açıklar. Denge adsorpsiyon izotermi matematiksel olarak şu şekilde ifade edilir (Zeybek, 2019).

$$q = f(C, T) \quad (12)$$

$$q = f(C), \quad T = \text{sabit} \quad (13)$$

Denge durumunda ise;

$$q_{eq} = f(C_{eq}), \quad T = \text{sabit} \quad (14)$$

Bir adsorpsiyon prosesinde sisteme giren ve sistemden çıkanlar arasında kütle dengesi kurulduğunda eşitlik 15 elde edilir.

$$V_L (C_0 - C_{eq}) = m_a (q_{eq} - q_0) \quad (15)$$

Sistemde $t=0$ anında adsorbent yüklenmediğinde $q_0=0$ olacak ve denklem eşitlik (16) gibi olacaktır.

$$q_{eq} = \frac{V_L}{m_a} (C_0 - C_{eq}) \quad (16)$$

Kesikli adsorpsiyon deneylerinde giderim verimi hesaplamasında eşitlik 17 kullanılmıştır.

$$\text{Giderim Verimi, \%} = \frac{(C_0 - C_e)}{C_0} \times 100 \quad (17)$$

Burada;

C_0 : Başlangıç konsantrasyonu (mg/L),

C_{eq} : Adsorpsiyondan sonra çözeltide dengede bulunan maddenin konsantrasyonu (mg/L),

q_{eq} : Birim adsorbent miktarı başına dengede adsorplanan madde miktarı (mg/g),

V_L : Çözeltinin hacmini (L),

m_a : Adsorbent miktarını (g)

T : Sıcaklığı ifade etmektedir.

Adsorpsiyon izotermi

Sabit bir sıcaklıkta denge kurulduktan sonra çözültide kalan madde konsantrasyonuna karşı, birim adsorbent ağırlığında adsorplanan madde miktarı arasında ilişkiye adsorpsiyon izotermi denir (Karakuş, 2011). Adsorpsiyon izotermi, bir maddenin aktif karbon tarafından ne kadar adsorplanabileceğine ve sıcaklığa bağlılığı hakkında bilgi verir (Orbak, 2009). Bu çalışmada; Langmuir, Freundlich, Temkin ve Dubinin-Raduskevich (D–R) gibi izotermi incelenmiştir. İzotermi ile ilgili kısaca bilgi verilmiş ve izotermi ile ilgili parametreleri hesaplamalarda Lineerize edilmiş eşitlikler kullanılmıştır.

Langmuir izotermi

Langmuir izotermine göre, adsorbent yüzeyinde sabit sayıda, aynı enerji düzeyinde homojen aktif merkezler mevcuttur. Adsorplanan maddeler, adsorbent yüzeyinde tek tabaka olarak adlandırılan doygun bir tabaka meydana getirirler. Langmuir adsorpsiyon dengesi dinamik olup yüzeye adsorplanmış adsorbatlar birbirleriyle etkileşim halindedirler. Langmuir eşitliği (18)' de verilmiştir.

$$\frac{1}{q_e} = \frac{1}{bK} \frac{1}{C_e} + \frac{1}{b} \quad (18)$$

1/C_e' ye karşı 1/q_e grafik edilirse doğrunun eğiminden 1/bK, 1/q_e eksenini kestiği noktadan ise 1/b değeri belirlenir.

q_e (mg/g) değeri dengede birim adsorbent miktarı başına adsorplanan madde miktarını; C_e (mg/L) dengedeki adsorbat konsantrasyonunu; b (mg/g) ve K (mg/L) sırası ile adsorpsiyon kapasitesi ve enerjisine yönelik Langmuir sabitleridir. Adsorpsiyonun elverişliliğini bulmak için boyutsuz R_L (dağılma) sabiti hesaplanır ve bu sabitin 0 ile 1 arasında değerler alması elverişlilik durumunun sağlandığına işaret eder. R_L birimsizdir ve eşitlik (19) ile ifade edilir (Keyis, 2020; Yaşar Eynur, n.d.).

$$R_L = \frac{1}{1 + b C_0} \quad (19)$$

Tablo 5. R_L Değerleri ve İzoterm Tipleri

R _L değeri	İzoterm Tipi
R _L > 1	Elverişli olmayan
0 < R _L < 1	İstemli adsorpsiyon
R _L = 1	Lineer
R _L = 0	Tersinmez

Freundlich izotermi

Herbert Max Finlay Freundlich homojen olmayan katı yüzeylerinde meydana gelen fiziksel bir adsorpsiyon için izoterm eşitliği üretmiştir (Freundlich, 1906). Freundlich izoterminin lineerize edilmiş denklemi eşitlik 20 ile gösterilmiştir.

$$\log q_e = \log K_f + \left(\frac{1}{n} \right) \log C_e \quad (20)$$

$\log C_e$ 'ye karşı $\log q_e$ değerleri grafik edilirse elde edilen doğrunun eğiminden $1/n$, $\log q_e$ eksenini kestiği noktadan ise $\log K_f$ değeri bulunur.

q_e (mg/g) değeri dengede birim adsorbent miktarı başına adsorplanan madde miktarını; C_e (mg/L) adsorbatın sıvı fazda denge konsantrasyonunu; K_f (mg/g) ve n (mg/L) Freundlich sabitlerini göstermektedir (Dinibütün Katip, 2016; Zeybek, 2019).

Temkin izotermi

Adsorbentin her bir parçasının farklı adsorpsiyon enerjisi ile karakterize edildiği model Temkin izotermidir (Temkin, 1940). Temkin izotermi, daha çok katı elektrolitik yüzeylerde meydana gelen adsorpsiyona uyum gösteren bir modeldir. Birbiriyle etkileşim halinde bulunan adsorbent yüzeylerinin birçok parçadan meydana geldiği ve her bir parça kendi içerisinde homojen bir yapıya sahip olup Langmuir izotermi karakteristiğini yansıtan bir model olduğu kabul edilmektedir. Bu izoterm eşitlik 21 ile ifade edilmektedir.

$$q_e = \frac{RT}{b_T} \ln(A_T C_e) \quad (21)$$

Temkin izoterminde RT/b_T yerine B yazılarak, eşitlik (22)'deki lineerize edilmiş denklem elde edilir.

$$q_e = B \times \ln A_T + B \times \ln C_e \quad (22)$$

$\ln C_e$ değerlerine karşı q_e değerleri grafik edilirse doğrunun eğiminden B , q_e eksenini kestiği noktadan ise $\ln A_T$ değeri belirlenir.

Yukarıdaki eşitli 22'de,

B , adsorpsiyon ısıyla ilgili Temkin izoterm sabiti (J/mol);

A_T , Temkin izoterm sabiti (L/g);

b_T , Temkin izoterm sabiti;

R , ideal gaz sabiti (8.314 J/mol K);

T ise K cinsinden sıcaklık değeridir (Elmas, 2014).

Dubinin-Radushkevich (D–R) izoterminin

Dubinin-Radushkevich, Polonyi eğrisinin mikro gözenek hacimlerin adsorpsiyon potansiyeline bağlı olarak değişiminin bir Gauss dağılımı olduğunu ifade ederek adsorpsiyon potansiyeli (ϵ) ile ilişkili deneysel bir eşitlik ortaya koymuştur (Dubinin, 1947). Adsorpsiyon enerjisini belirlemede D-R izoterminden yararlanılır. Adsorpsiyon enerjisi D-R izoterminin eğiminden yararlanılarak belirlenir. Bu enerji değerinin büyüklüğü, adsorpsiyon mekanizmasının türü ile ilgili bilgi sağlamaktadır (Rieman & Walton, 2013). D-R izoterminin, 1 mol adsorbatın adsorban tarafından adsorplanması sonucunda açığa çıkan enerji olarak ifade edilmektedir. Freundlich izoterminin alternatif bir türüdür (Elmas, 2014). D-R izoterminin lineerize edilmiş eşitlik 23 ile ifade edilir.

$$\ln q_e = \ln X'_m - K'\epsilon \quad (23)$$

Adsorpsiyonun fiziksel veya kimyasal özelliği ile ilgili bilgi veren adsorpsiyon enerjisi (E ; kJ/mol), eşitlik 24 ile belirlenir.

$$E = \frac{1}{\sqrt{2}B_{DR}} \quad (24)$$

B_{DR} : İzoterm sabitidir.

Dubinin-Radushkevich sabiti (ϵ), eşitlik 25 ile belirlenir.

$$\epsilon = RT \ln \left[1 + \frac{1}{C_e} \right] \quad (25)$$

ϵ = Polanyi potansiyeli;

R : Gaz sabiti (8.314 J/mol K);

T : Kelvin cinsinden sıcaklık;

C_e : Dengeki adsorbat konsantrasyonu (mg/L);

X'_m adsorpsiyon kapasitesi (mg/g);

K' adsorpsiyon enerjisi sabiti (mol²/ kJ²).

ϵ^2 değerlerine karşı $\ln q_e$ değerleri grafik edilirse doğrunun eğiminden K' , $\ln q_e$ eksenini kestiği noktadan $\ln X'_m$ değeri belirlenir (Zeybek, 2019).

Adsorpsiyon termodinamiği

Bir adsorpsiyon prosesinde entalpi değişimi, sabit basınç altında meydana gelen bir tepkimenin adsorpladığı ısı miktarı olarak ifade edilir. Bu değişim tepkimeye giren ve ürünlerin sabit koşullardaki entalpi değerlerine bağlıdır. Standart entalpi (ΔH°) değerinin pozitif olması

adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğunu belirtmektedir. Standart entalpi (ΔH°) değerinin negatif olması adsorpsiyon prosesinin ekzotermik bir proses olduğunu göstermektedir. Standart koşullarda, bir adsorpsiyon prosesinde Standart Gibbs enerjisi (ΔG°) ve standart entropi değişimi (ΔS°) şöyle ifade edilmektedir.

$$\Delta G^\circ = -RT \ln K_c \quad (26)$$

$$\Delta G^\circ = \Delta H^\circ - T\Delta S^\circ \quad (27)$$

$$\ln K_c = -\frac{\Delta H_{ads}^\circ}{R} \left(\frac{1}{T} \right) + \frac{\Delta S_{ads}^\circ}{R} \quad (28)$$

$\Delta G^\circ < 0$ değerlerinde adsorpsiyon prosesinin kendiliğinden meydana geldiği söylenebilir. ΔH° ve ΔS° değerleri Van't Hoft eşitliği kullanılarak belirlenir. K_c , (C_{ads}/C_e) oranı olan adsorpsiyon denge sabiti, R , gaz sabiti, T mutlak sıcaklıktır. Farklı sıcaklıklarda yapılan adsorpsiyon deneylerinde; ($1/T$) değerlerine karşı $\ln K_c$ değerleri grafik edilirse doğrunun eğiminden ΔH_{ads}° ve kesim noktasından ise ΔS_{ads}° değerleri belirlenir (Karakuş, 2011; Khandaker *et al.* 2020).

Adsorpsiyon kinetiği

Adsorpsiyon sürecinde üç ana parametre anahtar rol oynamaktadır. Bunlardan birincisi giderim verimi yüzdesidir (% Ads.).

İkincisi belirli bir t anında adsorbentin birim kütlesi başına adsorbe edilmiş miktar aynı zamanda adsorpsiyon kapasitesi olarak da ifade edilebilen q_t (mg/g) ve son olarak dengedeki adsorpsiyon kapasitesi q_e (mg/g) değerleridir (Makrygianni *et al.* 2019). Bunlar arasındaki bağıntı şu şekildedir.

$$\% \text{ Ads.} = \frac{(C_0 - C_e)}{C_0} \times 100 \quad (29)$$

$$q_t = \frac{(C_0 - C_t)}{m} \times V \quad (30)$$

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)}{m} \times V \quad (31)$$

Burada;

C_0 : Başlangıçtaki adsorbat konsantrasyonu (mg/L),

C_t : Herhangi bir zamandaki adsorbat konsantrasyonu (mg/L),

C_e : Dengedeki adsorbat konsantrasyonu (mg/L),

m : Adsorbent miktarı (gram),

V : Adsorpsiyon prosesindeki sızıntı suyu hacmi (litre, L).

Adsorpsiyon kinetiği, adsorpsiyon hızına etki eden basamakların belirlenmesinde oldukça önemlidir. Adsorpsiyonda elde edilen verilerin kinetiğini araştırmak için denklik bağıntıları kullanılmaktadır. Çözelti ortamında gerçekleştirilen süreçlerde en yaygın kullanılan teoremler; yalancı birinci mertebe (Lagergren, 1898), yalancı ikinci mertebe (Ho & McKay, 1999) ve parçacık içi difüzyon modeli (Weber Jr & Morris, 1963) dir.

Yalancı birinci mertebe kinetiği

Bu kinetik türü, hızlı gerçekleşen katı/sıvı sistemlerin adsorpsiyonu için Lagergren tarafından formüle edilmiştir. Eşitlik şu şekildedir.

$$\ln (q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t \quad (32)$$

q_e : Dengedeki adsorpsiyon kapasitesi (mg/g),

q_t : adsorban yüzeyinde herhangi bir t anında adsorplanmış adsorbat miktarı (mg/g),

k_1 : Hız sabiti değeri (1/dk),

t : Zaman (dk).

$\ln (q_e - q_t)$ 'ye karşı t grafiği çizildiğinde negatif eğimli bir doğruyu verecektir. Eğimden k_1 ve ordinatı kestiği noktadan q_e bulunabilir (Karakuş, 2011; Tongur, 2020).

Yalancı ikinci mertebe kinetiği

Ho ve McKay tarafından geliştirilen bu model, adsorbanın adsorplama kapasitesinin zamanla değişimini ifade etmektedir. Bu model eşitlik 33 ile gösterilmiştir.

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \quad (33)$$

Eşitlik 33'de;

k_2 : (g/mg.dk) olarak yalancı ikinci mertebe hız sabiti.

t 'ye karşı t/q_t değerleri grafik edilirse doğrunun eğiminden q_e değeri, ordinatı kestiği noktadan ise k_2 değeri belirlenir (Sarpaşar, 2019).

Parçacık içi difüzyon kinetiği

Kinetik sonuçların yalancı 1. ve 2. mertebe eşitlikler ile açıklanamadığı durumlarda parçacık içi difüzyon modeli kullanılır. Bu model, eşitlik 34 ile verilmiştir.

$$q_t = k_{id} t^{1/2} + C \quad (34)$$

Burada;

k_{id} : Parçacık içi difüzyon sabiti ($\text{mg/g.dk}^{1/2}$),

$t^{1/2}$: zaman ($\text{dk}^{(1/2)}$),

q_t : t zamanda adsorplanan madde miktarı (mg/g),

C: Sınır tabakası kalınlığıdır. Sınır tabakasının kalınlığı C değeri büyüklüğü ile orantılıdır. $t^{1/2}$ değerlerine karşı q_t değerleri grafik edilir. Eğim değerinden k_{id} hız sabiti, doğrunun ordinatı kestiği noktadan ise C sabiti elde edilir (McKay *et al.* 1980).

Elektrokimyasal Proseslerde İşletme Maliyeti ve Kinetik Hesaplamalar

Elektrokimyasal proseslerden elde edilen veriler aşağıda verilen eşitlikler kullanılarak değerlendirilmiştir. Yüzde KOİ giderimi (Y, %), başlangıç konsantrasyonu (C_0 , mg/L) ve nihai KOİ (C, mg/L) konsantrasyonlarından elde edilmiştir.

$$\% Y = \frac{(C_0 - C)}{C_0} \times 100 \quad (35)$$

Bir elektrokimyasal proseste anotların çözünerek çözeltiye geçen miktarı Faraday Kanunu'na göre aşağıda verilen denklemler ile hesaplanmıştır.

$$C_{\text{enerji}} = \frac{U \times I \times t}{V} \quad (36)$$

Bu eşitlikte;

C_{enerji} : Enerji tüketimi, (kWh/m^3),

U: Voltaj (Volt),

I: Akım şiddeti (amper),

t: Zaman (saat),

V: Atıksu hacmidir (m^3).

Elektrot tüketimi eşitlik 37 ile hesaplanmıştır.

$$C_{\text{elektrot}} = \frac{i \times t \times M_w}{z \times F \times V} \quad (37)$$

Bu eşitlikte;

M_w : Kullanılan anodun kütle ağırlığı ($M_w, \text{Al}=26.98 \text{ g/mol}$, $M_w, \text{Ti}=79.87 \text{ g/mol}$),

z: Anodun kimyasal ekivalent değeri veya reaksiyonda transfer edilen elektron sayısı ($z_{\text{Al}}=3$) ve ($z_{\text{Ti}}=4$),

F: Faraday sabiti ($96487, \text{C/mol.e}^-$),

C_{elektrot} : reaktöründeki çözünen Al veya Ti metal elektrot miktarıdır (kg/m^3) (Demirbas & Kobyas, 2017).

$$UED = \frac{I \times \int_0^t U_x dt}{1000 \times V \times C_0 \times (Y_t|100)} \quad (38)$$

Bu eşitlikte;

UED: Birim enerji tüketimi (kWh/kg.KOİ),

U: Voltaj (Volt),

I: Akım şiddeti (amper),

t: Zaman (saat),

V: Atıksu hacmi (m³),

C₀: Başlangıç KOİ konsantrasyonu (kg/m³),

Y_t: t anındaki giderim verimidir (%).

Elektriksel tüketim maliyeti elektrik enerjisi ve tüketilen anot materyali dikkate alınarak hesaplanır.

$$EOC = EEC + MC = UED \times EEP + MC \quad (39)$$

Bu eşitlikte;

EOC: elektriksel tüketim maliyeti (\$/kg-KOİ),

EEC: elektrik enerjisi tüketimi (\$/kg-KOİ),

MC: tüketilen elektrot malzemesinin maliyeti (\$/kg-KOİ),

UED: birim enerji tüketimi (kWh/kg-KOİ),

EEP: elektrik enerjisi fiyatıdır (\$/kWh).

$$MC = \frac{I \times t \times A}{n \times F} \times \frac{AMP}{V \times C_0 \times (Y_t|100)} \quad (40)$$

Bu eşitlikte;

AMP: anot malzemesi fiyatıdır (\$/kg)

Kombine Prosesler ile İlgili Kinetik Çalışmalar

Bu tez çalışmasında, elektrokoagülasyon, elektrooksidasyon ve bunların kombinasyonundan oluşan deneysel çalışmalar, adsorpsiyon kinetik formüllerinden faydalanarak değerlendirilmiştir. Kombine proseslerin kinetiği:

$$\frac{-dC}{dt} = k \times C \times C_{ads} \times I_{amper} \quad (41)$$

Bu eşitlikte;

C: KOİ konsantrasyonu (kg/m³),

C_{ads}: sistemde bulunan adsorbanların konsantrasyonudur (kg/m³)

I: akım (amper)

Yukarıdaki eşitlikte C_{ads} ve akım şiddeti sabittir, yani değişmez bundan dolayı bu iki sabitin çarpımında yine bir sabittir. Dolayısı ile $kxC_{ads} \times I$ amper $\times C$ çarpımında $kxC_{ads} \times I$ amper çarpımı yine bir sabit olur. Bu çarpıma k' deriz. ve eşitlik şu şekilde olur:

$$-\frac{dC}{dt} = k'xC \quad (42)$$

Böylece k' yalancı birinci merteye reaksiyon sabiti olur.

Eşitlik 42 integre edilirse;

$$\ln\left(\frac{C}{C_0}\right) = -k'x t \quad (43)$$

Elde edilir.

Bu eşitlikte

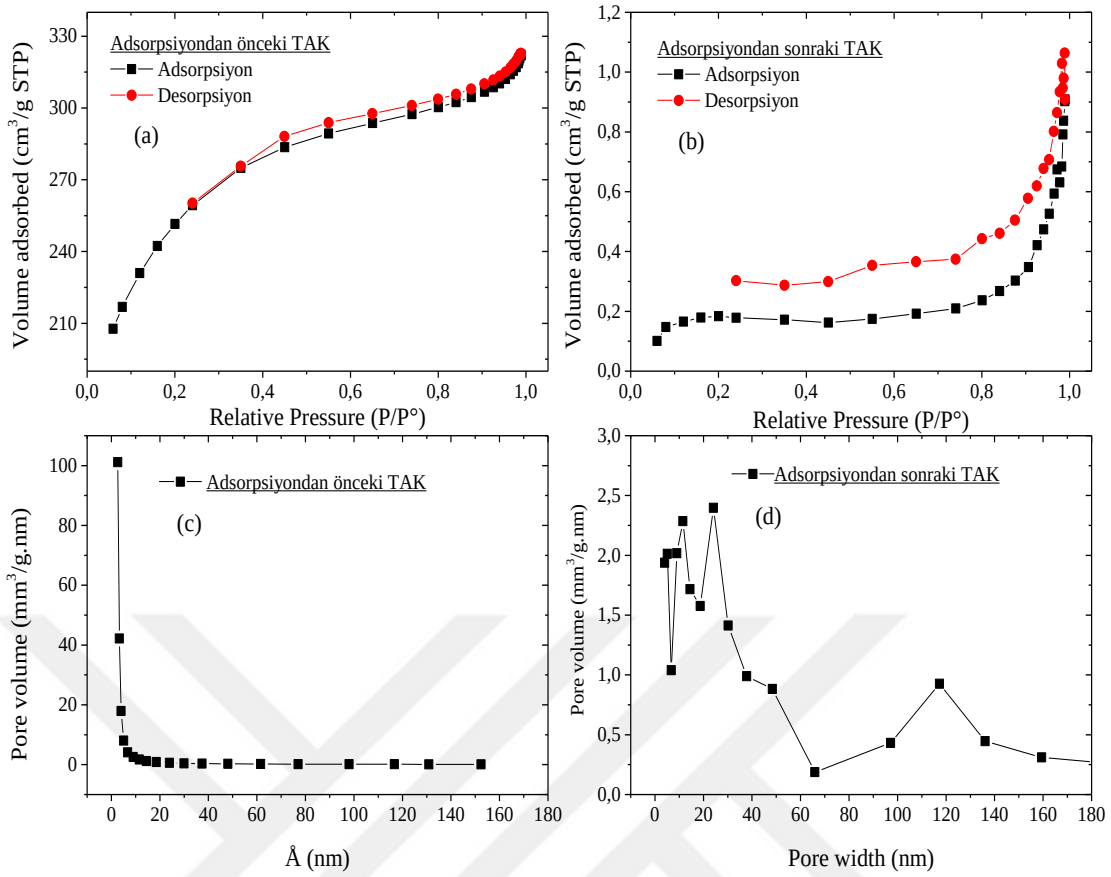
k' : Yalancı Birinci Mertebe hız sabitidir (dk^{-1}) ve $\ln (C/C_0)$ 'ın zamana karşı çizilen grafiği ile elde edilir (Secula *et al.* 2012).

ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA

TAK Adsorpsiyonu Prosesi İle Sızıntı Suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklığın Giderimine Deneysel Parametrelerin Etkisinin İncelenmesi

TAK partiküllerinin BET yüzey alanı, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM görüntüleri

Şekil 20 (a, b) incelendiğinde rölatif (bağıl) basıncın artması ile adsorplanan gaz hacmi artmış ve rölatif basınç değeri 0.99 olduğu zaman adsorplanan gaz hacmi maksimum değere ulaşmıştır. Rölatif basınç ekseninin sağına doğru gittikçe adsorplanan N₂ gazı hacminin basıncın veya konsantrasyondaki artış miktarının bir fonksiyonu olarak nasıl değişeceği görülmektedir. Daha sonra rölatif basıncın 1'e yaklaşmasından dolayı gaz basıncı ne kadar artırılırsa artırılсын adsorplanan gaz hacmi değişmeyip sabit kalmıştır. Şekil 20 (a) incelendiğinde adsorpsiyon mekanizması diğer adsorpsiyon türlerine benzemediğinden adsorpsiyonun Tip I adsorpsiyon izotermi olduğu kabul edilmiştir. Tip I izoterminde adsorpsiyon çoğunlukla mikroporlarda kemisorpsiyon olarak meydana gelmektedir. Bu durumda adsorplanan madde adsorbentteki mikroporların ve çok az sayıda mezoporların yüzeyine güçlü bir şekilde bağlanıp adsorbent yüzeyinde adsorbatı barındıracak mikroporlar kalmadığından adsorpsiyon makroporlarda meydana gelmemektedir (Z. Chen *et al.* 2021; Gong *et al.* 2022; Koyuncu & Kul, 2020). TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderildikten sonra kirleticilerle tükenmiş TAK partiküllerinin adsorpsiyon ve desorpsiyon izotermi Şekil 20 (b)'de verilmiştir. Bu şekil incelendiğinde rölatif basınç değerinin artması ile adsorplanan gaz hacmi artmış ancak adsorpsiyondan sonra adsorbent yüzeyindeki adsorplanan gaz hacmi oldukça azalmıştır. Şekil 20 (b) incelendiğinde bu adsorpsiyon ve desorpsiyon izoterminin Tip II adsorpsiyona uyduğu kabul edilmiştir (Gong *et al.* 2022; F. Liu *et al.* 2021). Bu tür adsorpsiyonda adsorpsiyon eğrisi sigmoidal olup oluşacak izoterm eğrileri hem gözeneksiz hem de makro gözenekli adsorbentlerde fiziksel soğurma şeklinde meydana gelmektedir. Adsorpsiyon prosesinden sonra kirletici parametrelerin TAK partikülleri yüzeyine adsorplandıktan sonra adsorbentte mikroporların tamamen ve mezaporların kısmen tükendiği Şekil 20 (c, d)'den görülmektedir. Arta kalan mezoporlar ve makroporlarda ise por genişliğinden dolayı Şekil 20 (c, d)'de görüldüğü gibi gaz adsorpsiyonu gerçekleşmemiştir.



Şekil 20. 373 K sıcaklığında adsorpsiyondan önce ve sonra TAK partiküllerine ait N₂ adsorption/desorption izotermi (a, b) ve adsorbent por boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (c, d).

Tip I izotermi adsorbent tarafından adsorbe edilen partiküllerinin adsorbent maddenin yüzeyinde tek bir tabaka oluşturduğu anlamına gelmektedir. Tek tabaka adsorbatlar tarafından soğurulduktan sonra diğer partiküller maddeler önceki partiküllerin yüzeyine tutunur ve bu durum çoklu katmanların oluşmasına neden olur. Şekil 20 (b) incelendiğinde, TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderildikten sonra adsorpsiyonun devam edebilmesi için tükenmiş TAK yüzeyinde her hangi bir mikropor kalmamıştır.

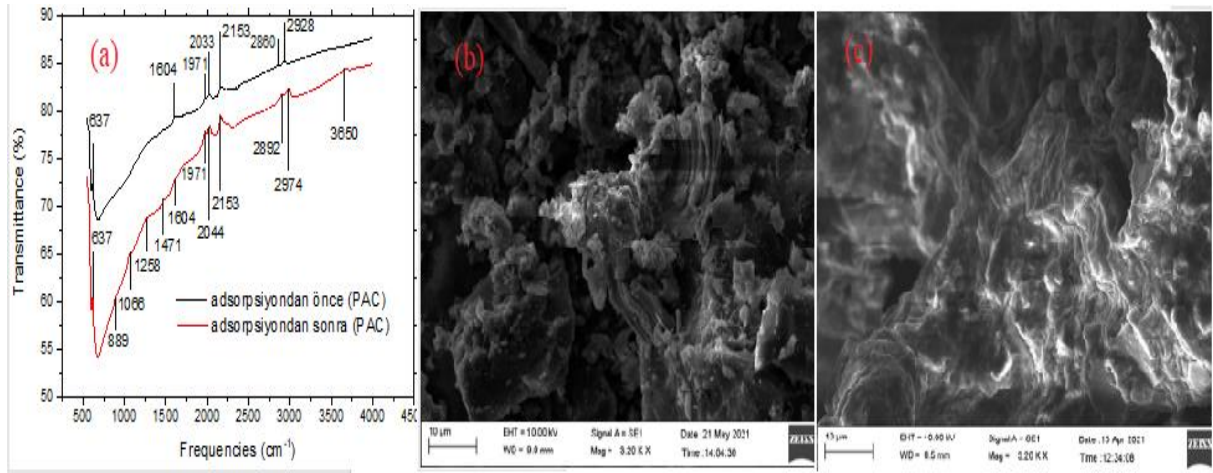
TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra partiküllerin yüzey alanı ve por hacimlerini belirlemek için Brunauer-Emmett-Teller (BET) yüzey alanı analizleri gerçekleştirilmiştir. Adsorpsiyondan önce ve sonra TAK partiküllerinin BET yüzey alanı ve por hacmi sırasıyla (887 m² g⁻¹ ve 0.494 cm³ g⁻¹) ve (0.76 m² g⁻¹ ve 0.00065 cm³ g⁻¹) olarak belirlenmiştir. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra ortalama por çapı ise sırasıyla 2.2 ve 6.4 nm olarak hesaplanmıştır. Adsorpsiyondan sonra partiküllerin yüzey alanı ve hacimlerinde meydana gelen azalma ve ortalama por çapındaki artış KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin adsorpsiyonla uzaklaştırıldığını göstermektedir.

Kesikli adsorpsiyon çalışmalarında kullanılan TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra por boyutu dağılımlarını belirlemek için Barrett, Joyner and Halenda (BJH) yöntemi uygulanıp Şekil 20 (c, d)'de gösterilmiştir. Şekil 20 (c, d), TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonraki por çapları ile partiküllerin gram başına mm^3 olarak hacimleri arasındaki ilişkiyi göstermektedir. Şekil 20 (c) incelendiğinde adsorpsiyondan önce TAK partiküllerinin por çapları 2.6-152.4 nm arasında değiştiği görülmektedir. Şekil 20 (c) incelendiğinde gram başına en yüksek hacme sahip partikül boyutları ile por hacimleri sırası ile (2.6 nm, 101.1 mm^3), (3.26 nm, 42.2 mm^3) ve (4.0 nm, 17.9 mm^3) dir. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ortalama por çapı 2.23 nm olarak belirlenmiştir. TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin bir kısmı adsorpsiyonla uzaklaştırıldıktan sonra partiküllerin gram başına mm^3 olarak hacimleri arasındaki ilişki Şekil 20 (d) 'verilmiştir. Adsorpsiyondan sonra partiküllerin por çapı ile gram başına sahip oldukları hacimleri sırası ile (4-182.3 nm) ve (0.0193-0.0027 ($\text{mm}^3/\text{g nm}$)) olarak belirlenmiştir. Adsorpsiyondan sonra TAK partiküllerinin ortalama çapı 6.4 nm olarak hesaplanmıştır. TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık gideriminden sonra mikroporların tamamı ve mezoporların bir kısmı kaybolmuş ve adsorpsiyondan sonra por çapı artmıştır. Bu durum kirleticilerin sızıntı suyundan uzaklaştırıldığı anlamına gelmektedir.

Bu çalışmada TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık gideriminde adsorpsiyona katılan aktif grupları belirlemek için FTIR spektrumları adsorpsiyondan önce ve sonra analiz edilmiştir. 500-4000 cm^{-1} dalga boyu aralığında TAK partiküllerine ait FTIR spektrumları Şekil 21 (a)'de verilmiştir.

Şekil 21 (a)'daki titreşim grupları şu şekilde belirlenmiştir; 637 cm^{-1} deki bantta RHC=CH_2 vinil yapısında CH_2 salınımı, 1604 cm^{-1} deki bantta imin titreşim grubunda konjüge halkalı yapılarda C=N gerilmesi, 1971 cm^{-1} frekansında, $>\text{C=C=C}<$ allen titreşim grubunda elektron çeken gruplara bağlı faz dışı gerilme titreşimi, 2033 cm^{-1} frekansında titreşen $\text{R}_1\text{R}_2\text{C=N=N}$ (R alkil ya da hidrojen grubu) grubu diazo bileşikler olup faz dışı gerilme, 2153 cm^{-1} frekansında titreşen grup ketenler $>\text{C=C=O}$ olup faz dışı gerilme, 2860 cm^{-1} frekansında aril bileşiklerinde titreşen grup $-\text{CH}_3$ ve 2928 cm^{-1} frekansında titreşen grup $-\text{CH}_2-$ olarak belirlenmiştir (Colthup, 2012).

Sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık gideriminden sonra adsorbent yüzeyinde adsorpsiyondan önce bulunan titreşim yapan grupların geçirimsizlik yüzde değerleri azalmış ve bazı titreşim yapan gruplarda ise farklı frekanslara yönelik kaymalar gözlemlenmiş ve yeni pikler oluşmuştur (Şekil 21 (a)).



Şekil 21. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra FTIR spektrum değerleri ve SEM görüntüleri

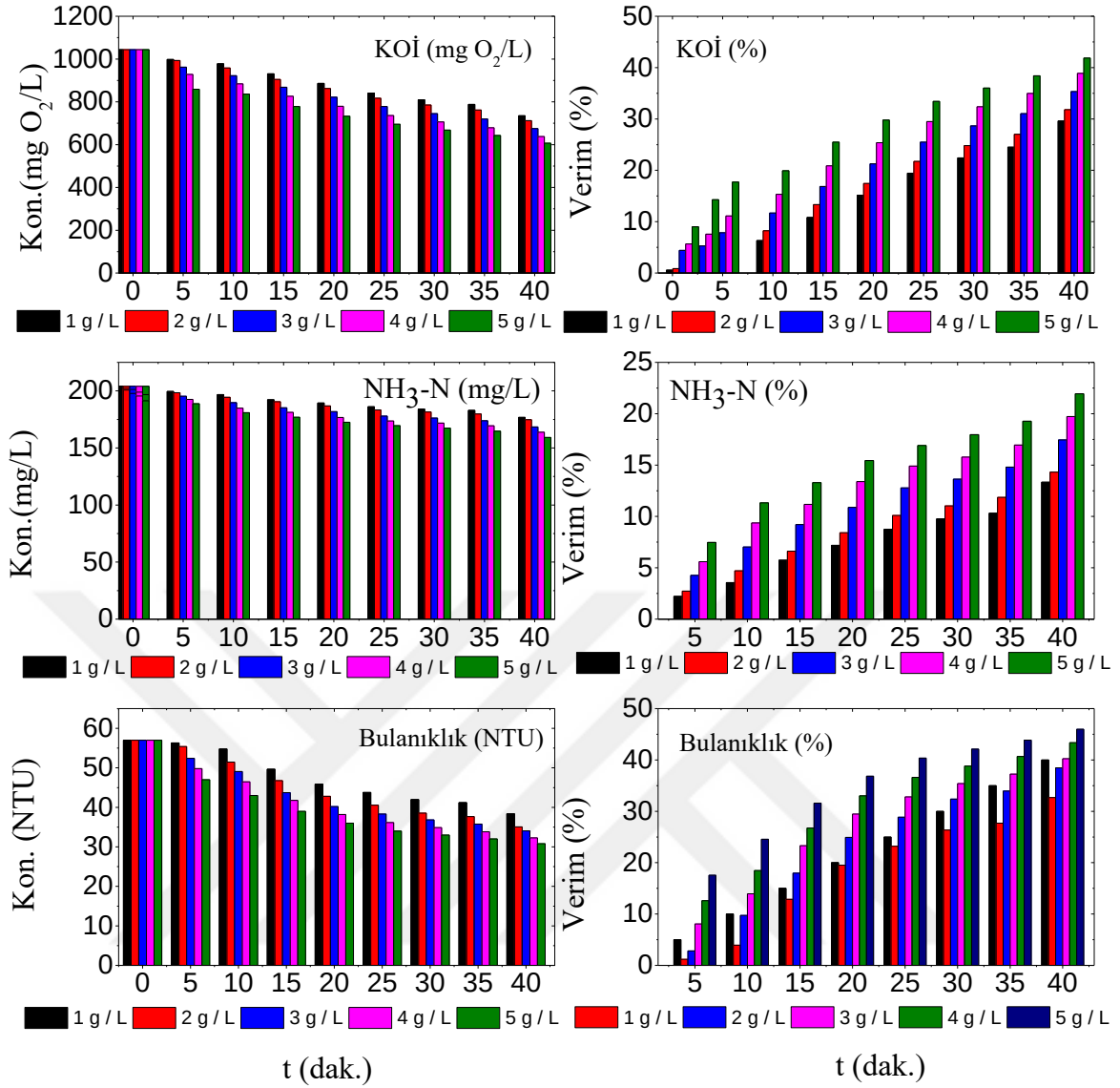
Adsorpsiyondan sonra adsorbentin FTIR spektrumlarındaki değişimler şu şekilde belirlenmiştir: adsorpsiyondan sonra 637 cm^{-1} ($\text{RHC}=\text{CH}_2$ vinil yapısında CH_2 salınımı) ve 2153 cm^{-1} (ketenler $>\text{C}=\text{C}=\text{O}$) frekansındaki piklerin geçirimsizlik yüzdesinde önemli bir azalma olmuştur. 889 cm^{-1} (antrasenlerde alkil grup titreşimleri), 1066 cm^{-1} (alifatik $\text{RCR}_2\text{-NH}_2$ titreşim grubunda NH_2 gerilmesi), 1258 cm^{-1} değerinde ikinci alkil tuzları titreşim grubu, 1471 cm^{-1} değerinde titreşim grubu furanlar olup belirtisi $\text{C}=\text{C}$ ya da $\text{C}=\text{O}$ grupları, 1604 cm^{-1} değerinde imin titreşim grubunda konjüge halkalı yapılarda $\text{C}=\text{N}$ gerilmesi, 1971 cm^{-1} değerinde $>\text{C}=\text{C}=\text{C}<$ allen titreşim grubunda elektron çeken gruplara bağlı faz dışı gerilme titreşimi ve 3650 cm^{-1} değerinde serbest $-\text{OH}$ frekans değerlerinde yeni pikler oluşmuştur. Adsorpsiyondan önce 2033 cm^{-1} $\text{R}_1\text{R}_2\text{C}=\text{N}=\text{N}$ (R alkil ya da hidrojen grubu) frekansındaki pik adsorpsiyondan sonra 2044 cm^{-1} frekansındaki pike ($\text{Y}_2\text{C}=\text{C}=\text{N}-\text{Y}$ (ketenler, Y alkil ya da aril)) doğru kaymış ve geçirimsizlik yüzdesi azalmıştır. Adsorpsiyondan önce 2892 cm^{-1} (aril bileşiklerinde titreşen grup $-\text{CH}_3$) ve 2928 cm^{-1} frekanslarındaki pikler adsorpsiyondan sonra 2892 cm^{-1} (sikloheksan) ve 2983 cm^{-1} (1,1 dialkil, $\text{R}_2\text{C}=\text{CH}_2$) frekanslarındaki piklere doğru kaymıştır. Ayrıca Şekil 21 (a) incelendiğinde 3650 cm^{-1} frekans bandında titreşen $-\text{OH}$ grubu oluşmuştur. Şekil 21 (a)'dan görüldüğü gibi adsorpsiyondan sonra bazı piklerin geçirimsizliklerinde azalma, bazı yeni piklerin oluşumu ve bazı piklerin diğer piklere kaymaları KOİ , NH_3 ve bulanıklığa neden olan çözünmüş organik maddelerin ve negatif yüklü kolloidlerin adsorbent yüzeyinde adsorplandığını göstermektedir.

TAK'ın morfolojik yapısını incelemek amacı ile SEM analizi gerçekleştirilmiştir. TAK'nin adsorpsiyondan önce ve sonra elde edilen görüntüleri Şekil 21 (b, c)'de gösterilmiştir. Sızıntı suundaki KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin gideriminden önce TAK partiküllerinin fiziksel morfolojisi aglomera olmuş partiküllerden oluştuğu ve bu partiküller yüzeyinde sırası ile makro, mezo ve mikro partiküllerin bulunduğu anlaşılmaktadır. TAK

partiküllerinin yüzeyinde çatlakların, yarıkların, büyük ve küçük deliklerin bulunduğu Şekil 21 (b)'den görülmektedir. Şekil 21 (b), TAK'ın yüzey yapısının heterojen, amorf bir yapı ve değişik por çaplarına sahip olduğunu göstermektedir. Adsorpsiyon, mikroporlarda büyük düzeyde mezoporlarda ise oldukça düşük düzeyde gerçekleşmiştir. Dolayısı ile TAK partiküllerinin yüzeyinde bulunan makroporların kirletici parametrelerin mezo ve mikroporlara taşınmasında geçiş görevi sağladığı anlaşılmaktadır. Adsorpsiyondan sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan çözünmüş organik maddelerin TAK yüzeyinde adsorplanmasından sonra TAK yüzeyinin bu kirleticiler tarafından bir örtü şeklinde kaplandıktan sonra mikroporların tamamen kaybolduğu ve mezoporların ise kısmen kaybolduğunu yapılan partikül boyut analizleri desteklemektedir.

TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine TAK miktarının etkisi

Yapılan kesikli adsorpsiyon çalışmasında, TAK ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan çözünmüş ve kolloidal maddelerin TAK miktarına bağlı olarak zamana bağlı değişimi ve giderim verimleri araştırılmıştır. Deneyler pH 8.35 (doğal pH), 20°C sıcaklık ve 300 rpm karıştırma hızında gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmalarda yapılan jar testleri sonucu TAK miktarı sırası ile 1, 2, 3, 4 ve 5 g/L olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık adsorpsiyon prosesinden sonra reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonları belirlenmiş ve Şekil 22'te verilmiştir.



Şekil 22. TAK adsorpsiyonu ile farklı TAK miktarları değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, pH 8.35, T 20°C, karıştırma hızı 300 rpm).

1, 2, 3, 4 ve 5 g/L'lik TAK miktarları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%29.6, %31.8, %35.3, %38.9 ve %41.8), (%13.3, %14.3, %17.5, %19.7 ve %21.9) ve (%32.7, %38.5, %40.3, %43.4 ve %45.6) olarak belirlenmiştir (Şekil 22). En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 5 g/L'lik TAK miktarı için sırası ile %41.8, %21.9 ve %45.6 olarak belirlenmiştir. Şekil 22'ten görüldüğü gibi TAK miktarının azalması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır. Adsorpsiyon prosesinde TAK miktarının artması partiküllerin yüzey alanı ve aktif sit bölgelerinin önemli düzeyde artışına neden olduğu düşünülmektedir. Böylece sızıntı suyunda bulunan çözünmüş maddeler, kolloidal yapılar ve moleküler halde bulunan NH₃-N'in TAK

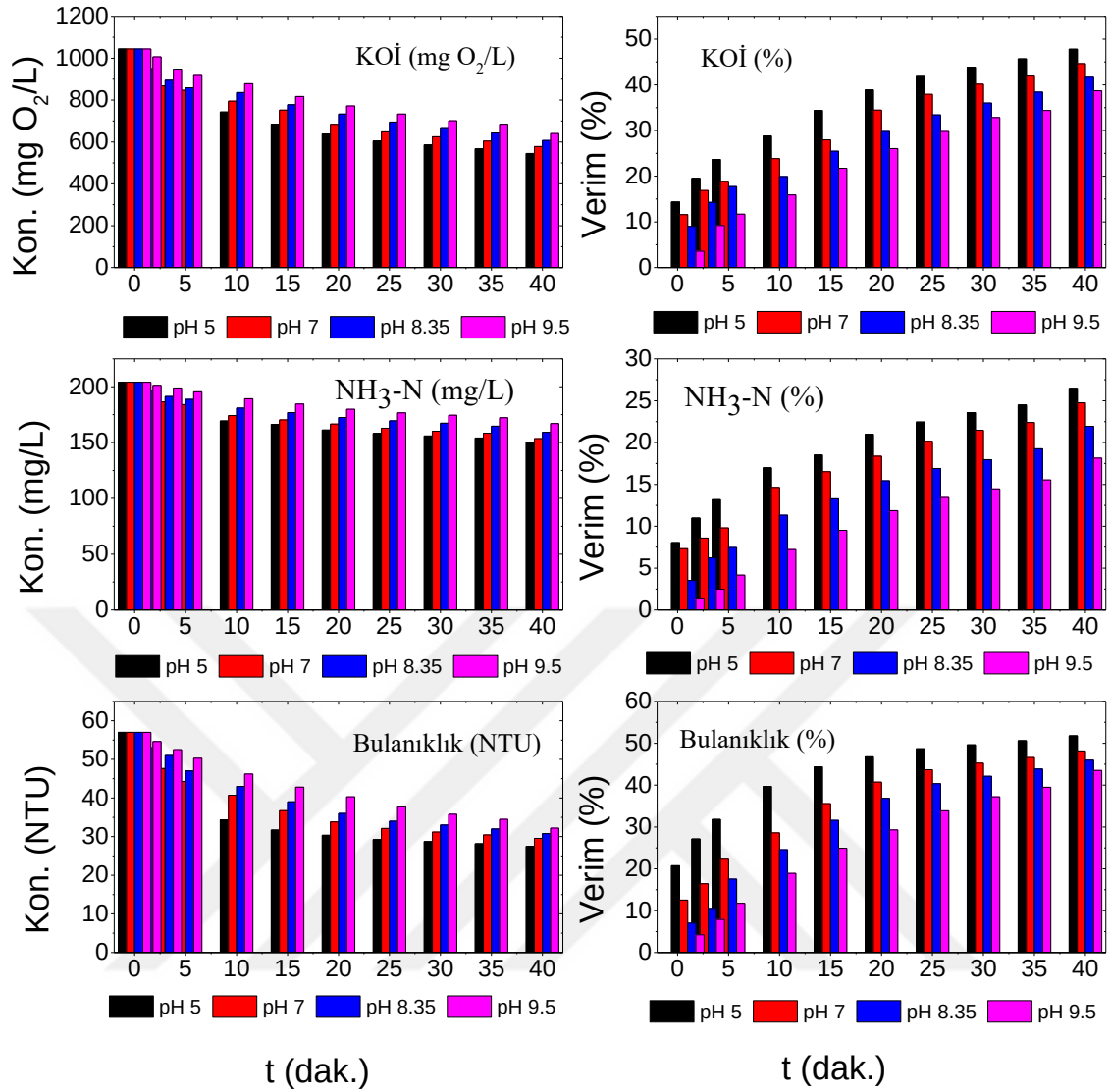
yüzeyinde bulunan aktif bölgelere elektrostatik ve kimyasal bağlarla adsorplanarak zamanla giderim verimleri artmıştır (Deng *et al.* 2018; Reynier *et al.* 2015).

TAK miktarı ile ilgili zamana bağlı olarak gerçekleştirilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan çözünmüş ve kolloidal maddelerin giderimine yönelik ortaya konulan mekanizmalar literatürde yapılan diğer çalışmalarla benzer özellik taşımaktadır (Gotvajn *et al.* 2009; Kinidi & Salleh, 2020; Mahdavi *et al.* 2018).

TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi

TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimlerinde çözelti başlangıç pH değerlerinin önemli bir rol oynadığı düşünülmektedir. Çözeltinin pH değeri, çözeltide bulunan maddelerin iyonlaşma derecesini ve adsorbentin yüzey yükünü etkileyen en önemli parametrelerden biridir (Wu *et al.* 2012). Doğal organik madde, hem hümkik madde hem de hümkik olmayan madde fraksiyonları içermektedir ve KOİ değeri çözelti pH değerinden etkilenen bileşenlerinden biridir (Renou *et al.* 2008).

Yapılan kesikli adsorpsiyon çalışmasında TAK ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimlerinin başlangıç pH değerlerine bağlı olarak adsorpsiyon zamanına göre değişimleri ve giderim verimleri araştırılmış ve Şekil 23'te verilmiştir. Reaktöre 5 g/L TAK ilave edilerek 20°C sıcaklık ve 300 rpm karıştırma hızında deneyler gerçekleştirilmiştir. Araştırmada sızıntı suyunun başlangıç pH değeri asidik, nötral ve bazik değerler olmak üzere sırası ile 5, 7, 8.35 (doğal pH) ve 9.5 olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık adsorpsiyon prosesinden sonra reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık değerleri belirlenmiş ve Şekil 23'te verilmiştir.



Şekil 23. TAK adsorpsiyonu ile farklı başlangıç pH değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana göre değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5g/L, T 20°C, karıştırma hızı 300 rpm).

5, 7, 8.35 ve 9.5'lik başlangıç pH değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%47.8, %44.6, %41.9 ve %38.7), (%26.5, %24.8, %21.9 ve %18.2) ve (%51.8, %48.2, %45.9 ve %43.5) olarak belirlenmiştir (Şekil 23). En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 5' değerinde sırası ile %47.8, %26.5 ve %51.8 olarak bulunmuştur. Şekil 23'ten görüldüğü gibi pH değerlerinin artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır. Sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık giderim verimlerinin asidik pH 5 değerinde artmasının nedeni: Düşük pH değerlerinde H⁺ iyonları konsantrasyonunun artması ile TAK yüzeyinde bulunan negatif yüklerin H⁺ iyonları ile etkileşiminden sonra nötr veya pozitif hale gelmesi ve çözeltide bulunan negatif yüklü kolloidal yapıların H⁺ iyonları tarafından destabilize edilerek kolloidal tanecik yüzeyinde difüze olmuş çift tabakanın sıkıştırılması nedeniyle gerçekleştiği söylenebilir. Bu nedenle çözelti içerisinde

bulunan çözünmüş maddeler ve kolloidal yapılar elektrostatik etkileşimle TAK yüzeyinde adsorbe olmuşlardır. Öte yandan, yüksek pH değerlerinde sızıntı suyu ortamında bulunan OH⁻ iyonları konsantrasyonunun artması ile sızıntı suyu içerisinde bulunan negatif yüklü yüzeyler ve OH⁻ iyonları arasında gerçekleşen iyonik itme kuvvetleri artarak KOİ ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır.

Düşük pH değerlerinde (pH<6.5) NH₃'ın iyonik olmayan yapısı sızıntı suyu ortamında H⁺ iyonları ile verdiği reaksiyon sonucunda NH₄⁺ iyonik yapısına dönüştüğü ve pH 5 değerinde TAK ile amonyak giderimi elektrostatik etkileşim sonucu adsorpsiyon/iyon değişimi mekanizması ile gerçekleştiği düşünülmektedir. Sızıntı suyunda yüksek pH değerlerinde ise (pH>7) sızıntı suyu ortamında baskın tür ise iyonik olmayan NH₃ türüdür. Kimyasal olarak aktive edilmiş karbon materyali geniş yüzey alanı, porlu yapı ve zengin yüzey kimyası özelliğine sahiptir (Seredych *et al.* 2009). Bu tür aktif karbonların yapısında çok sayıda fonksiyonel gruplar içerisinde yer alan çift bağlı yapılar, hidroksil ve karboksil grupları mevcuttur. Yüksek pH değerlerinde çözelti ortamında bulunan NH₃'ın bu yüzey gruplar tarafından adsorplandığı söylenebilir. En genel olarak hazırlanmış aktif karbonlarda ise NH₃ aktif karbon yüzeyine hidrojen bağı veya oldukça zayıf olan lewis asit-baz etkileşimi ile yüzeye tutunduğu söylenebilir. Bundan dolayı pH değerlerinin artması ile NH₃'ın adsorpsiyonu azalmıştır.

Başlangıç pH değerlerine bağlı olarak sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim mekanizmaları ile ilgili yapılan açıklamalar literatürde yapılan diğer çalışmalarda uyumluluk göstermektedir (Deng *et al.* 2018; Ferraz & Yuan, 2020; Karri *et al.* 2018; Mahdavi *et al.* 2018; Parande *et al.* 2009).

pH ile ilgili yapılan açıklamalara ilaveten TAK partiküllerinin çözeltinin pH değerinden nasıl etkilendiğini ve bunun sonucunda nasıl bir davranış sergileyebileceklerini belirlemek için TAK partiküllerinin pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerinde adsorpsiyondan önce ve sonra zeta potansiyel analizleri yapılmıştır. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerindeki zeta potansiyelleri sırası ile 193.3, 0,0 ve 0 mV olarak bulunmuştur. Adsorpsiyon sonrasında TAK partiküllerinin pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerindeki zeta potansiyelleri ise sırası ile 45.3, 21.54, -5.1 ve -404.9 mV olarak belirlenmiştir. Asidik pH değerinde çözülmüş organik madde ve negatif yüklü kolloidal maddelerin pozitif yüklü TAK partiküllerinin yüzeyinde adsorpsiyonu artmış ve bunun sonucunda sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. Adsorpsiyondan önce çözelti pH değerlerinin artması sonucu partiküllerin yüzey yükü nötr hale gelmiştir. pH 8.35 ve 9.5 değerlerinde adsorpsiyondan sonra TAK partiküllerinin yüzey yükü azalıp negatif değerlere ulaşması sonucu

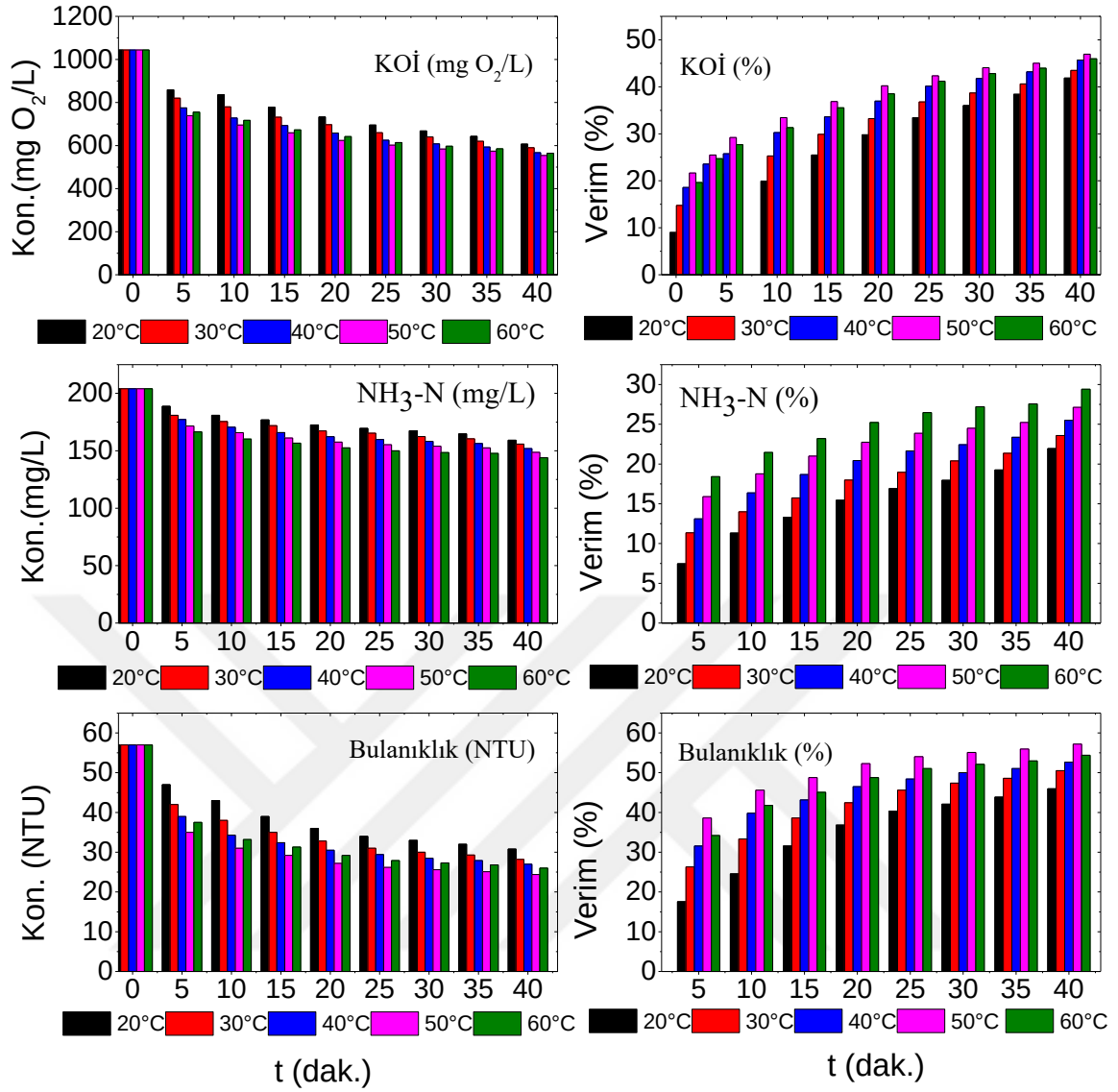
adsorbat ve adsorbent arasındaki itmelerden dolayı sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır.

TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklık değerlerinin etkisi

Gerçekleştirilen kesikli adsorpsiyon çalışmalarında TAK kullanılarak çözelti başlangıç sıcaklığına bağlı olarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık değerlerinin zamana bağlı olarak değişimleri ve giderim verimleri araştırılmıştır. Deneyler pH 8.35 (doğal), 5 g/L TAK dozajında ve 300 rpm karıştırma hızında gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmalarda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimleri 20, 30, 40, 50 ve 60°C gibi farklı başlangıç sıcaklık değerlerinde araştırılmıştır. 40 dakikalık bir adsorpsiyon prosesinden sonra reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık değerleri belirlenmiş ve Şekil 24'te verilmiştir.

20, 30, 40, 50 ve 60°C'lik sıcaklık değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%41.9, %43.5, %45.7, %46.9 ve %45.9), (%21.9, %23.6, %25.5, %27.2 ve %29.4) ve (%45.9, %50.5, %52.6, %57.2 ve %54.4) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ ve bulanıklık giderim verimleri 50°C değeri için sırası ile %46.9 ve %57.2 olarak belirlenmiştir. En yüksek NH₃-N giderim verimi ise 60°C değerinde %29.4 olarak belirlenmiştir. Şekil 24'ten görüldüğü gibi çözelti başlangıç sıcaklığının artması ile NH₃-N giderimi artmış KOİ ve bulanıklık giderim verimleri ise 60°C hariç artmıştır.

KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde ki bu artış, adsorpsiyon prosesinin endotermik yapısını göstermektedir.



Şekil 24. TAK adsorpsiyonu ile farklı başlangıç sıcaklık değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana göre değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, pH 8.35, TAK 5g/L, karıştırma hızı 300 rpm).

Bu artışın nedeni, yüzeyde mevcut olan aktif bağlama bölgelerinde ki bir artıştan veya adsorbenti çevreleyen sınır tabakasının kalınlığındaki bir azalmadan kaynaklanabileceği söylenebilir (X. Zhang *et al.* 2016). Artan çözelti sıcaklığı, KOİ ve bulanıklığa neden olan maddelerin artan sıcaklıkla kinetik enerjilerinin artmasından dolayı TAK gözenekleri içerisindeki taşınımının artması ile açıklanabilir (Kaur *et al.* 2016).

Çözelti başlangıç sıcaklığının artması ile NH₃-N giderim verimleri de artmıştır. Bu artışa NH₃-N' sudaki çözünürlüğünün çözelti sıcaklığının artması ile azalması sonucu NH₃-N'in çözeltiyi terk etmesi ve pH 8.35 değerinde amonyağın aktif karbon yüzeyinde bulunan çift bağlar ve yüzeyde bulunan diğer aktif bölgelere daha fazla bağlanması ile açıklanabilir. Sonuçta

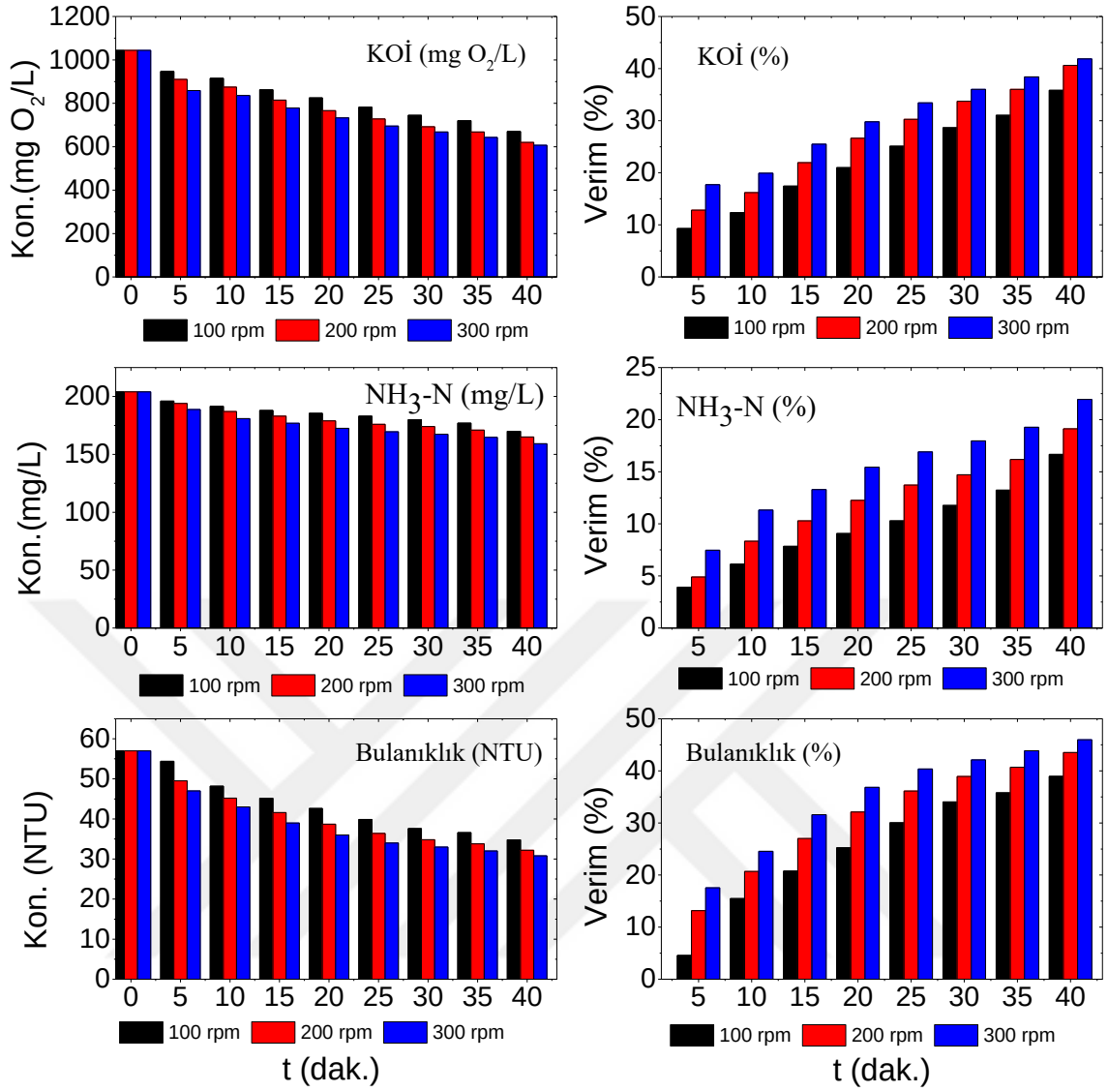
çözelti başlangıç sıcaklığının artması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.

Başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile ilgili literatürde yapılan diğer çalışmalar benzer mekanizmalar ile açıklanmıştır (Foo *et al.* 2013; Joseph *et al.* 2021; Haiwei Liu *et al.* 2010; Mahdavi *et al.* 2018).

TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine karıştırma hızının etkisi

Yapılan kesikli adsorpsiyon çalışmalarında çözelti karıştırma hızının TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık değerlerinin zamana bağlı olarak değişimleri ve giderim verimleri araştırılmıştır. Deneyler pH 8.35 (doğal), 5 g/L TAK dozaj ve T 20°C sıcaklık değerlerinde gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmalarda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimleri 100, 200 ve 300 rpm gibi farklı karıştırma hızlarında araştırılmıştır. 40 dakikalık bir adsorpsiyon prosesinden sonra reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri Şekil 25'de verilmiştir.

100, 200 ve 300 rpm'lik karıştırma hızı değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%35.8, %40.6 ve %41.9), (%16.7, %19.1 ve %21.9) ve (%38.9, %43.5 ve %45.9) olarak belirlenmiştir (Şekil 25). En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 300 rpm değeri için sırası ile %41.9, %21.9 ve %45.9 olarak belirlenmiştir. Şekil 25'den görüldüğü gibi karıştırma hızının artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. Karıştırma hızının artması ile adsorpsiyonla KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki artış TAK partiküllerinin ve çözelti içerisinde bulunan kolloidal ve kirletici maddelerin zamanla çözeltide homojen dağılımını teşvik ederek adsorpsiyon süresince kirletici konsantrasyonlarının homojen kalmasına yardımcı olmuştur.



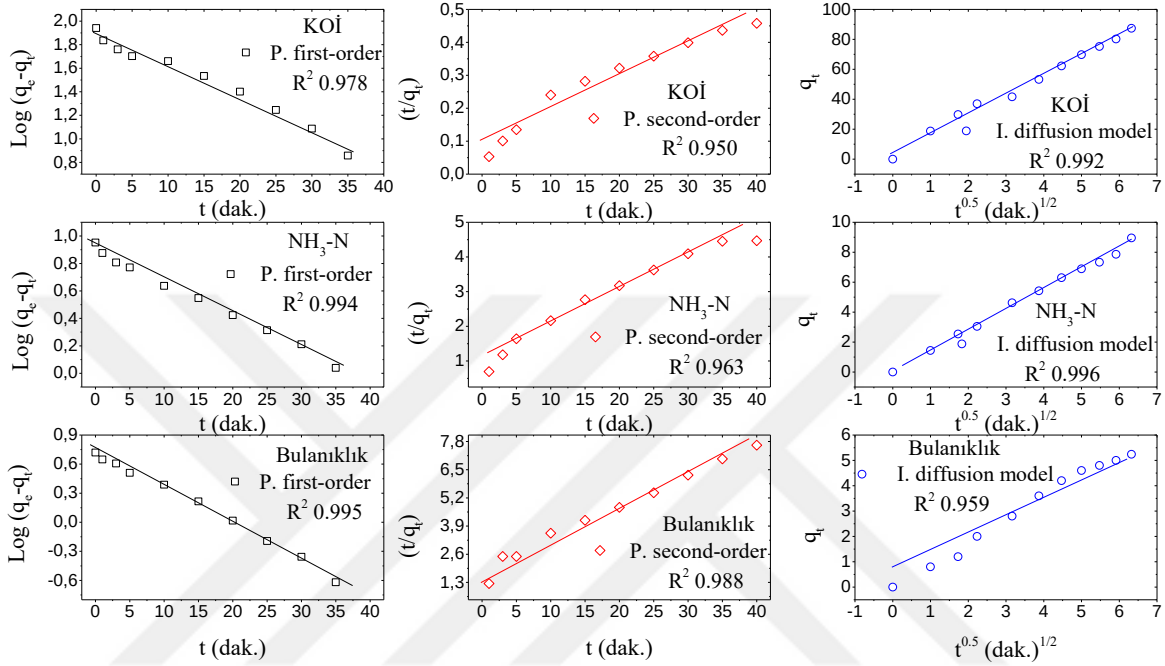
Şekil 25. TAK adsorpsiyonu ile farklı karıştırma hızlarında sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana göre değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L, pH 8.35, T 20°C).

Ayrıca, karıştırma hızı, sınır tabakası kalınlığını azaltıp dış film transfer katsayısını artırmaktadır. Yüksek karıştırma hızlarında daha hızlı hareket eden TAK partikülleri ve kirletici maddeler birbirleri ile daha çok temas ederek çarpışma olasılıkları artmıştır (Sohbi Bellebia *et al.* 2012). Bu durum TAK partiküllerinin birim miktarı tarafından adsorplanan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık miktarını artırarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirletici maddelerin giderim verimlerinde bir artışa neden olmuştur.

Karıştırma hızı değerlerine bağlı olarak sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim mekanizmaları literatürde yapılan diğer çalışmalarda açıklanan mekanizmalarla benzer özellik gösterdiği ortaya konulmuştur (Devi, 2010; Devi *et al.* 2008; Devi & Dahiya, 2006, 2008).

Düzenli deponi sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri, denge izotermi ve termodinamik parametreler

TAK ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine ait adsorpsiyon kinetiklerinin belirlenmesinde pseudo-first-order (yalancı birinci mertebe), pseudo-second-order (yalancı ikinci mertebe) ve intraparticle diffusion (partikül içi difüzyon) eşitlikleri kullanıldı ve bu eşitliklere ait grafikler Şekil 26'da gösterildi.



Şekil 26. TAK ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri (KOİ 1047 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L, karıştırma hızı 300 rpm, pH 8.35, T 20°C).

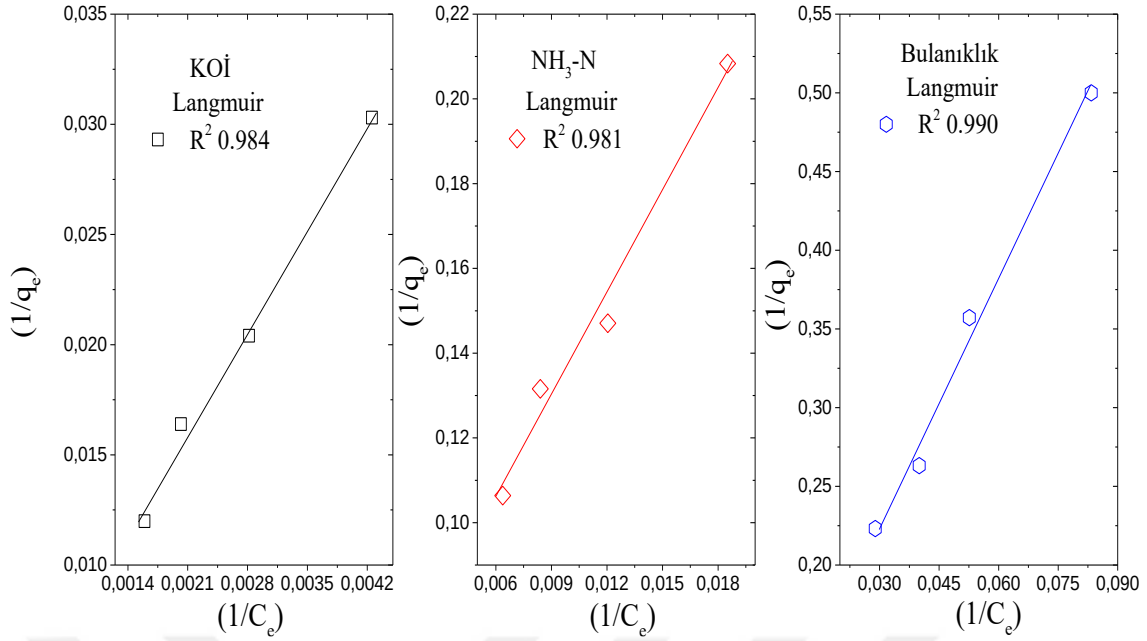
Sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ gideriminin yüksek korelasyon (R^2 0.992) katsayısından dolayı partikül içi difüzyon modeline uyduğu belirlendi. Sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile NH₃-N ve bulanıklık giderim kinetikleri ise yüksek korelasyon (R^2 0.996 ve R^2 0.994) değerlerinden dolayı hem pseudo-first-order hem de partikül içi difüzyon modele uyduğu belirlendi. Ayrıca sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile bulanıklık giderimi ise R^2 0.995 olmasından dolayı Pseudo-first-order modele uyduğu belirlenmiştir. Sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim kinetiklerine ait adsorpsiyon hız sabiti değerleri Tablo 6'da verilmiştir.

Tablo 6. KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderim Kinetiklerine Ait Adsorpsiyon Hız Sabiti ve R² Değerleri

KOİ								
Pseudo-first-order			Pseudo-second-order			Partikül içi difüzyon		
k ₁ (1/dk.)	q _e (mg/g)	R ²	k ₂ (g/mg.dk)	q _e (mg/g)	R ²	k _{id} (mg/g.dk ^{1/2})	C	R ²
0.063	78.9	0.978	0.0011	99	0.950	13.1	3.97	0.992
NH ₃ -N								
k ₁ (1/dk.)	q _e (mg/g)	R ²	k ₂ (g/mg.dk)	q _e (mg/g)	R ²	k _{id} (mg/g.dk ^{1/2})	C	R ²
0.055	8.02	0.994	0.00899	10.32	0.963	1.36	0.099	0.996
Bulanıklık								
k ₁ (1/dk.)	q _e (mg/g)	R ²	k ₂ (g/mg.dk)	q _e (mg/g)	R ²	k _{id} (mg/g.dk ^{1/2})	C	R ²
0.084	5.25	0.995	0.013	6.65	0.988	0.878	0.016	0.959

İzoterm modelleri, sabit sıcaklıkta adsorban yüzeyindeki adsorbat miktarı ile çözeltideki adsorbat konsantrasyonu arasındaki denge ilişkileridir. İzoterm modellerinden maksimum adsorpsiyon kapasitesi belirlenebilir. İzoterm denge sabitleri, kullanılan adsorbanın ağır metal giderim yeteneği ya da ağır metal iyonlarının birim kütlesini uzaklaştırmak için gereken adsorban miktarı hakkında bilgi verir.

Sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde elde edilen deneysel veriler Langmuir, Freundlich, Temkin ve Dubinin-Radushkevich (D-R) denge izotermi gibi dört farklı modele uyarlanmıştır. Sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde hangi modelin daha uygun olduğunu belirlemek için bağımlı ve bağımsız değişkenler arasındaki ilişkinin büyüklüğünü gösteren korelasyon katsayısı (R²) değerinden yararlanılmıştır. Sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde en uygun izoterm Langmuir izotermi olarak belirlenmiş ve Şekil 27’de gösterilmiştir. Diğer izoterm grafikleri R² değerlerinin Langmuir izotermi R² değerinden küçük olduğu için şekille gösterilmemiştir ancak bu izotermilere ait R² değerleri ve izoterm sabitleri Tablo 7’de verilmiştir



Şekil 27. TAK ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanık giderimine ait Langmuir izotermi (TAK 5 g/L, Karıştırma hızı 300 rpm, pH 8.35, T 20°C)

Sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine yönelik Langmuir izotermine ait korelasyon katsayıları sırası ile R^2 0.992, 0.981 ve 0.990 olarak belirlenmiştir. Sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine yönelik yapılan denge çalışmaları ile ilgili izoterm parametrelerine ait sayısal değerler Tablo 7’de verilmiştir.

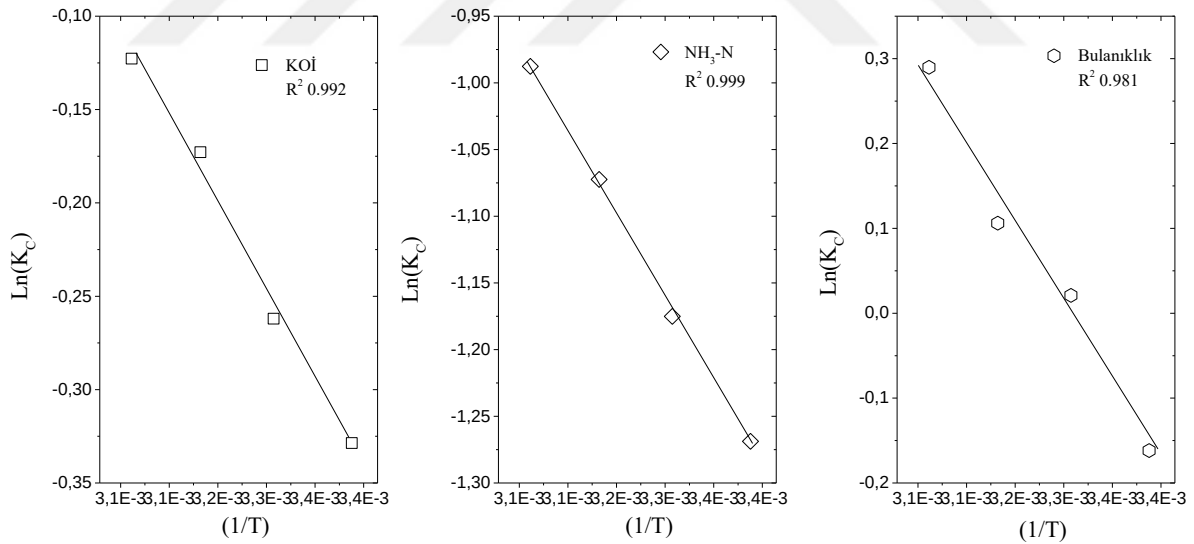
Tablo 7. Sızıntı Suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimi ile İlgili İzoterm Parametreleri ve Korelasyon Katsayıları

Kirletici	İzoterm	İzoterm parametreleri			R^2
KOİ	Langmuir	K_L (L/mg)	Q_m (mg/g)		0.992
		0.0003	500		
	Freundlich	K_f (L/mg)	n		0.978
		0.230	1.10		
NH ₃ -N	Temkin	B_1	K_T (L/mg)		0.949
		0.0008	48.56		
	D-R	β	Q_m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.911
		0.009	82.68	7.45	
Bulanıklık	Langmuir	K_L (L/mg)	Q_m (mg/g)		0.981
		0.0069	17.5		
	Freundlich	K_f (L/mg)	n		0.972
		0.45	1.66		
Bulanıklık	Temkin	B_1	K_T (L/mg)		0.973
		0.06	4.07		
	D-R	β	Q_m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.946
		0.0003	9.4	40.82	

Tablo 7. (devamı)

Bulanıklık	Langmuir	K_L (L/mg)	Q_m (mg/g)	0.990
		0.013	14.47	
	Freundlich	K_f (L/mg)	n	0.985
		0.28	1.27	
	Temkin	B_1	K_T (L/mg)	0.980
		0.184	2.412	
	D-R	β	Q_m (mg/g)	E (kJ/mol)
		0.00002	4.6	158.2

TAK adsorpsiyonuna ait standart serbest entalpi (ΔH°), standart serbest entropi (ΔS°) ve standart serbest Gibbs (ΔG°) enerji değerlerinin belirlenmesinde başlangıç değeri T 20, 30, 40 ve 50°C olan sızıntı suyu başlangıç sıcaklık değerlerinde adsorpsiyon çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Sızıntı suyunun KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyon değerleri sırası ile 1044 mg O₂/L, 204 mg/L ve 57 NTU idi. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık kirlenici parametrelerine ait dengedeki K_c dağılım katsayılarının sıcaklıkla artması adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğunu göstermektedir. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde TAK adsorpsiyon prosesine ait ΔH° , ΔS° ve ΔG° değerlerinin belirlenmesinde (1/T) değerlerine karşı Ln (K_c) değerlerinin grafiği çizilmiş ve Şekil 28’de verilmiştir.

**Şekil 28.** TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine yönelik (1/T) değerlerine karşı Ln (K_c) grafikleri

Ayrıca TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi ile ilgili termodinamik parametre değerleri Tablo 8’de özetlenmiştir. Tablo 8’de verilen KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık parametrelerine ait ΔH° değerlerinin pozitif olmasından dolayı adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğu anlaşılmaktadır. Tablo 8’deki ΔS° değerlerinin pozitif çıkmasının anlamı TAK ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra TAK partiküllerinin

yüzeyinde meydana gelen tutunmadan sonra partiküllerin düzensizliğinin arttığı söylenebilir. Ayrıca ΔG° değerlerinin pozitif olmasının nedeni TAK adsorpsiyonunun kendiliğinden meydana gelemeyeceğini ifade etmektedir.

Tablo 8. Sızıntı Suyundan TAK Adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimine Ait ΔG° , ΔH° ve ΔS° Değerleri

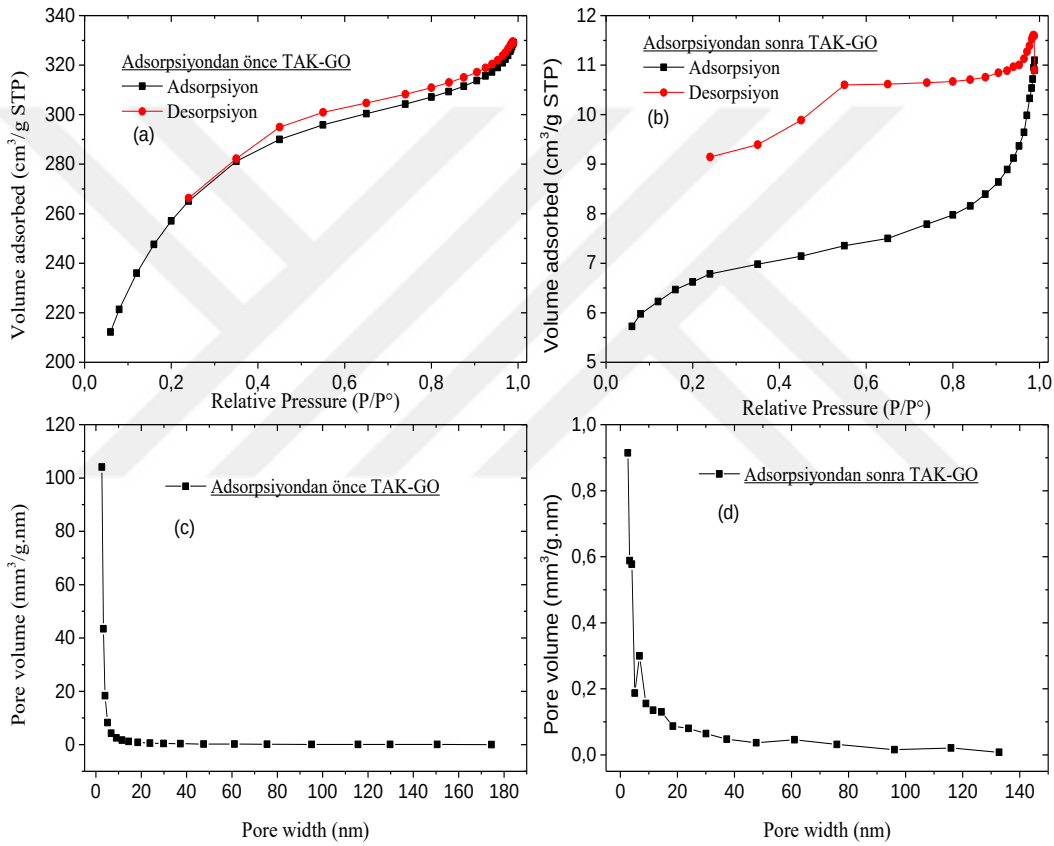
ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	KOİ ΔG° (kJ/mol)			
5.560	0.016	293 K	308 K	313 K	323 K
		0.809	0.712	0.552	0.372
ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	NH ₃ -N ΔG° (kJ/mol)			
7.440	0,0148	293 K	308 K	313 K	323 K
		3.303	2.955	2.807	2.659
ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	Bulanıklık ΔG° (kJ/mol)			
11.319	0.0370	293 K	308 K	313 K	323 K
		0.478	0.108	-0.262	-0.632

Grafen Oksitli Partiküler Aktif Karbon (TAK-GO) Kullanarak Sızıntı Suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimine Deneysel Parametrelerin Etkisinin İncelenmesi

TAK-GO partiküllerinin BET yüzey alanı, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM görüntüleri

Şekil 29 (a, b) incelendiğinde rölatif (bağıl) basıncın artması ile adsorplanan gaz hacmi artmış ve rölatif basıncın değeri 0.99 olduğu zaman adsorplanan gaz hacmi maksimum değere ulaşmıştır. Rölatif basınç ekseninin sağına doğru gittikçe adsorplanan N₂ gazı hacminin basıncın bir fonksiyonu olarak nasıl değiştiği Şekil 29 (a, b)'den görülmektedir. Belirli bir süreden sonra adsorpsiyonun kararlı hale gelmesinden dolayı rölatif basınç ne kadar artırılırsa artırılсын adsorplanan gaz hacmi değişmeyerek sabit kalmıştır. Şekil 29 (a) incelendiğinde adsorpsiyon prosesinden önce TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyon mekanizması diğer adsorpsiyon türlerine benzemediğinden adsorpsiyonun Tip I adsorpsiyon izotermi olduğu belirlenmiştir. Tip I izoterminde adsorpsiyon çoğunlukla mikroporlarda kemisorpsiyon olarak meydana gelmektedir. Bu durumda adsorplanan madde adsorbentteki mikroporların ve çok az sayıda mezoporların yüzeyine güçlü bir şekilde adsorplanmaktadır. Makroporlarda ise KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin adsorpsiyonu meydana gelmemiştir (Z. Chen *et al.* 2021; Koyuncu & Kul, 2020; F. Liu *et al.* 2021). TAK-GO partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderildikten sonra kirleticilerle tükenmiş TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyon ve desorpsiyon izotermi Şekil 29 (b)'de verilmiştir. Bu şekil incelendiğinde

rölatif basınç değerinin artması ile adsorplanan gaz hacmi artmış ancak adsorpsiyondan sonra adsorbent yüzeyindeki adsorplanan gaz hacmi oldukça azalmıştır. Şekil 29 (b) incelendiğinde adsorpsiyon ve desorpsiyon eğrisinin Tip II izotermine uyduğu belirlenmiştir (Gong *et al.* 2022; Koyuncu & Kul, 2020; D. Liu *et al.* 2021). Bu tür adsorpsiyonda adsorpsiyon eğrisi sigmoidal olup oluşacak izoterm eğrileri hem gözeneksiz hem de makro gözenekli adsorbentlerde fiziksel soğurma şeklinde meydana gelmektedir. Adsorpsiyon prosesinden sonra kirleticilerin TAK-GO partikülleri yüzeyinde adsorlandıktan sonra adsorbentte mikroporların tamamen ve mezaporların kısmen tükendiği ve makroporlarda adsorpsiyonun gerçekleşmediği belirlenmiştir.



Şekil 29. 373 K sıcaklığında adsorpsiyondan önce ve sonra TAK-GO partiküllerine ait N₂ adsorption/desorption izotermi (a, b) ve adsorbent por boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (c, d)

Tip I izotermi adsorbent tarafından adsorbe edilen partiküllerinin adsorbent maddenin yüzeyinde tek bir tabaka oluşturduğu söylenebilir. Tek tabaka adsorbatlar tarafından soğurulduktan sonra diğer partiküller maddeler önceki partiküllere adsorplanır ve bu durum çoklu adsorpsiyon katmanların oluşmasına neden olur. Şekil 29 (b) incelendiğinde, TAK-GO partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderildikten sonra adsorpsiyonun devam edebilmesi için tükenmiş TAK-GO yüzeyinde oldukça çok düşük por hacminin kaldığı belirlenmiştir.

TAK-GO partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra partiküllerin yüzey alanı ve por hacimlerini belirlemek için Brunauer-Emmett-Teller (BET) yüzey alanı analizleri gerçekleştirilmiştir. Adsorpsiyondan önce ve sonra TAK-GO partiküllerinin BET yüzey alanı ve por hacmi sırasıyla (908 m² g⁻¹ ve 0.504 cm³ g⁻¹) ve (23 m² g⁻¹ ve 0.018 cm³ g⁻¹) olarak belirlenmiştir. TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra ortalama por çapı ise sırasıyla 2.22 ve 2.87 nm olarak hesaplanmıştır. Adsorpsiyondan sonra partiküllerin yüzey alanı ve hacimlerinde meydana gelen azalma KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin bir kısmının adsorpsiyonla uzaklaştırıldığına işaret etmektedir.

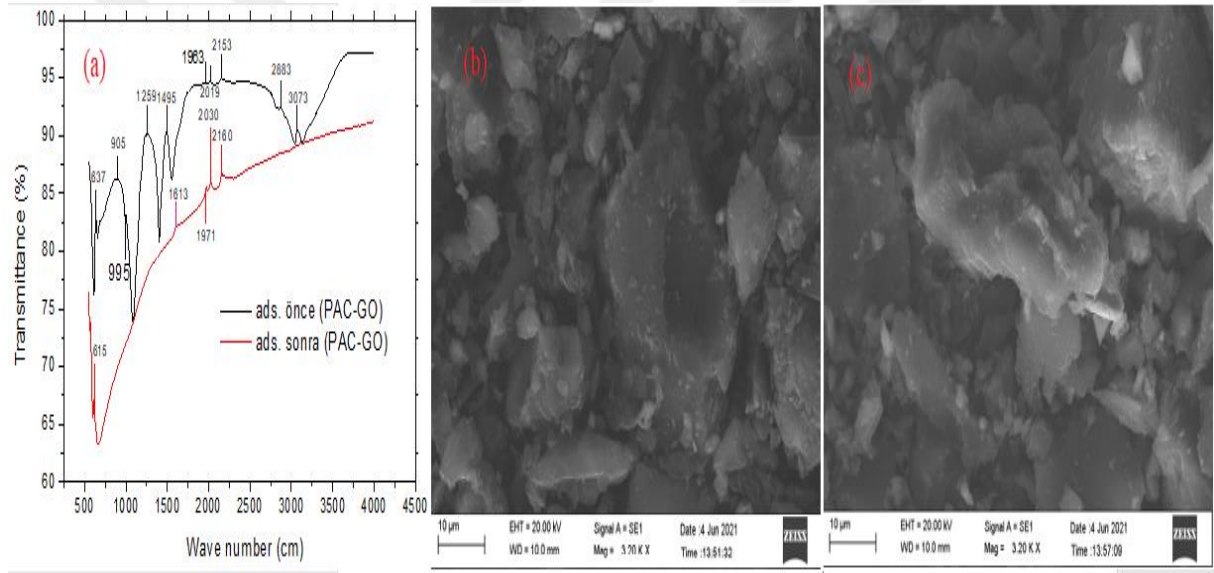
Kesikli adsorpsiyon çalışmalarında kullanılan TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra por boyutu dağılımlarını belirlemek için Barrett, Joyner and Halenda (BJH) yöntemi uygulanıp Şekil 29 (c, d)'de gösterilmiştir. Şekil 29 (c, d) TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra por çapları ile partiküllerin gram başına mm³ olarak hacimleri arasındaki ilişkiyi göstermektedir. Şekil 29 (c) incelendiğinde adsorpsiyondan önce TAK-GO partiküllerinin por çapları 2.62-174.4 nm arasında değiştiği görülmektedir. TAK-GO partiküllerinin en yüksek gram başına hacim değerleri sırası ile 104.1, 43.44 ve 18.4 mm³/g olarak belirlenmiştir. Yapılan analizlerden sonra adsorpsiyonun meydana geldiği ortalama partikül çapı 2.88 nm olarak belirlenmiştir. TAK-GO partikülleri ile adsorpsiyondan sonra partiküllerin por çapları ile partikül başına mm³ olarak hacimleri arasındaki ilişki Şekil 29 (d) 'de verilmiştir. Adsorpsiyondan sonra partiküllerin por çapı ile gram başına sahip oldukları hacimleri sırası ile (2.62-132.8 nm) ve (0.9-0.0072 (mm³/g. nm) olarak belirlenmiştir. Adsorpsiyondan sonra TAK-GO partiküllerinin ortalama çapı 2.9 nm olarak hesaplanmıştır. TAK-GO partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra mikroporların tamamı ve mezoporların bir kısmı kaybolmuş ve adsorpsiyondan sonra por çapı artmıştır. Bu durum kirleticilerin bir kısmının sızıntı suyundan adsorbe edildiği anlamına gelmektedir.

Bu çalışmada TAK-GO partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde adsorpsiyona katılan aktif grupları belirlemek için FTIR spektrumları adsorpsiyondan önce ve sonra analiz edilmiştir. 500-4000 cm⁻¹ dalga boyu aralığında TAK-GO partiküllerine ait FTIR spektrumları Şekil 30 (a)' de verilmiştir.

TAK-GO partiküllerine ait adsorpsiyondan önce FTIR spektrumları Şekil 30 (a)'da gösterilmiştir. Şekil 30 (a)'da titreşim grupları şu şekilde belirlenmiştir; 637 cm⁻¹ de titreşen grup (RHC=CH₂) vinil grubu olup titreşim belirtisi CH₂ grubu, 995 cm⁻¹ değerinde titreşen grup RHC=CH₂ vinil grubu olup titreşim belirtisi *cis* CH grubu, 998 cm⁻¹ değerindeki bantta tek

gruplu aromatik bileşik titreşimi, 1259 cm^{-1} değerinde titreşen grup nitroaminler $>\text{N}=\text{NO}_2$ olup titreşim belirtisi simetrik NO_2 gerilmesi, 1495 cm^{-1} değerinde titreşen grup azoksi bileşiklerden $\text{R,R}'\text{N}=\text{N}(\rightarrow\text{O})-$ olup titreşim belirtisi $\text{C}=\text{N}$ gerilmesi, 1963 cm^{-1} değerindeki bantta titreşimli grup allenler $\text{C}=\text{C}=\text{C}$ olup titreşim belirtisi halojen gruplar, 2019 cm^{-1} değerindeki bantta titreşen grup diazobileşikleri $\text{R}_1\text{R}_2\text{C}=\text{N}=\text{N}$ (R alkil ya da hidrojen atomlarıdır), 2153 cm^{-1} değerindeki bantta titreşen grup ketenler $>\text{C}=\text{C}=\text{O}$ olup titreşim belirtisi faz dışı gerilme, 2883 cm^{-1} değerindeki bantta titreşen grup $-\text{CH}_3$ grubu ve 3073 cm^{-1} frekans değerinde titreşen grup alkenlerden 1,1 dialkil $\text{R}_2\text{C}=\text{CH}_2$ grupları olduğu belirlenmiştir (Colthup, 2012).

Sızıntı suyundan KOİ , NH_3 ve bulanıklık gideriminden sonra adsorbent yüzeyinde adsorpsiyondan önce bulunan titreşim yapan grupların geçirimsizlik yüzde değerleri azalmış ve bazı titreşim yapan gruplarda ise farklı frekanslara yönelik kaymalar gözlemlenmiş ve yeni pikler oluşmuştur (Şekil 30 (a)).



Şekil 30. TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra FTIR spektrumları ve SEM görüntüleri

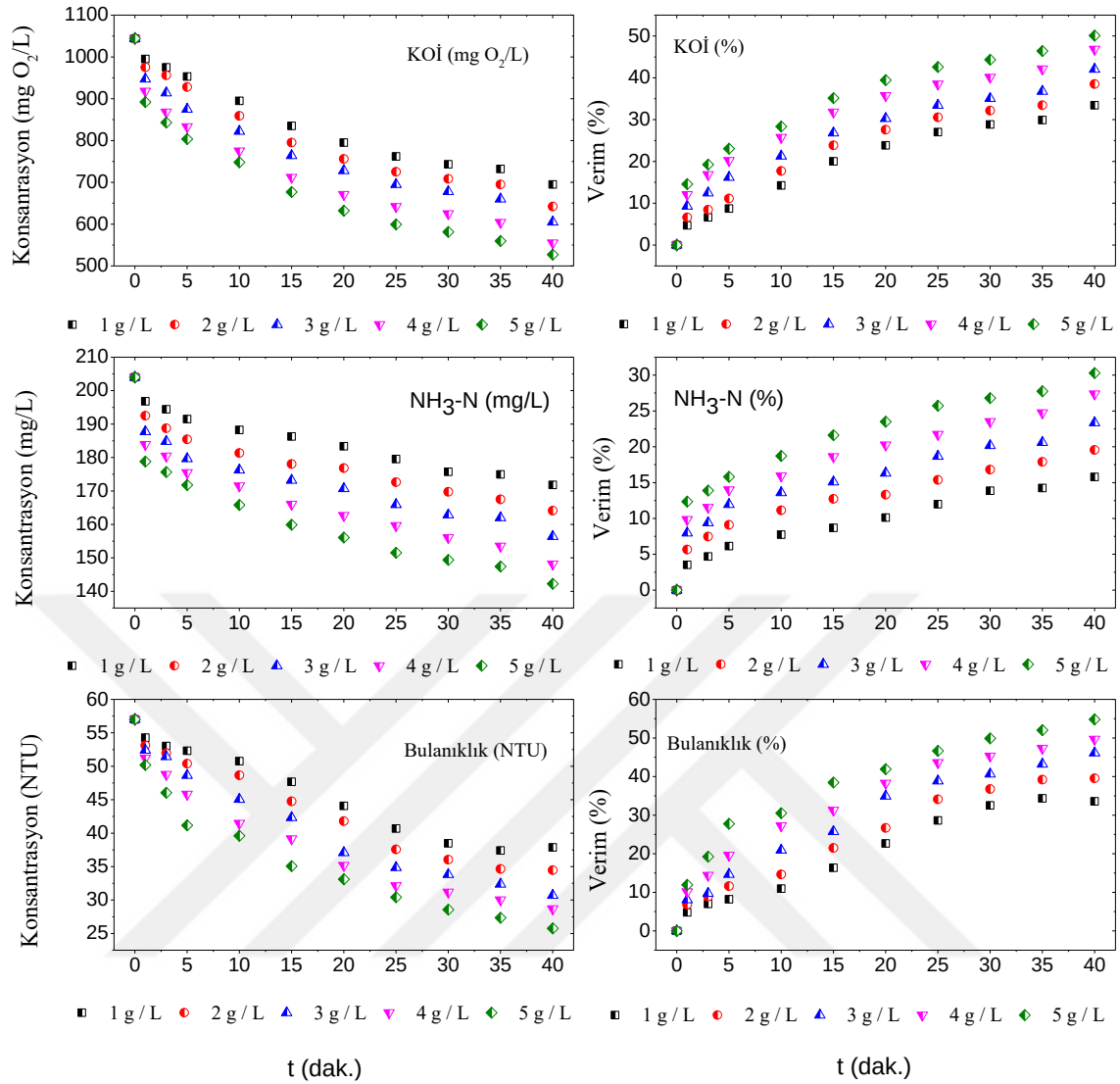
Adsorpsiyondan sonra adsorbentin FTIR spektrumlarında meydana gelen değişimler şu şekilde belirlenmiştir: adsorpsiyondan önce 637 cm^{-1} ($\text{RHC}=\text{CH}_2$ vinil yapısında CH_2 salınımı) frekansındaki pik kayarak 615 cm^{-1} frekansındaki ($\text{RHC}=\text{CH}_2$ vinil grubu olup titreşim belirtisi CH_2) pike doğru kayıp geçirimsizliğinde bir azalma meydana gelmiştir. Adsorpsiyondan önce 2153 cm^{-1} (ketenler $>\text{C}=\text{C}=\text{O}$) frekansındaki pik adsorpsiyondan sonra kayarak 2160 cm^{-1} frekansındaki pike (tiyosiyanatlar $\text{S}-\text{C}\equiv\text{N}$ olup titreşim belirtisi $\text{C}\equiv\text{N}$ grubu) dönüşüp geçirimsizliği azalmıştır. Adsorpsiyondan önce adsorbent yüzeyinde bulunan 905 cm^{-1} , 995 cm^{-1} , 1259 cm^{-1} , 1495 cm^{-1} , 1963 cm^{-1} , 2019 cm^{-1} , 2883 cm^{-1} ve 3073 cm^{-1} frekanslı pikler kirleticilerin gideriminden sonra kaybolmuştur. Bu durum sızıntı suyunda KOİ , NH_3 -N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin adsorpsiyonunu göstermektedir. 1613 cm^{-1} (bir halka

içerisinde C=C grubu) ve 1971 cm^{-1} ($>\text{C}=\text{C}=\text{C}<$ allen titreşim grubunda elektron çeken gruplara) frekanslı pikler ise kirletici parametrelerin adsorpsiyonundan sonra oluşan yeni piklerdir.

TAK-GO partiküllerinin morfolojik yapısını incelemek amacı ile SEM analizleri gerçekleştirilmiştir. TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra elde edilen görüntüleri Şekil 30 (b, c)'de gösterilmiştir. Sızıntı suyundaki KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklığa neden olan kirletici parametrelerinin gideriminden önce TAK-GO partiküllerinin fiziksel morfolojisi aglomera olmuş partiküllerden oluştuğu ve bu partiküllerin farklı boyutlara ve por yapılarına sahip olduğu ve GO partiküllerinin TAK partikülleri üzerinde tutunduğu Şekil 30 (b)'den görülmektedir. Bu partiküllerin üzerinde sırası ile mikro, mezo ve makro partiküllerin bulunduğunu analiz edilen TAK-GO partiküllerine ait por dağılım grafiği Şekil 29 (b) doğrulamaktadır. TAK partiküllerinin yüzeyinde bulunan çatlakların, yarıkların, büyük ve küçük deliklerin GO partikülleri tarafından doldurulduğu Şekil 30 (b)'den görülmektedir. Şekil 30 (b), TAK-GO partiküllerine ait yüzey yapısının heterojen, amorf bir yapı ve partiküllerin değişik por çaplarına sahip olduğunu göstermektedir. Adsorpsiyon, mikroporlarda tamamen mezoporlarda ise kısmen gerçekleşmesinden dolayı TAK-GO partiküllerinin yüzeyinde bulunan makroporların kirletici parametrelerin mezo ve mikroporlara taşınmasında önemli bir köprü görevi gördüğü anlaşılmaktadır. Adsorpsiyondan sonra KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklığa neden olan çözünmüş organik maddelerin TAK-GO yüzeyinde adsorplanmasından sonra TAK-GO yüzeyinin kirleticiler tarafından bir örtü şeklinde kaplandıktan sonra mikroporların tamamen kaybolduğu ve mezoporların kısmen kaybolduğunu yapılan partikül boyut analizleri desteklemektedir.

TAK-GO adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine TAK-GO miktarının etkisi

Yapılan kesikli adsorpsiyon çalışmasında, TAK-GO adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklığa neden olan çözünmüş ve kolloidal organik maddelerin TAK-GO miktarına bağlı olarak zamana bağlı değişimi ve giderim verimleri araştırılmıştır. Deneyler pH 8.35 (doğal), 20°C sıcaklık ve 300 rpm karıştırma hızında gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmalarda yapılan jar testleri sonucu TAK-GO miktarı sırası ile 1, 2, 3, 4 ve 5 g/L olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık adsorpsiyon prosesinden sonra reaktörden alınan numuneler $45\text{ }\mu\text{m}$ 'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri Şekil 31'de verilmiştir.



Şekil 31. TAK-GO miktarına bağlı olarak sızıntı suundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, pH 8.35, T 20°C, karıştırma hızı 300 rpm)

1, 2, 3, 4 ve 5 g/L’lik TAK-GO partikül miktarları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%33.4, %38.5, %42.1, %46.8 ve %50.1), (%15.8, %19.6, %23.3, %27.4 ve %30.3) ve (%33.5, %39.5, %46.1, %49.7 ve %54.8) olarak belirlenmiştir (Şekil 31). En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 5g/L’lik TAK-GO miktarı için yaklaşık olarak sırası ile %50.1, %30.3 ve %54.8 olarak belirlenmiştir. Şekil 31’den görüldüğü gibi TAK-GO miktarının azalması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır. Adsorpsiyon prosesinde TAK-GO miktarındaki artış TAK-GO partiküllerinin yüzey alanı ve aktif sit bölgelerinde önemli bir artışa neden olmuştur. Sızıntı suyunda bulunan çözünmüş maddeler, kolloidal yapılar ve moleküler halde bulunan NH₃-N TAK-GO partikülleri üzerinde bulunan aktif bölgelere elektrostatik ve kimyasal olarak adsorplanarak zamanla giderim verimleri artmıştır (Deng *et al.* 2018; Reynier *et al.* 2015).

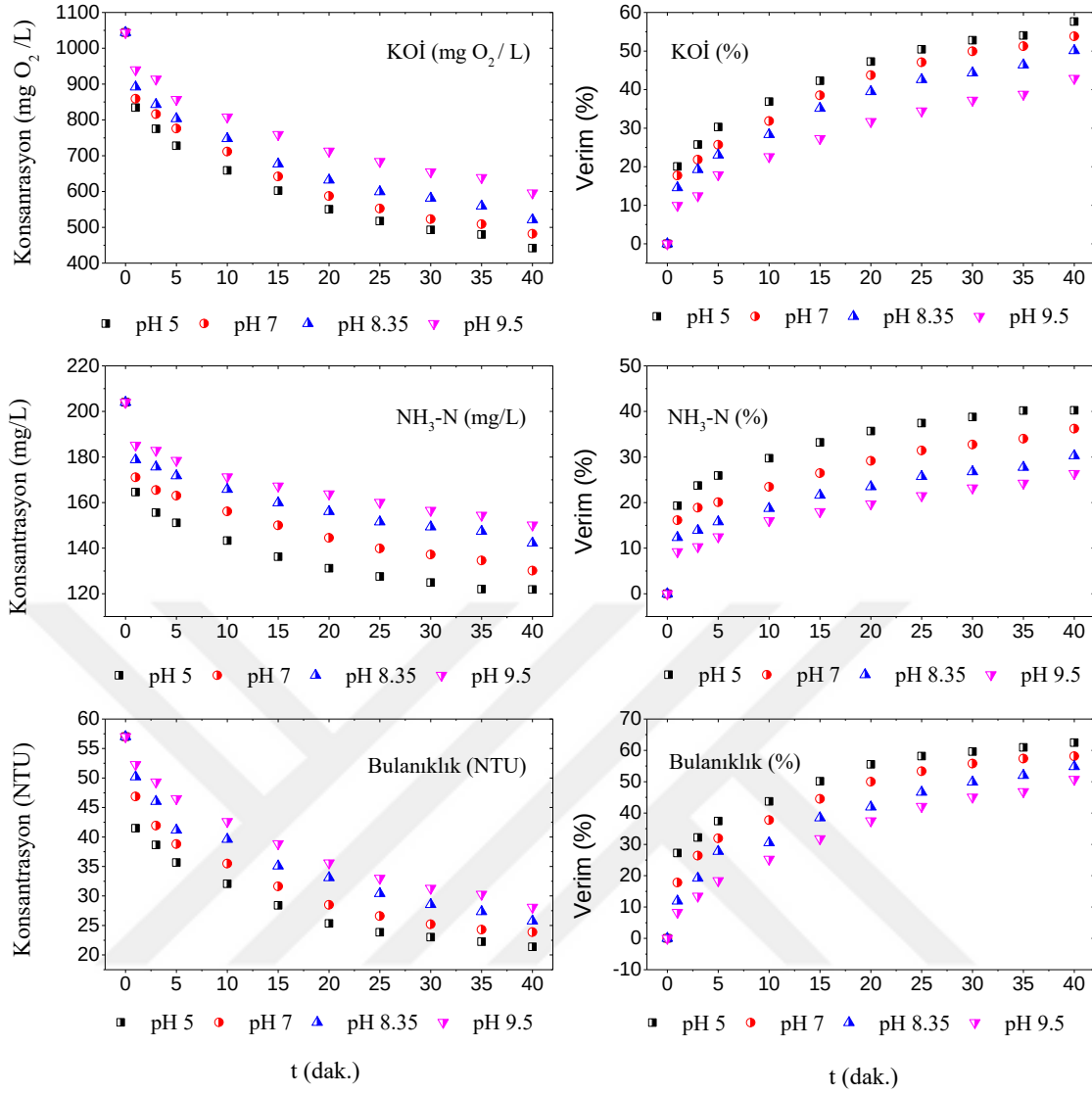
Adsorbent miktarı 1, 2, 3, 4 ve 5 g/L olduğu zaman TAK-GO adsorbenti ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri TAK adsorbenti ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile karşılaştırıldığında KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim yaklaşık olarak verimleri sırası ile (%4.8, %6.3, %7, %8 ve %8), (%5.7, %6.4, %7.9, %8.4 ve %8.7) ve (%5.8, %6.8, %7.6, %8.1 ve %8.3) olarak artmıştır.

TAK miktarına bağlı olarak gerçekleştirilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan çözünmüş ve kolloidal maddelerin giderimine yönelik ortaya konulan mekanizmalar literatürde yapılan çalışmalarla benzer özellik taşımaktadır (Gotvajin *et al.* 2009; Kinidi & Salleh, 2020; Mahdavi *et al.* 2018).

TAK-GO adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi

Toz aktif karbon-Grafen oksit (TAK-GO) kullanarak adsorpsiyon ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde çözelti başlangıç pH değerlerinin önemli bir rol oynadığı belirlenmiştir. Çözeltinin pH değeri adsorbentin yüzey yükünü etkileyen en önemli parametrelerden biridir (Renou *et al.* 2008; Wu *et al.* 2012).

Yapılan kesikli adsorpsiyon çalışmasında TAK-GO ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimlerinin başlangıç pH değerlerine bağlı olarak adsorpsiyon zamanına göre değişimleri ve giderim verimleri araştırılmıştır. Reaktörlere 5 g/L TAK-GO ilave edilerek 20°C sıcaklık ve 300 rpm karıştırma hızında deneyler gerçekleştirilmiştir. Araştırmada sızıntı suyunun başlangıç pH değeri sırası ile 5, 7, 8.35 (doğal pH) ve 9.5 olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık bir adsorpsiyon prosesinden sonra reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık değerleri belirlenmiş ve Şekil 32'te verilmiştir.



Şekil 32. Başlangıç pH değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK-GO 5g/L, T 20°C, karıştırma hızı 300 rpm).

5, 7, 8.35 ve 9.5'lik başlangıç pH değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%57.7, %53.8, %50.1 ve % 42.9), (%40.3, %36.2, %30.3 ve %26.4) ve (%62.5, %58.1, %54.8 ve %50.7) olarak belirlenmiştir (Şekil 32). En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 değerinde sırası ile %57.7, %42.1 ve %62.5 olarak belirlenmiştir. Şekil 32'den görüldüğü gibi pH değerlerinin artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır. Sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık giderim verimlerinin asidik (pH 5) değerinde artmasının nedeni: Düşük pH değerlerinde H⁺ iyonları konsantrasyonunun artması ile TAK yüzeyinde bulunan negatif yüklerin H⁺ iyonları tarafından nötr veya pozitif hale gelmesi ve çözeltide bulunan negatif yüklü kolloidal yapıların H⁺ iyonları tarafından destabilize edilerek kolloidal tanecik yüzeyinde difüze olmuş çift tabakanın sıkıştırılması nedeniyle gerçekleştiği söylenebilir. Bu nedenle çözelti içerisinde bulunan

öznmş maddeler ve kolloidal yapılar elektrostatik ve kimyasal etkileşimle TAK-GO yüzeyine adsorbe olmuşlardır. Öte yandan, yüksek pH değerlerinde sızıntı suyu ortamında bulunan OH⁻ iyonları konsantrasyonunun artması ile sızıntı suyu içerisinde bulunan negatif yüklü yüzeyler ve OH⁻ iyonları arasındaki iyonik itme kuvvetleri artarak KOİ ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır.

Düşük pH değerlerinde (pH<6.5) NH₃'ın iyonik olmayan yapısı sızıntı suyu ortamında H⁺ iyonları ile reaksiyon sonucunda NH₄⁺ iyonuna dönüşmektedir. pH 5 değerinde TAK-GO ile amonyak giderimi elektrostatik etkileşim sonucu adsorpsiyon/iyon değişimi mekanizması ile gerçekleştiğı düşünölmektedir. Sızıntı suyunda yüksek pH değerlerinde ise (pH>7) sızıntı suyu ortamında baskın tür ise iyonik olmayan NH₃ türüdür. Kimyasal olarak aktive edilmiş TAK ile GO geniş yüzey alanı, porlu yapı ve zengin yüzey kimyası özelliğine sahiptir (Seredych *et al.* 2009). TAK-GO partiküllerinin yüzey yapısında çok sayıda çift bağ içeren yapılar ve hidroksil grupları mevcuttur. Yüksek pH değerlerinde çözelti ortamında bulunan NH₃'ın bu yüzey gruplar tarafından adsorplandığı söylenebilir. En genel olarak hazırlanmış aktif karbonlarda ise NH₃ aktif karbon yüzeyine hidrojen bağı veya oldukça zayıf olan lewis asit-baz etkileşimi ile yüzeye adsorplandığı söylenebilir. Bundan dolayı pH değerlerinin artması ile NH₃'ın adsorpsiyonu azalmıştır.

pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerinde TAK-GO adsorbenti ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri TAK adsorbenti ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile karşılaştırıldığında KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%9.9, %9.2, %8.2 ve % 4.2), (%13.6, %11.4, %8.4 ve %8.2) ve (%10.7, %9.9, %8.9 ve %7.22) olarak artış göstermiştir.

Başlangıç pH değerlerine bağılı olarak sızıntı suyundan adsorpsiyon ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim mekanizmaları ile ilgili yapılan açıklamalar literatürde yapılan diğerk çalışmalarla uyumluluk göstermektedir (Deng *et al.* 2018; Ferraz & Yuan, 2020; Karri *et al.* 2018; Mahdavi *et al.* 2018; Parande *et al.* 2009).

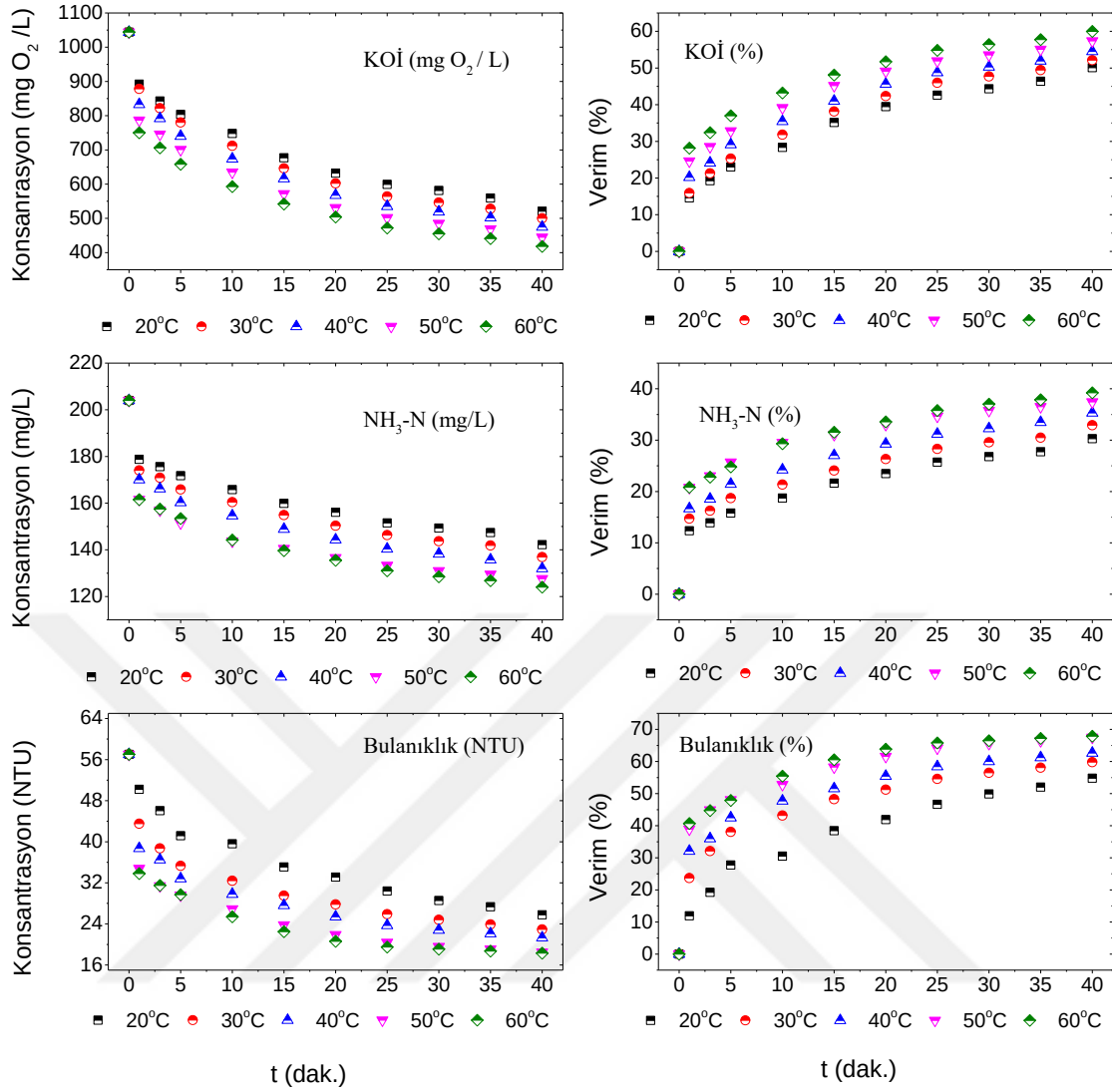
pH ile ilgili yapılan açıklamalara ilaveten TAK-GO partiküllerinin çözeltinin pH değerinden nasıl etkilendiğini ve bunun sonucunda nasıl bir davranış sergileyebileceklerini belirlemek için TAK-GO partiküllerinin pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerinde adsorpsiyondan önce ve sonra zeta potansiyel analizleri yapılmıştır. TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerinde zeta potansiyel değerleri sırası ile 139.8.3, 0,0 ve 0 mV olarak bulunmuştur. Adsorpsiyondan sonra TAK-GO partiküllerinin pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerinde zeta potansiyelleri ise sırası ile -545.2, -404.3, -410.5 ve -414.2 mV olarak belirlenmiştir. Asidik pH değerinde çözünmüş organik madde ve negatif yüklü kolloidal maddelerin pozitif yüklü

TAK-GO partiküllerinin yüzeyine adsorpsiyonu artmış ve bunun sonucunda ise sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. Adsorpsiyondan önce çözelti pH değerlerinin artması sonucu partiküllerin yüzey yükü negatif hale gelmiştir. Ancak pH 8.35 ve 9.5 değerlerinde negatif yük şiddetinin artmasına rağmen adsorpsiyon verimlerinde bir azalma meydana gelmiştir. Bu duruma pH 8.35 ve 9.5 değerlerinde çözelti ortamında artan OH⁻ iyon konsantrasyonunun TAK-GO partikül yüzeyinde bulunan aktif sitlerle etkileşimi ve OH⁻ iyonlarının negatif yüklü kolloidleri elektrostatik olarak itmesinin neden olduğu düşünülmektedir. Bundan dolayı pH 8.35 ve 9.5 değerlerinde sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır.

TAK-GO adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine çözelti başlangıç sıcaklığın etkisi

Gerçekleştirilen kesikli adsorpsiyon çalışmalarında çözelti sıcaklığının TAK-GO ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimleri ve giderim verimleri araştırılmıştır.

Adsorpsiyon deneyleri pH 8.35 (doğal), 5 g/L TAK-GO miktarında ve 300 rpm karıştırma hızında gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmalarda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimleri 20, 30, 40, 50 ve 60°C gibi farklı sıcaklık değerlerinde araştırılmıştır. 40 dakikalık bir adsorpsiyondan sonra reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiş ve Şekil 33'te gösterilmiştir.



Şekil 33. Başlangıç sıcaklık değerlerinin sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarına ve giderim verimlerine etkisi (KOİ 1047 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, pH 8.35, TAK-GO miktarı 5 g/L, karıştırma hızı 300 rpm)

20, 30, 40, 50 ve 60°C'lik sıcaklık değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri yaklaşık olarak sırası ile (%50.1, %52.1, %54.5, %57.4 ve %58.8), (%30.3, %32.9, %35.3, %37.4 ve %40.2) ve (%54.8, %59.8, %62.6, %67.5 ve %67.9) olarak belirlenmiştir (Şekil 33). En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 60°C için sırası ile %58.8, %40.2 ve %67.9 olarak belirlenmiştir. Şekil 33'ten görüldüğü gibi çözelti sıcaklığının artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. 20, 30, 40, 50 ve 60°C başlangıç sıcaklık değerlerinde TAK-GO adsorbenti ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri TAK adsorbenti ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile karşılaştırıldığında KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%8.2, %8.6, %8.8, %10.5 ve %12.9), (%8.4, %9.3, %9.8, %10.2 ve %10.8) ve (%8.9, %9.3, %10, %10.3 ve %13.5) olarak artmıştır.

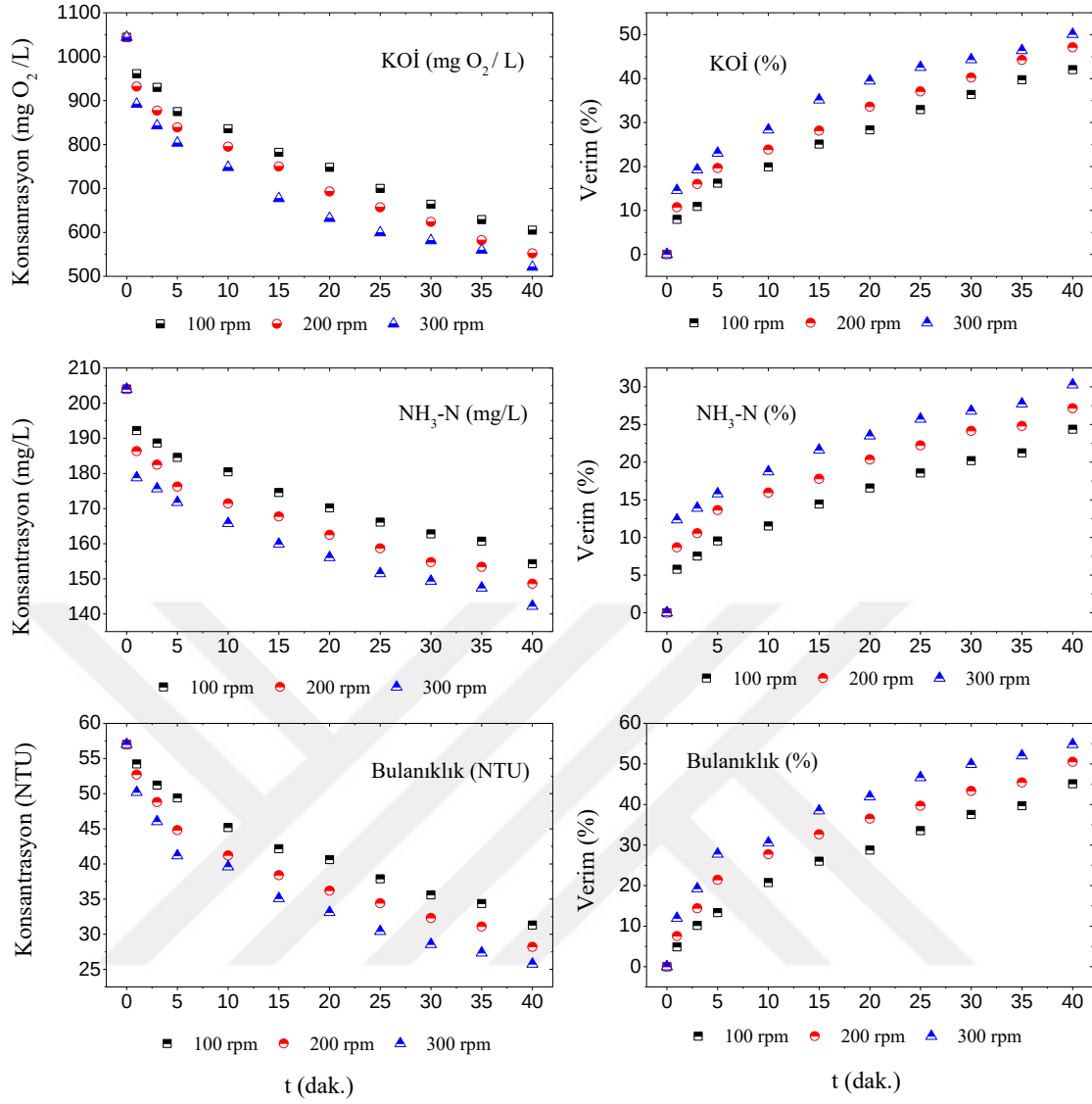
KOİ ve bulanıklık giderim verimlerinde ki artış, adsorpsiyon prosesinin endotermik yapısını göstermektedir. Bu artış, yüzeyde mevcut olan aktif bağlama bölgelerinde ki bir artıştan veya adsorbenti çevreleyen sınır tabakasının kalınlığındaki bir azalmadan kaynaklanabileceği söylenebilir (X. Zhang *et al.* 2016). Artan çözelti sıcaklığı, KOİ ve bulanıklığa neden olan maddelerin yüksek sıcaklıklarda kinetik enerjilerinin artmasından dolayı TAK-GO partiküllerinin gözenekleri içerisindeki taşınımının artması ile açıklanabilir (Kaur *et al.* 2016).

Başlangıç sıcaklık değerlerinin artması ile NH₃-N giderim verimleri de artmıştır. Bu artışa NH₃'ın sudaki çözünürlüğünün çözelti sıcaklığının artması ile azalması sonucu NH₃-N'nin çözeltiyi terk etmesi ve pH 8.35 değerinde amonyağın TAK-GO adsorbenti yüzeyinde bulunan aktif sitlere bağlanması ile açıklanabilir. Sonuçta çözelti sıcaklığının artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.

Başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak sızıntı suyundan adsorpsiyon ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile ilgili literatürde yapılan diğer çalışmalar benzer mekanizmalar ile açıklanmıştır (Foo *et al.* 2013; Joseph *et al.* 2021; Haiwei Liu *et al.* 2010; Mahdavi *et al.* 2018).

TAK-GO adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderime karıştırma hızının etkisi

Gerçekleştirilen kesikli adsorpsiyon çalışmalarında TAK-GO ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi zamana bağlı olarak incelenmiş ve KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait konsantrasyon değişimleri ve giderim verimleri Şekil 34 ile gösterilmiştir. Deneyler pH 8.35 (doğal), 5 g/L TAK-GO miktarında ve T 20°C sıcaklıkta gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmalarda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimleri 100, 200 ve 300 rpm gibi farklı karıştırma hızlarında araştırılmıştır. 40 dakikalık bir adsorpsiyon prosesinden sonra reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, değerleri belirlenmiş ve Şekil 34'te verilmiştir.



Şekil 34. Farklı karıştırma hızlarında sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1047 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, TAK 5 g/L, pH 8.35)

100, 200 ve 300 rpm’lik karıştırma hızı değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%42.1, %47.2 ve %50.1), (%24.4, %27.2 ve %30.3) ve (%44.2, %49.5 ve %53.4) olarak belirlenmiştir (Şekil 34). En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 300 rpm için sırası ile %50.1, %30.3 ve %53.4 olarak belirlenmiştir. Şekil 34’ten görüldüğü gibi çözelti karıştırma hızının artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. Karıştırma hızının artması TAK-GO adsorbenti ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık neden olan maddelerin zamanla çözeltide homojen dağılımını teşvik eder ve arıtım süresince homojen konsantrasyonun korunmasına yardımcı olur. Ayrıca, karıştırma hızı, sınır tabakası kalınlığını azaltır ve dış film transfer katsayısını artırmaktadır. Yüksek karıştırma hızlarında daha hızlı hareket eden TAK-GO partikülleri ve kirletici maddeler birbirleri ile daha çok temas ederek çarpışma olasılıklarını artırır (Sohbi Bellebia *et al.* 2012).

Bu durum TAK-GO partiküllerinin birim ağırlığı tarafından adsorplanan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık miktarını artırarak sızıntı suyundan bu kirleticilerin giderim verimlerinde bir artışa neden olmuştur.

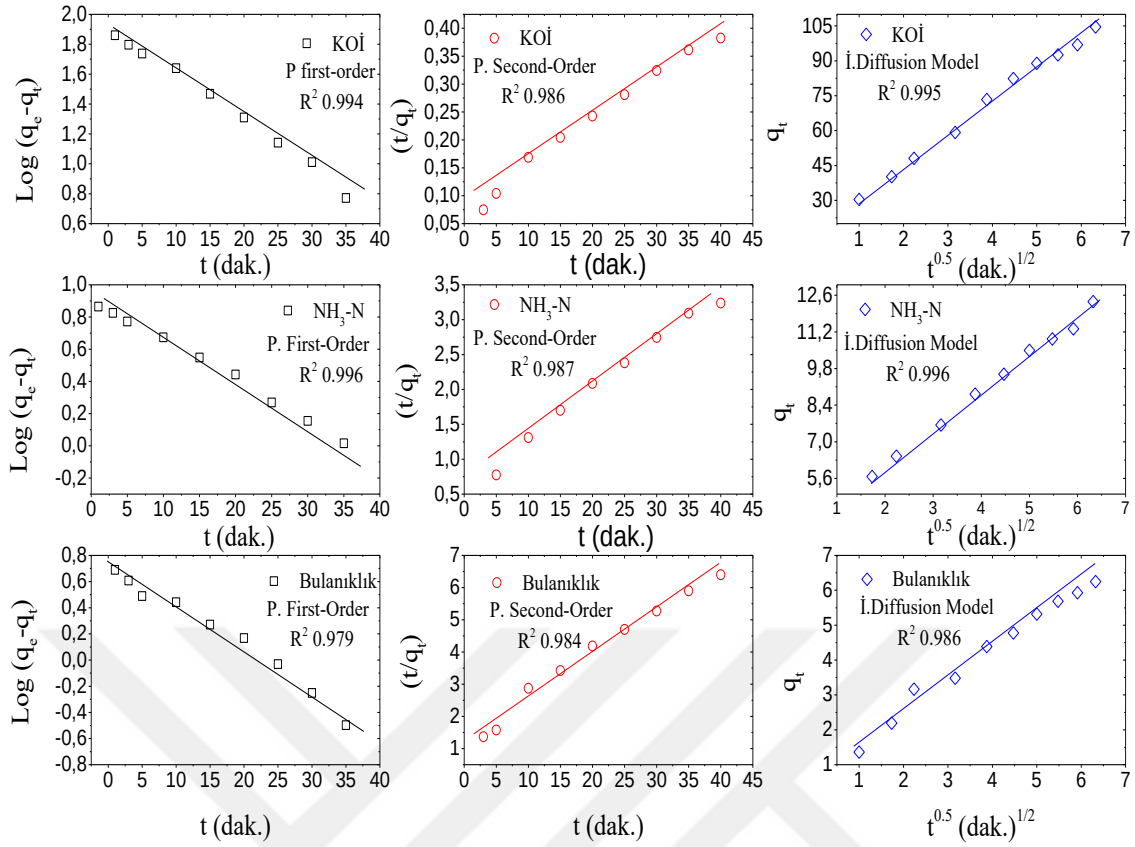
100, 200 ve 300 rpm değerlerinde TAK-GO adsorbenti ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri TAK adsorbenti ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile karşılaştırıldığında KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%6.3, %6.6 ve %8.2), (%7.7, %8.1 ve %8.4) ve (%5.3, %6 ve %7.5) olarak artmıştır.

Karıştırma hızı değerlerine bağlı olarak sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim mekanizmaları literatürde yapılan diğer çalışmalarda açıklanan mekanizmalarla benzerlik gösterdiği ortaya konulmuştur (Devi, 2010; Devi *et al.* 2008; Devi & Dahiya, 2006, 2008).

Düzenli deponi sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri, denge izotermi ve termodinamik Parametreler

TAK-GO partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetiklerinin belirlenmesinde pseudo-first-order (yalancı birinci mertebe), pseudo-second-order (yalancı ikinci mertebe) ve intraparticle diffusion (partikül içi difüzyon) eşitlikleri kullanıldı ve bu eşitliklere ait grafikler Şekil 35’de gösterildi.

Sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ gideriminin yüksek korelasyon (R^2 0.995) katsayısından dolayı partikül içi difüzyon modeline uyduğu belirlendi. Sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile NH₃-N giderim kinetikleri ise yüksek korelasyon (R^2 0.996 ve R^2 0.996) değerlerinden dolayı hem pseudo- first-order hem de partikül içi difüzyon modele uyduğu belirlendi.



Şekil 35. TAK-GO ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri (KOİ 1047 mg O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L, Karıştırma hızı 300 rpm, pH 8.35, T 20°C)

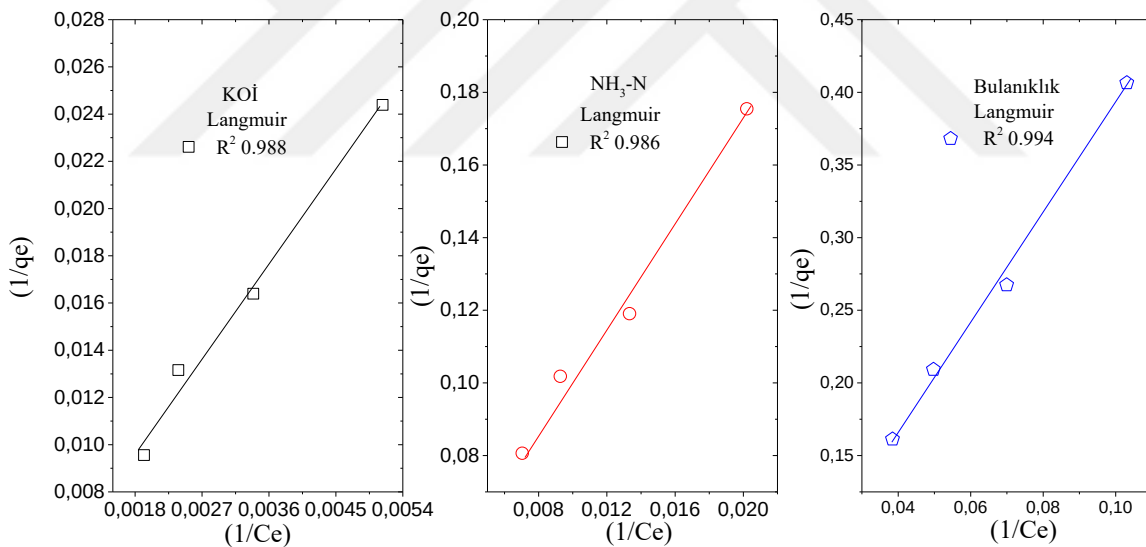
Ayrıca sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile bulanıklık giderimi ise R² 0.986 olmasından dolayı partikül içi difüzyon modele uyduğu belirlenmiştir. Sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim kinetiklerine ait adsorpsiyon hız sabiti değerleri ve korelasyon katsayıları Tablo 9’da verilmiştir.

Tablo 9. KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderim Kinetiklerine Ait Adsorpsiyon Hız Sabiti ve R² Değerleri

KOİ								
Pseudo-first-order			Pseudo-second-order			Partikül içi difüzyon		
k ₁ (1/dk.)	q _e (mg/g)	R ²	k ₂ (g/mg.dk)	q _e (mg/g)	R ²	k _{id} (mg/g.dk ^{1/2})	C	R ²
0.073	89.2	0.950	0.00079	123.5	0.966	13.9	14.41	0.994
NH ₃ -N								
k ₁ (1/dk.)	q _e (mg/g)	R ²	k ₂ (g/mg.dk)	q _e (mg/g)	R ²	k _{id} (mg/g.dk ^{1/2})	C	R ²
0.0644	9.32	0.947	0.00684	14.74	0.975	1.452	2.946	0.991
Bulanıklık								
k ₁ (1/dk.)	q _e (mg/g)	R ²	k ₂ (g/mg.dk)	q _e (mg/g)	R ²	k _{id} (mg/g.dk ^{1/2})	C	R ²
0.0815	5.54	0.970	0.0153	7.412	0.986	0.899	0.078	0.985

Adsorpsiyon izoterm modelleri, sabit sıcaklıkta adsorban yüzeyindeki adsorbat miktarı ile çözeltideki adsorbat konsantrasyonu arasındaki denge ilişkileridir. İzoterm modellerinden maksimum adsorpsiyon kapasitesi belirlenebilir. İzoterm denge sabitleri, kullanılan adsorbanın ağır metal giderim yeteneği ya da ağır metal iyonlarının birim kütlesini uzaklaştırmak için gereken adsorban miktarı hakkında bilgi vermektedir.

Sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde elde edilen deneysel veriler Langmuir, Freundlich, Temkin ve Dubinin-Radushkevich (D-R) denge izotermi gibi dört farklı modele uyarlanmıştır. Sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde hangi modelin daha uygun olduğunu belirlemek için bağımlı ve bağımsız değişkenler arasındaki ilişkinin büyüklüğünü gösteren korelasyon katsayısı (R^2) değerinden yararlanılmıştır. Sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde en uygun izoterm Langmuir izotermi olarak belirlenmiş ve Şekil 36'da gösterilmiştir. Diğer izoterm grafikleri R^2 değerlerinin Langmuir izotermi R^2 değerinden küçük olduğu için şekille gösterilmemiştir ancak bu izotermilere ait R^2 değerleri ve izoterm sabitleri Tablo 10'da verilmiştir.



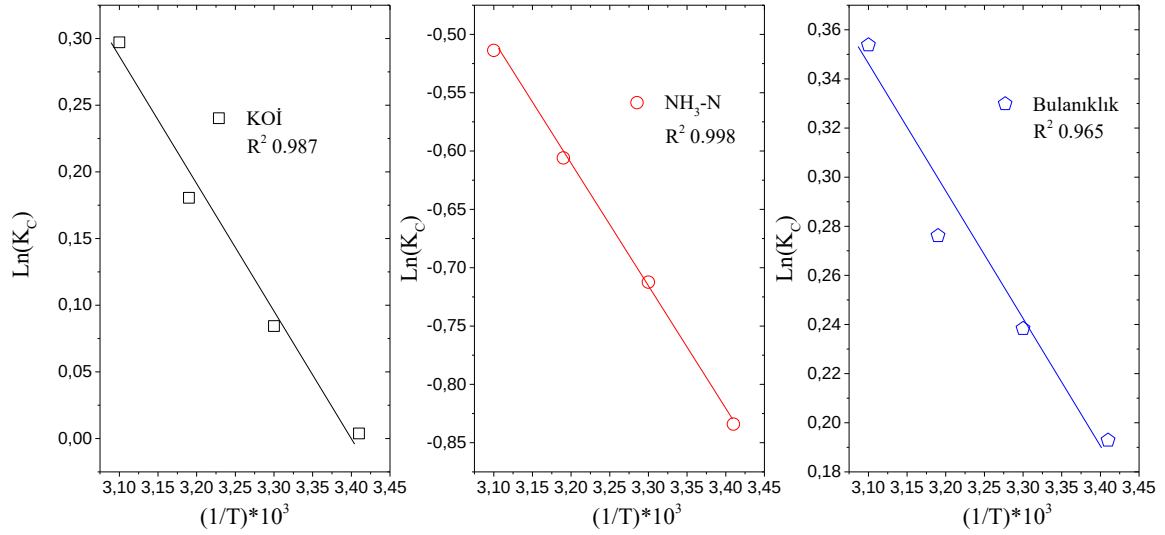
Şekil 36. TAK-GO ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanık giderimine ait Langmuir izotermi (TAK-GO 5 g/L, Karıştırma hızı 300 rpm, pH 8.35, T 20°C)

Sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine yönelik Langmuir izotermine ait korelasyon katsayıları sırası ile R^2 0.988, 0.986 ve 0.994 olarak belirlenmiştir. Sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine yönelik yapılan denge çalışmaları ile ilgili izoterm parametrelerine ait sayısal değerler Tablo 10'da verilmiştir.

Tablo 10. Sızıntı Suyundan TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimi ile İlgili İzoterm Parametreleri ve Korelasyon Katsayıları

Kirletici	İzoterm	İzoterm parametreleri			R ²
KOİ	Langmuir	K _L (L/mg)	Q _m (mg/g)		0.988
		0.00038	588		
	Freundlich	K _f (L/mg)	n		0.981
		0.344	1.104		
NH ₃ -N	Temkin	B ₁	K _T (L/mg)		0.937
		60.3	0.0096		
	D-R	β	Q _m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.905
		0.006	102.5	9.12	
Bulanıklık	Langmuir	K _L (L/mg)	Q _m (mg/g)		0.986
		0.0037	36.5		
	Freundlich	K _f (L/mg)	n		0.980
		0.34	1.36		
NH ₃ -N	Temkin	B ₁	K _T (L/mg)		0.979
		6.32	0.05		
	D-R	β	Q _m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.951
		0.0004	12.91	35.35	
KOİ	Langmuir	K _L (L/mg)	Q _m (mg/g)		0.995
		0.0045	58.47		
	Freundlich	K _f (L/mg)	n		0.993
		0.312	1.09		
Bulanıklık	Temkin	B ₁	K _T (L/mg)		0.983
		3.67	0.19		
	D-R	β	Q _m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.926
		0.00002	6.48	158.2	

TAK-GO adsorpsiyonuna ait standart serbest entalpi (ΔH°), standart serbest entropi (ΔS°) ve standart serbest gibbs (ΔG°) enerji değerlerinin belirlenmesinde başlangıç değeri T 20, 30, 40 ve 50°C olan sızıntı suyu sıcaklık değerlerinde adsorpsiyon çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Sızıntı suyunun KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyon değerleri sırası ile 1044 mg O₂/L, 204 mg/L ve 57 NTU idi. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık kirletici parametrelerine ait dengedeki Kc dağılım katsayılarının sıcaklıkla artması adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğunu göstermektedir. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde TAK-GO adsorpsiyon prosesine ait ΔH° , ΔS° ve ΔG° değerlerinin belirlenmesinde (1/T) değerlerine karşı Ln (Kc) değerlerinin grafiği çizilmiş ve Şekil 37’de verilmiştir.



Şekil 37. TAK-GO adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık giderimine yönelik $(1/T)$ değerlerine karşı $\ln(K_c)$ grafikleri

Ayrıca TAK-GO adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimi ile ilgili termodinamik parametre değerleri Tablo 11’de özetlenmiştir. Tablo 11’te verilen KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait ΔH° değerlerinin pozitif olmasından dolayı adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğu anlaşılmaktadır. Tablo 10’daki ΔS° değerlerinin pozitif çıkmasının anlamı TAK-GO ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık gideriminden sonra TAK-GO partiküllerinin yüzeyinde meydana gelen tutunmadan sonra partiküllerin düzensizliğinin arttığı söylenebilir. Ayrıca ΔG° değerlerinin pozitif ve negatif anlamı TAK-GO adsorpsiyonunun kendiliğinden meydana gelip gelemeyeceğini ifade etmektedir.

Tablo 11. Sızıntı Suyundan TAK Adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderimine ait ΔG° , ΔH° and ΔS° Değerleri

ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	KOİ ΔG° (kJ/mol)			
7.650	0.026	293 K	308 K	313 K	323 K
		0.032	-0.228	-0.488	-0.748
ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	$\text{NH}_3\text{-N}$ ΔG° (kJ/mol)			
8.405	0,022	293 K	308 K	313 K	323 K
		1.959	1.739	1.159	1.299
ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	Bulanıklık ΔG° (kJ/mol)			
4.077	0.0154	293 K	308 K	313 K	323 K
		-0.435	-0.589	-0.743	-0.897

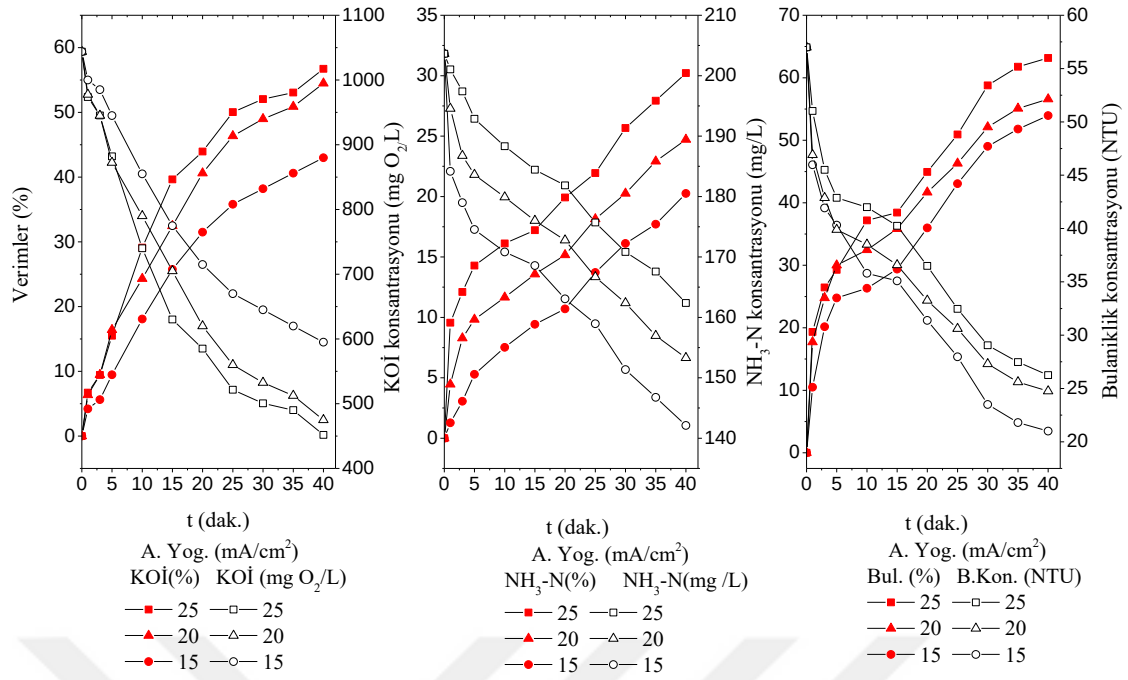
Elektrokoagülasyon Prosesi ile Sızıntı Suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimine Deneysel Parametrelerin Etkisinin İncelenmesi

Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine akım yoğunluğunun etkisi

Elektrokoagülasyon prosesinde sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde koagülant dozu açısından akım yoğunluğu önemli bir parametre olarak dikkate alınmaktadır (Xiangdong Li *et al.* 2011). 15, 20 ve 25 mA/cm² 'lik akım yoğunluklarının sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 38'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. 15, 20 ve 25 mA/cm² akım yoğunluğu değerleri için 40 dakikalık elektrokoagülasyon prosesi sonucu çıkış suyu pH değerleri sırası ile 8.97, 9.36 ve 9.83 olarak belirlenmiştir. 15, 20 ve 25 mA/cm² 'lik akım yoğunlukları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%43, %55 ve %57), (%20, %25 ve %30) ve (%54, %56 ve %63) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 25 mA/cm² değerindeki akım yoğunluğu için sırası ile %57, %30 ve %63 olarak elde edilmiştir. Şekil 38'dan görüldüğü gibi akım yoğunluğunun artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. Ayrıca, 15, 20 ve 25 mA/cm² 'lik akım yoğunlukları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu BOİ₅ konsantrasyonları ve BOİ₅/KOİ oranları sırası ile (144, 208 ve 296 mg O₂/L) ve (0.24, 0.46 ve 0.66) olarak belirlenmiştir. 20 ve 25 mA/cm² 'lik akım yoğunlukları için BOİ₅/KOİ oranları tasfiye edilmemiş atıksular için 0.4-0.8 standart limit değerleri arasındadır. olup kanalizasyon sistemlerine deşarjı için uygun bir proses olduğundan söz edilebilir.

Akım yoğunluğu alüminyum anot çözünmesinden kaynaklanan sadece koagülant miktarını değil, aynı zamanda kabarcık üretim hızı ve boyutunu da belirlemektedir (Holt *et al.* 2002; Khosla *et al.* 1991). Bu nedenle, akım yoğunluğunun sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gibi kirletici maddelerin uzaklaştırılmasında önemli bir etkisi söz konusu olmuştur.

Elektrokoagülasyon prosesi sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artması, koagülant ve kabarcık oluşum hızının artmasıyla kolayca açıklanabilir.



Şekil 38. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı akım yoğunluklarında sızıntı suyunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0, t 40 dak. ve elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Bu nedenle akım yoğunluğunun artması ile daha verimli ve daha hızlı bir kirletici giderimi gerçekleşmiştir (Adhoum & Monser, 2004; Holt *et al.* 2002). Elektrokoagülasyon hücresi içinde belirli bir zamanda üretilen alüminyum ve hidroksit iyonlarının miktarları Faraday yasası ile ilişkilendirilmektedir.

$$m = \frac{ItM}{zF} \quad (44)$$

Burada I akım yoğunluğu,

t zaman,

M alüminyum veya hidroksit iyonunun moleküler ağırlığıdır (g mol⁻¹),

z reaksiyonda transfer edilen elektron sayısı ve

F Faraday sabitidir (96486 C mol⁻¹).

Akım yoğunluğunun artması ile anottaki alüminyumun çözünme eğiliminin artarak çözelti ortamında Al(OH)₃ katısının daha hızlı ve daha fazla miktarda oluşumuna neden olduğu Eşitlik 44 ile anlaşılmaktadır. Oluşan Al(OH)₃ katısının çözelti ortamında bulunan çözünmüş maddelerle etkileşimi ve kolloidal yapıları bir ağ şeklinde sararak çözelti ortamından uzaklaştırdığı düşünülmektedir. Ayrıca, artan akım yoğunluğu ile H₂ gazı kabarcık oluşum hızı artmış ancak kabarcık oluşum boyutu akım yoğunluğunun artması ile azalmıştır. Bu iki parametrenin kirleticilerin H₂ gazı ile flotasyonuna katkıda bulunarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artmasına neden olmuştur. Ayrıca sızıntı suyundan NH₃-N

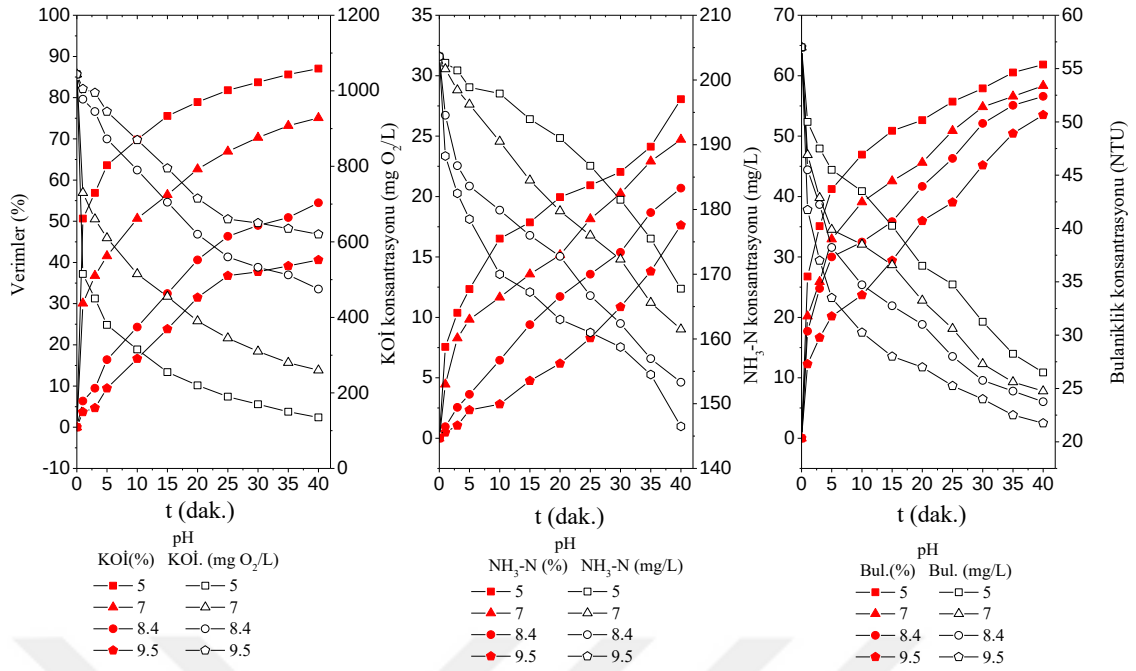
gideriminde akım yoğunluğunun artması çözeltideki pH değerlerinin artmasına katkıda bulunmuştur. Arıtım prosesinde pH değerlerinin yükselmesi NH₃-N'nun oluşan H₂ gazı kabarcıkları ve ortamdaki karıştırma yardımıyla çözeltiliye transfer olan hava vasıtası ile birlikte ortamdan sıyrıldığı düşünülmektedir.

Akım yoğunluğuna bağlı olarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderime yönelik ortaya konulan mekanizmalar literatürde gerçekleştirilen diğer çalışmalara yönelik açıklanan mekanizmalara benzer özellikler göstermektedirler (Khandegar & Saroha, 2012; Malinovic *et al.* 2016; Naje *et al.* 2019; Niza *et al.* 2021; Rafiee *et al.* 2020; Rusdianasari *et al.* 2017).

Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi

Elektrokoagülasyon prosesinde sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde çözelti pH değeri önemli bir rol oynadığı bilinmektedir (X. Chen *et al.* 2000). 5, 7, 8.4 ve 9.5'lik başlangıç pH değerlerinin sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 39'de verilmiştir. Deneysel çalışmalar akım yoğunluğu 20 mA/cm², başlangıç sıcaklığı 20°C, elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. 5, 7, 8.35 ve 9.5'lik başlangıç pH değerleri için 40 dakikalık elektrokoagülasyon prosesi sonucu çıkış suyu pH değerleri sırası ile 7.8, 8.8, 9.2 ve 10.1 olarak belirlenmiştir. Katot elektrot yüzeyinde suyun indirgenmesi ile oluşan OH⁻ iyonları konsantrasyonunun artması arıtılmış sızıntı suyunun nihai pH değerlerinin artmasına neden olduğu söylenebilir (Aswathy *et al.* 2016). Bu reaksiyon eşitlik 45 ile gösterilmiştir.

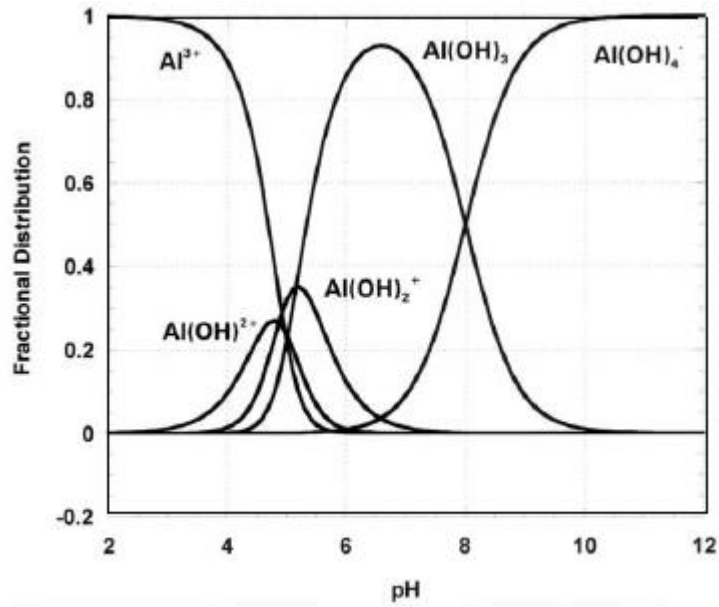




Şekil 39. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı başlangıç pH değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, akım yoğunluğu 20 mA/cm², T °C, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0, t 40 dak. ve elektrotlar arası mesafe 1 cm)

5, 7, 8.35 ve 9.5’lik başlangıç pH değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%87, %75, %55 ve %41), (%18, %21, %25 ve %28) ve (%62, %58, %57 ve %54) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile pH 5, pH 9.5 ve pH 5 değerlerinde %87, %28 ve %62 olarak belirlenmiştir. Şekil 39’dan da görüldüğü gibi başlangıç pH değerinin artması ile KOİ ve Bulanıklık giderim verimleri azalmıştır. NH₃-N giderim verimi ise pH değerinin artması ile artmıştır. Ayrıca, pH 5 ve 8.35 değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu BOİ₅ konsantrasyonları ve BOİ₅/KOİ oranları sırası ile (85.75 ve 208 mg O₂/L) ve (0.64 ve 0.44) olarak belirlenmiştir. pH 5 ve 8.35 değerlerinde elektrokoagülasyon çıkış suları için BOİ₅/KOİ oranları tasfiye edilmemiş atıksular için 0.4-0.8 standart limit değerleri arasında bulunmaktadır. Bu nedenle elektrokoagüle olmuş sızıntı suları kanalizasyon sistemlerine deşarj edilebilir.

Sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık giderim verimleri en yüksek pH 5 değerinde elde edilmiştir. Sızıntı suyundan pH değerinin KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisini açıklayabilmek için deiyonize suda hidrolize olan alüminyum türlerinin Şekli 40’da verilen diyagramından yararlanılmıştır.



Şekil 40. pH'nın fonksiyonu olarak deiyonize suda alüminyumun türlerinin dağılımı (Elkins & Nelson, 2002)

Şekil 40'dan görüldüğü gibi pH 5-7 değerlerinde alüminyum hidrolize olarak yüzeyindeki kolloidal yapıları adsorplamada etkili olan Al^{3+} , Al(OH)^{2+} ve Al(OH)_2^+ iyonlarını oluşturma ve çoğunlukla katı çamur Al(OH)_3 formunda bulunarak destabilize olmuş kolloidal maddeleri ağ şeklinde sararak çökeltme eğiliminde bulunmaktadır (Bayramoglu *et al.* 2004; Mahmad *et al.* 2016; Marañón *et al.* 2008). Bu nedenle KOİ ve bulanıklık giderim verimleri pH değerinin azalması ile artmıştır. pH 8.35 ve pH 9.5 değerlerinde ise hidrolize olan alum katı çamur Al(OH)_3 ve Al(OH)_4^- iyonları formundadır. Negative yüklü Al(OH)_4^- monopolimerinin yüksek pH değerlerinde oluşması KOİ ve bulanıklık giderim verimlerini azaltmıştır (Akyol, 2012).

Sızıntı suyundan $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim verimlerine en yüksek pH 9.5 ve pH 8.35 başlangıç pH değerlerinde ulaşılmıştır. Arıtım sürecinde hidroliz sonucunda oluşan Al(OH)_3 katısının $\text{NH}_3\text{-N}$ ile etkileşimi ve katotta oluşan H_2 gazı kabarcıkları ve ortamdaki çözeltiyi karıştırma amacıyla çözeltiye transfer olan havanın $\text{NH}_3\text{-N}$ 'nin alkali ortamdan uzaklaşmasına neden olduğu söylenebilir. pH 5 ve pH 7 değerlerinde çözelti ortamında bulunan Al^{3+} , Al(OH)^{2+} , ve Al(OH)_2^+ iyonları ve Al(OH)_3 katısı $\text{NH}_3\text{-N}$ 'nin adsorpsiyonla ortamdaki uzaklaştırılmasına neden olduğu ifade edilebilir. Adsorpsiyonla ise $\text{NH}_3\text{-N}$ 'nin sızıntı suyundan giderim verimleri pH değerinin azalması ile Şekil 40'da da görüldüğü gibi azalmıştır.

Başlangıç pH değerlerine bağlı olarak sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine yönelik ortaya konulan mekanizmalar literatürde gerçekleştirilen diğer çalışmalara yönelik açıklanan mekanizmalarla ilişkili olduğu söylenebilir (Babu *et al.* 2007; Hamid *et al.* 2021; Xiangdong Li *et al.* 2011; Sahu *et al.* 2014; Zailani *et al.* 2018).

Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklık değerlerinin etkisi

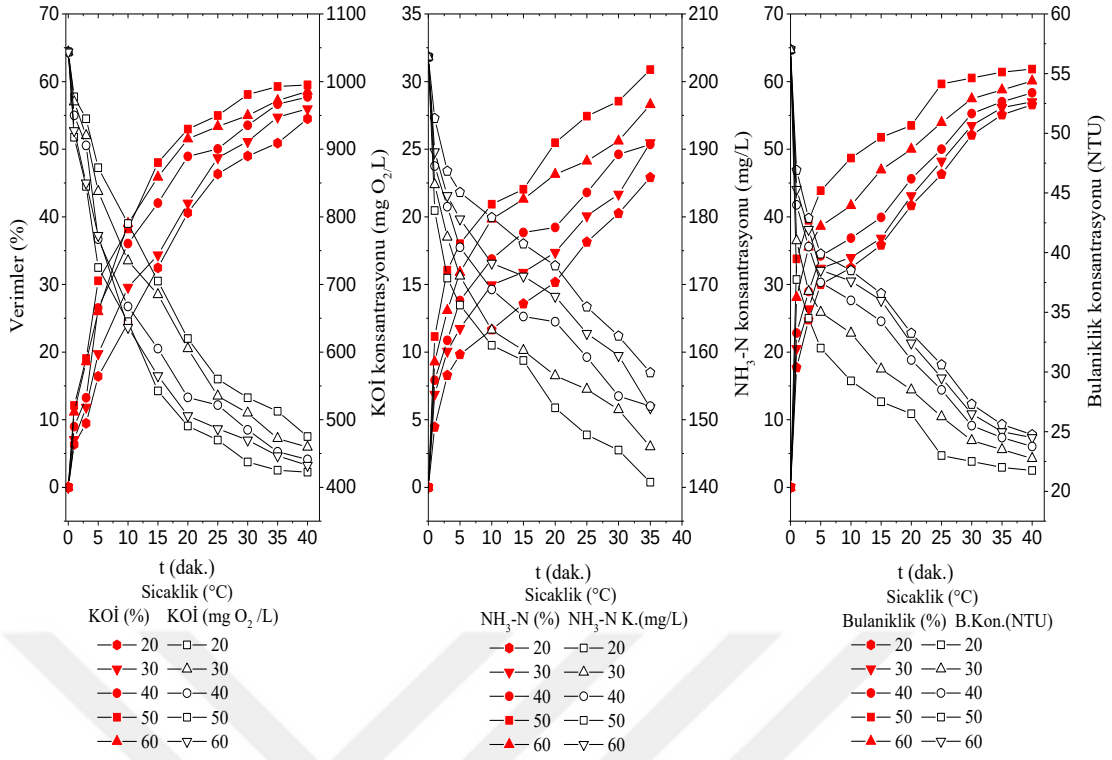
Elektrokoagülasyon 100 yıldan fazladır var olmasına rağmen sıcaklığın bu teknoloji üzerindeki etkisi çok fazla araştırılmamıştır (G. Chen, 2004). 20, 30, 40, 50 ve 60°C başlangıç sıcaklıklarının sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 6.4’ te verilmiştir. Deneysel çalışmalar doğal pH 8.35, akım yoğunluğu 20 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm’lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir.

20, 30, 40, 50 ve 60°C’lik başlangıç sıcaklık değerleri için 40 dakikalık bir EK-TAK kombine prosesi sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%55, %56, %58, %60 ve %59), (%23, %25, %26, %31 ve %28) ve (%56, %57, %58, %62 ve %60) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 50°C’de sırası ile %60, %31 ve %62 olarak belirlenmiştir. Şekil 41’den görüldüğü gibi sıcaklık değerleri 20°’ten 50°C’e yükselmesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmış ancak başlangıç sıcaklık değeri 50°’ten 60°C’e çıkınca oluşan flokların parçalanması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde bir azalma belirlenmiştir.

Diğer kimyasal reaksiyon hızlarında olduğu gibi elektrokimyasal reaksiyon hızı da çözelti sıcaklığının artması ile artmaktadır (Modirshahla *et al.* 2008). Sıcaklığın artması ile sızıntı atıksuyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artması aşağıdaki gibi açıklanabilir (Al-Raad *et al.* 2020):

- (i) Çözelti sıcaklığının artması alüminyum anotta çözünen Al³⁺ iyonlarının çözünmesini hızlandırıp artırır ve oluşan Al³⁺ monopolimerlere ve Al(OH)₃ katısına hidrolize olur.
- (ii) Sıcaklığın artması, Stokes-Einstein denkleminde göre Al³⁺ ’ün bulk çözeltiye difüzivitesini artırır ve bunun sonucunda anot yüzeyinden çözelti kütlesine olan Al³⁺ ’ün kütle transfer hızında bir artışa neden olur.

Yukarıdaki belirtilen nedenler, sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerini pozitif yönde etkilemiştir. Ayrıca sızıntı suyundan NH₃-N ‘nun gideriminde başka bir neden: sızıntı suyunun başlangıç sıcaklığının artması sonucu amonyağın sıcaklıkla çözünürlüğünün azalmasından dolayı ortamdan NH₃-N giderim verimi artmıştır.



Şekil 41. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı başlangıç sıcaklık değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, akım yoğunluğu 20 mA/cm², pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0, t 40 dak. ve elektrotlar arası mesafe 1 cm).

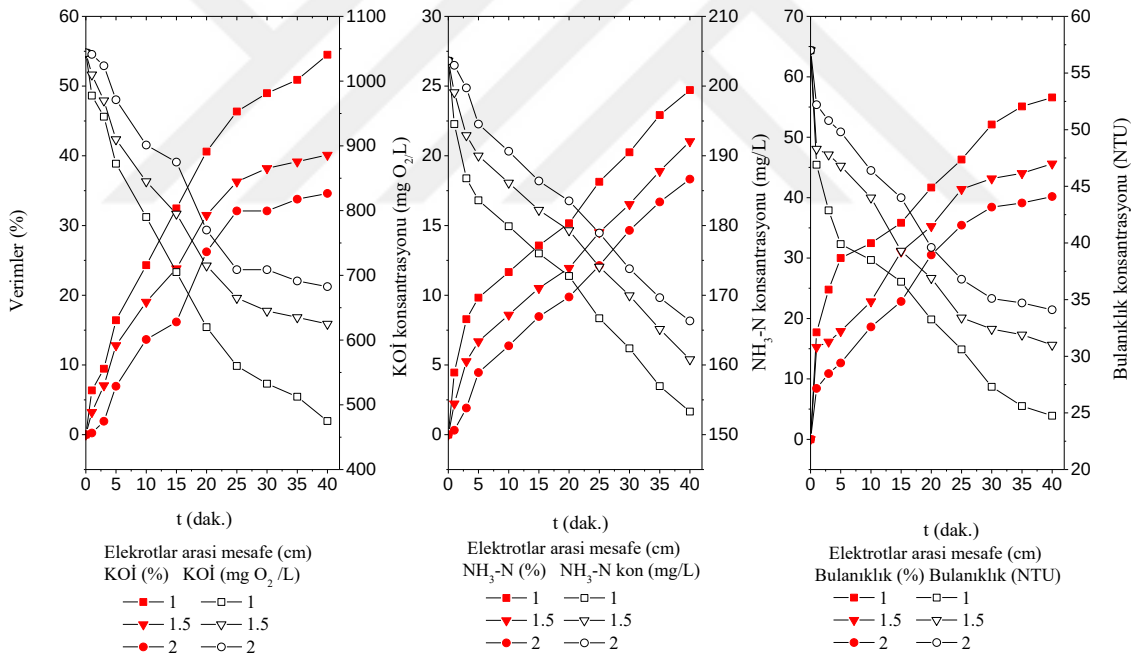
Çözelti sıcaklığına bağlı olarak, KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine yönelik ortaya konulan mekanizmalar literatürde gerçekleştirilen diğer çalışmalara yönelik açıklanan mekanizmalarla benzer özellikler göstermektedirler (G. Chen, 2004; Daneshvar *et al.* 2004; Dimoglo, n.d.).

Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine elektrotlar arası mesafenin etkisi

1, 1.5 ve 2 cm’lik elektrotlar arası mesafenin sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 42’te verilmiştir. Deneysel çalışmalar doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, akım yoğunluğu 20 mA/cm², karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm’lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. 1, 1.5 ve 2 cm’lik elektrotlar arası mesafeler için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık için giderim verimleri sırası ile (%55, %40 ve %35), (%25, %21 ve %18) ve (%57, %46 ve %40) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 1 cm’lik elektrot mesafesi için sırası ile %55, %25 ve %57

olarak elde edilmiştir. Şekil 42'ten görüldüğü gibi alüminyum elektrotlar arası mesafenin artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır.

Elektrotlar arası mesafenin elektrokoagülasyon prosesi performansı üzerine olan etkisi önemli bir parametredir. Literatürde elektrotlar arası mesafenin elektrokoagülasyon prosesine olan etkisi elektrot yapısı, hidrodinamik koşullar ve kirletici doğası gibi birçok faktöre bağlı olduğu ifade edilmektedir (Daneshvar *et al.* 2004; MODIRSHAHLA, 2007). Elektrotlar arası mesafenin artması ile elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde meydana gelen azalma, elektrotlar arasındaki mesafenin artması ile prosesin elektriksel iletkenliğindeki düşüştan kaynaklandığı söylenebilir. Elektriksel iletkenliğin azalması aynı zamanda iyon metalin çözünmesinde de bir azalmaya yol açarak yığın çözelti içindeki flok sayısını en aza indirdiği düşünülmektedir. Ayrıca, elektrotlar arasında geniş mesafeli bir boşluk kullanarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimini gerçekleştirme çözeltinin direncindeki artıştan dolayı elektrokoagülasyon prosesinin işlevselliğini sağlamak için elektrotlar üzerinde yüksek bir voltajın uygulanmasını gerektirmektedir.



Şekil 42. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak elektrotlar arası mesafeye bağlı olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, akım yoğunluğu 20 mA/cm², pH 8.35, T=20°C, karıştırma hızı 300 rpm, t 40 dak. ve elektrolit konsantrasyonu 0)

Proses boyunca yüksek voltaj kullanılması arıtma prosesinin maliyetinde artışa neden olmaktadır. Bununla birlikte, elektrotlar arası mesafenin artırılması sızıntı suyunda bulunan koloidal maddelerin ve çözünmüş maddelerin hidroksil, iyonik haldeki alüminyum türleri ve alüminyum hidroksit katısı ile etkileşimini azaltmaktadır. Bundan dolayı iyonlar arasındaki

elektrostatik çekim ve oluşan alüminyum türlerinin konsantrasyonunun azaldığı düşünülmektedir. Bu nedenlerden dolayı sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri elektrotlar arası mesafenin artması ile azalmıştır (A. Al-Raad *et al.* 2019; Khandegar & Saroha, 2012; Naje *et al.* 2019).

Elektrotlar arası mesafeye bağlı olarak, KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine yönelik ortaya konulan mekanizmalar literatürde gerçekleştirilen diğer çalışmalara yönelik açıklanan mekanizmalarla benzer özellikler taşımaktadır (Khandegar & Saroha, 2012; Rafiee *et al.* 2020).

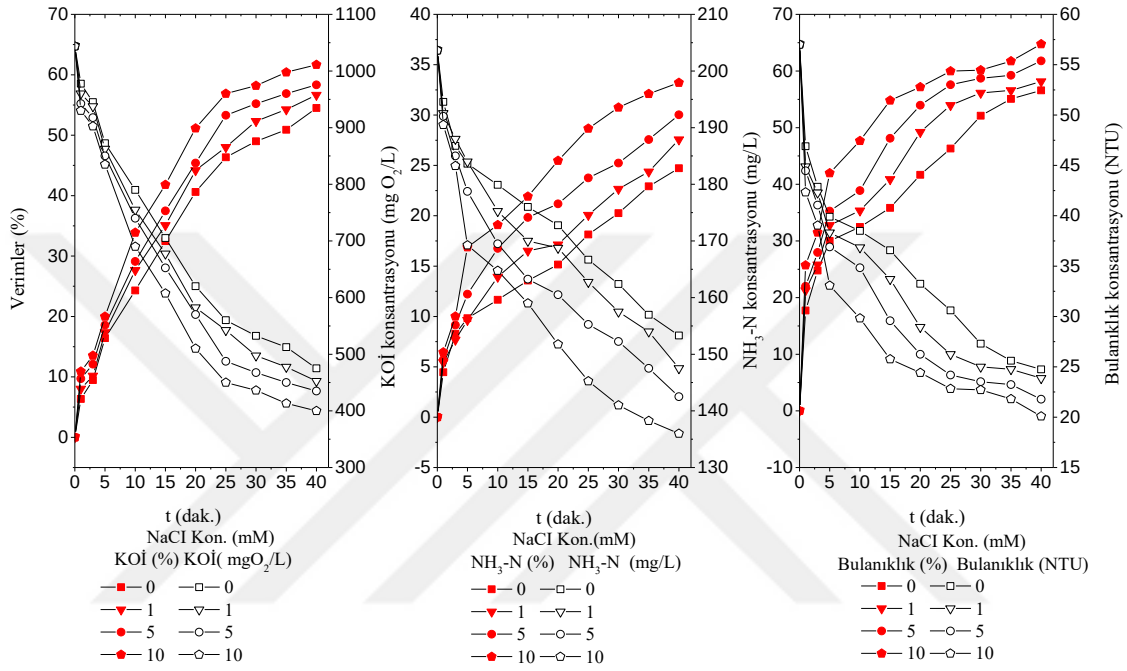
Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine NaCl destek elektrolitinin etkisi

Çözeltinin elektriksel iletkenliği elektrik enerjisi tasarrufu için önemli bir parametredir (Chou *et al.* 2009). Çözeltinin elektrik iletkenliğini arttırmak için destek elektrolit olarak NaCl kullanılmıştır.

0, 1, 5 ve 10 mM'lık NaCl konsantrasyonlarının sızıntı suyundan KOİ, amonyak ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 43'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar, doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, akım yoğunluğu 20 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm olan atıksu ortamında gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. Başlangıç doğal pH değeri 8.35 olan sızıntı suyunun 40 dakikalık bir reaksiyon sonucunda 1, 5 ve 10 mM'lık NaCl konsantrasyon değerleri için çıkış suyu pH değerleri sırası ile 9.27, 9.33 ve 9.47 olarak belirlenmiştir. 0, 1, 5 ve 10 mM'lık NaCl konsantrasyon değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%55, %57, %59 ve %62), (%25, %27, %30 ve %33) ve (% 56, %58, %62 ve %65) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 10 mM'lık NaCl konsantrasyon değeri için sırası ile %62, %33 ve %65 olarak elde edilmiştir. Şekil 43'den görüldüğü gibi destek elektrolit NaCl konsantrasyonunun artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. Ayrıca, 0 ve 10 mM NaCl konsantrasyonları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu BOİ₅ konsantrasyonları ve BOİ₅/KOİ oranları sırası ile (208 ve 238 mg O₂/L) ve (0.44 ve 0.6) olarak belirlenmiştir. 0 ve 10 mM NaCl konsantrasyonlarında elektrokoagülasyon çıkış suları için BOİ₅/KOİ oranları tasfiye edilmemiş atıksular için 0.4-0.8 standart limit değerleri arasında bulunmaktadır. Bu nedenle elektrokoagüle olmuş sızıntı suları kanalizasyon sistemlerine deşarj edilebilir.

Çözeltide Cl⁻ iyonu konsantrasyonu arttığı zaman anot elektrotun pasivizasyonunda azalma olmakta ve elektrik iletme yeteneği gelişmektedir. Koagülasyon işlemi sırasında Cl⁻

iyonları, Cl_2 gazı oluşturmak için anotta yükünü boşaltır ve ardından Cl_2 kimyasal olarak kirleticileri etkili bir şekilde oksitleyebilecek ClO^- iyonuna dönüşmektedir (C.-T. Wang *et al.* 2009). Bu nedenle çözeltide çözünmüş maddelerin oksidasyonu sonucu oluşan ara ürünler monomerlerin adsorpsiyonuna neden olmaktadır. Ayrıca $\text{Al}(\text{OH})_3$ katısının stabilitesi bozulmuş kolloidleri ve oksitlenmiş ara ürünleri ağ şeklinde sararak çökeltmesine yol açar. Katotta oluşan H_2 ve Cl_2 gazları ve karıştırma ile çözelti ortamına geçen hava flotasyonu neticesinde KOİ ve bulanıklık giderim verimleri Cl^- iyonlarının artması ile artmıştır.



Şekil 43. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı NaCl destek elektrolit konsantrasyonuna bağlı olarak sızıntı suundaki KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 $\text{mg-O}_2/\text{L}$, $\text{NH}_3\text{-N}$ 204 mg/L , bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, t 40 dak. ve elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Alkali ortamda amonyak türü dominant olarak bulunmaktadır. Amonyak azota direk oksidasyonla dönüşerek veya elektroliz sonucu oluşan çok küçük kabarcıklar tarafından hava sıyırma prosesi ile ortamdan uzaklaştırılmıştır. Ortamda klorun bulunması indirek oksidasyon prosesi ile amonyağın parçalanmasına katkıda bulunmaktadır. İndirek mekanizma ile amonyak giderimi yüksek olarak gerçekleşmektedir. Anotta Cl^- iyonları reaksiyonu sonucu oluşan hipoklorit iyonu veya hipokloroz asitin oluşmasından dolayı indirek mekanizma ile amonyağın azot gazına dönüşmesinden dolayı amonyak giderim verimi artmıştır. İndirek elektrooksidasyon mekanizması ile amonyak giderme mekanizması nötral, alkali ve asidik ortamlarda farklı olarak gerçekleşmektedir. Alkali ortamda, amonyak uzaklaştırma mekanizması adsorpsiyon/oksidasyon (doğrudan yol), klor ile oksidasyon ve hava sıyırma

proseslerini içermektedir. pH 10'da yığın çözelti içindeki baskın olan amonyak azotu ve klor formları sırasıyla NH_3 ve OCl^- 'dir. Bu denklemler aşağıdaki gibidir:



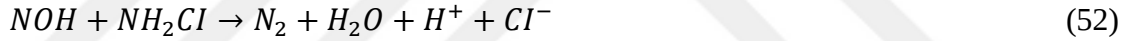
Eşitlik 46'ya göre kloramin üretimi OH^- iyonlarını oluşturur. Bu proses çözeltideki pH değerinin artmasına sebep olmaktadır. NH_2Cl ve OCl^- arasındaki reaksiyon ise dikloramin oluşumuna neden olmaktadır (Karukstis & Van Hecke, 2003).



Alkali ortamda OH^- iyonu katalizörü ile dikloramin ayrışması Morris ve Wei (1969) tarafından önerilen mekanizma ile gerçekleşmektedir (Morris & Wei, 1969):



Nihai ürünleri oluşturmak için bu reaksiyon aşağıdaki gibi devam etmektedir:



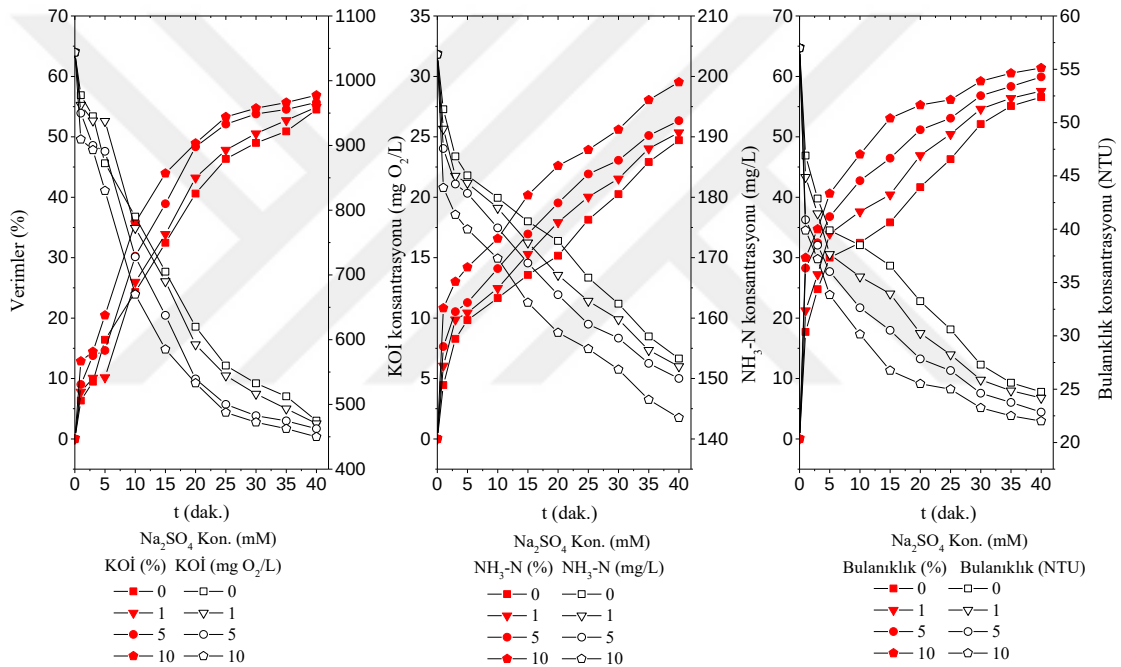
Yukarıda verilen eşitlikler zamanla pH değişimine neden olmaktadır. NaCl destek elektrotuna bağlı olarak, $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderimine yönelik ortaya konulan mekanizmalar literatürde gerçekleştirilen diğer çalışmalara benzer özellikler göstermektedirler (Daneshvar *et al.* 2004; Hisham Elnenay *et al.* 2017; Xiangdong Li *et al.* 2011; Rahman *et al.* 2019).

Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderimine Na_2SO_4 destek elektrolitin etkisi

Çözeltinin elektriksel iletkenliği anotta çözünen iyonların bulk çözeltiye taşınması ve elektrik enerjisi tasarrufu için önemli bir parametredir (Chou *et al.* 2009). Çözeltinin elektrik iletkenliğini arttırmak için destek elektrolit olarak Na_2SO_4 kullanılmıştır.

0, 1, 5 ve 10 mM'lık Na_2SO_4 konsantrasyonlarının sızıntı suyundan $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 44'de verilmiştir. Deneysel çalışmalar başlangıç doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı $20^\circ C$, akım yoğunluğu 20 mA/cm^2 , elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm olan atıksu ortamında gerçekleştirilmiştir. 40

dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. Başlangıç doğal pH değeri 8.35 olan sızıntı suyunun 40 dakikalık bir reaksiyon sonucunda 1, 5 ve 10 mM'lık Na₂SO₄ konsantrasyon değerleri için çıkış suyu pH değerleri sırası ile 9.04, 9.15 ve 9.24 olarak belirlenmiştir. 0, 1, 5 ve 10 mM'lık Na₂SO₄ konsantrasyon değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%54.5, %54.9, %55.7 ve %56.8), (%24.7, %25.4, %26.3 ve %29.5) ve (%56.6, %57.7, %59.9 ve %61.4) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 10 mM Na₂SO₄ konsantrasyonunda sırası ile %56.8, %29.5 ve %61.4 olarak belirlenmiştir. Şekil 44'den görüldüğü gibi Na₂SO₄ destek elektrolit konsantrasyonunun artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri kısmen artmıştır.



Şekil 44. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak farklı Na₂SO₄ konsantrasyonlarında sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, t 40 dak. ve elektrotlar arası mesafe 1 cm)

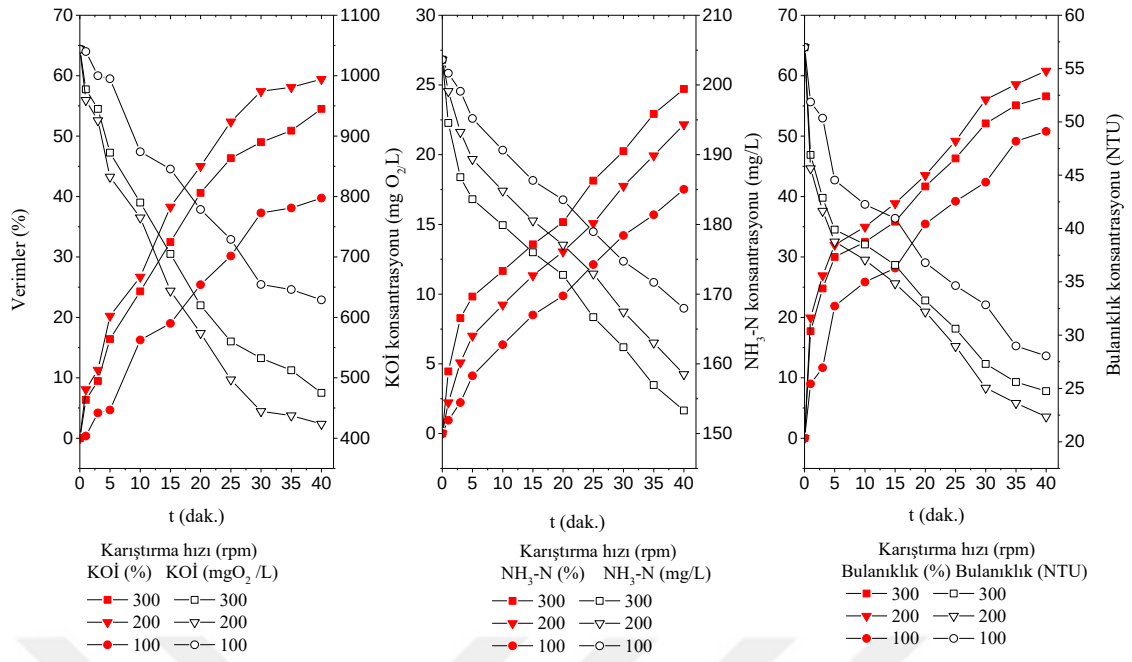
Çözeltide SO₄²⁻ destek iyonlarının mevcudiyetinde giderim verimlerinde fazla bir artışın olmamasının nedeni şu şekilde açıklanabilir: Kompleks bir karakter içeren sızıntı suları Ca²⁺, Mg²⁺, CO₃²⁻ içermekte olup sızıntı suyunda bulunan CO₃²⁻ iyonları ile CaCO₃, MgCO₃, CaSO₄ ve MgSO₄ şeklinde alüminyum anot üzerinde adsorbe olmaktadır (Chou *et al.* 2009; Mansoorian *et al.* 2012). Ayrıca anotta OH⁻ iyonlarının indirgenmesi ile oluşan çözünmüş oksijen (O₂) katı alüminyum ile (Al⁰) reaksiyona girerek Al₂O₃ yapısını oluşturup anot yüzeyinde adsorbe olmaktadır (Mansouri *et al.* 2011). Bu yapıların anot yüzeyinde adsorpsiyonu alüminyum elektrotun pasivasyonuna neden olmaktadır. Adsorbe olan bu

tabakalar yalıtım görevi yaparak elektrokimyasal hücrenin ohmik direncinde bir artışa neden olup sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine olumsuz bir etki yapıp giderim verimlerinde bir azalmaya neden olmaktadır. Ancak sızıntı suyunda çözelti ortamında Cl⁻ iyonlarının bulunması durumunda anot yüzeyinde bulunan bu tabakalar Cl⁻ iyonları ile reaksiyon vermektedirler. Cl⁻ iyonları oluşan pasivisasyon tabakasını uzaklaştırarak bu yapıları CaCl₂, MgCl₂ ve AlCl₃ şeklinde tekrar bulk çözeltiye transfer etmektedirler. Dolayısı ile çözelti ortamındaki alüminyum türleri konsantrasyonu artmaktadır. Bu tez kapsamında karakterize edilen sızıntı suyu içerisinde 81.6 mM klorür iyonu olduğu belirlenmiştir. Bu nedenle Cl⁻ iyonları ortamında bulunan SO₄⁻² iyonları anotta oluşan Al³⁺ iyonlarını bulk çözeltiye taşıyıp iletkenliği artırdıktan sonra kısmende olsa sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerini artırmıştır.

Na₂SO₄ destek elektrolitine bağlı olarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine yönelik ortaya konulan mekanizmalar literatürde gerçekleştirilen diğer çalışmalarda açıklanan mekanizmalarla benzer özellikler göstermiştir (Afef *et al.* 2019; C.-H. Huang *et al.* 2009; Maitlo *et al.* 2018; Periyasamy & Muthuchamy, 2018; Saeedi & Khalvati-Fahlyani, 2011; Yıldız *et al.* 2008).

Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi

100, 200 ve 300 rpm'lik karıştırma hızlarında sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri araştırılmış ve Şekil 45'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, akım yoğunluğu 20 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. 100, 200 ve 300 rpm karıştırma hızları 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık için giderim verimleri sırası ile (%40, %59 ve %55), (%14, %18 ve %21) ve (%43, %56 ve %52) olarak belirlenmiştir.



Şekil 45. Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak karıştırma hızının sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimine etkisi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, akım yoğunluğu 20 mA/cm², pH 8.35, T=20°C, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, t 40 dak. ve elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık giderim verimleri karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm' çıkması ile artmıştır. Ancak KOİ ve bulanıklık giderim verimleri karıştırma hızının 200 rpm'den 300 rpm'e çıkmasıyla azalmıştır. Sızıntı suyundan NH₃-N giderim verimleri karıştırma hızının 100 rpm'den 300 rpm'e çıkmasıyla artmış ve 300 rpm'de NH₃-N giderim verimi maksimum olmuştur.

Elektrokoagülasyon prosenin ardışık üç aşamadan oluştuğu belirtilmektedir (Bouhezila *et al.* 2011) :

- (i) Kurban elektrotun elektrolit oksidasyonu sonucu koagülatların oluşumu
- (ii) Kirlenici ve partikül halindeki süspansiyonların destabilizasyonu
- (iii) Destabilize olmuş fazın floklar oluşturmak için topaklaşması

İkinci aşamada homojen çözelti ortamı koagülantlar ve kirlenici maddeler arasında temas sağlamak için oldukça önemli olduğu belirtilmektedir. Karıştırma hızı anot pasifliğini azaltarak anot çözünmesini artırır ve oluşan koagülantı hareket ettirerek bulk çözeltiye taşır. Ayrıca uygun bir karıştırma hızı çözeltideki kirlenicileri ve koagülantları homojenize eder. Uygun karıştırma hızlarında koagülantların kolloidleri adsorplaması ve destabilize olmuş yapıların çözeltide oluşan Al(OH)₃ katısı tarafından ağ şeklinde sarılarak tutulması karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm'e çıkması ile KOİ ve bulanıklık giderim verimi artırmıştır.

Karıştırma hızının 200 rpm'den 300 rpm değerine çıkması ile KOİ ve bulanıklık giderim verimi yüksek karıştırma hızında oluşan topakların parçalanıp daha küçük yapılara dönüşmesi nedeniyle KOİ ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır.

NH₃-N giderim verimleri ise karıştırma hızının 100 rpm'den 300 rpm'e çıkması ile artmıştır. Bu duruma yüksek karıştırma hızlarında daha fazla havanın çözelti ortamına geçerek kotatta suyun indirgenmesi sonucu oluşan H₂ gazı kabarcıkları ile birlikte amonyağın çözelti ortamından sıyrılarak uzaklaşmasına sebep olduğu söylenebilir.

Karıştırma hızına bağlı olarak, KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine yönelik ortaya konulan mekanizmalar literatürde gerçekleştirilen diğer çalışmalara yönelik yapılan açıklamalarla benzer özellikler taşımaktadır (Bouhezila *et al.* 2011; Modirshahla *et al.* 2008; Naje *et al.* 2019; Sitorus *et al.* 2018).

Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait reaksiyon kinetikleri ve reaksiyon hız sabitleri

Atıksu arıtımında kullanılan herhangi bir reaktörde gerekli kirletici maddeleri istenilen seviyede uzaklaştırmak için reaksiyona ait kinetik çalışmalarının gerçekleştirilmesi reaktördeki hidrolik alıkonma zamanını belirlemek için oldukça önemlidir (Dash & Chaudhari, 2005). Bundan dolayı atıksu arıtma proseslerinin optimizasyonunda reaksiyon hız sabitinin belirlenmesi oldukça önemli bir parametredir.

Reaksiyon hızı birim zamanda reaksiyona giren maddenin konsantrasyonundaki değişim oranı olarak tanımlanmaktadır. Çözelti pH'sı, sıcaklık, akım yoğunluğu, elektrotlar arası mesafe, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun fonksiyonu olarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde reaksiyon kinetikleri yüksek korelasyon katsayılarından dolayı ($R^2 > 0.95$) pseudo-ikinci merteye reaksiyon kinetiğine uyduğu belirlenmiştir. Pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetiği $V = k'[C]^2$ eşitliği ile ifade edilmektedir. Bu reaksiyonun $t = t_0$ ve $t = t$ ve $C = C_0$ ve $C = C$ değerlerinde integrali alındığında $(1/C) = (1/C_0) + k't$ lineer formuna dönüşmektedir. Burada C_0 , C , t ve k' değerleri sırası ile sızıntı suyunun mg O₂ L⁻¹ olarak başlangıçtaki KOİ, mg/L⁻¹ olarak NH₃-N ve NTU olarak bulanıklık konsantrasyonları, reaksiyon süresi sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarını, dakika cinsinden zaman ve L mg⁻¹ dak⁻¹ pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleridir. Reaksiyon kinetikleri ve farklı deneysel şartlarda belirlenen pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabitlerine ait değerler sırası ile Şekil (46-52) ve Şekil (53-59)'da verilmiştir.

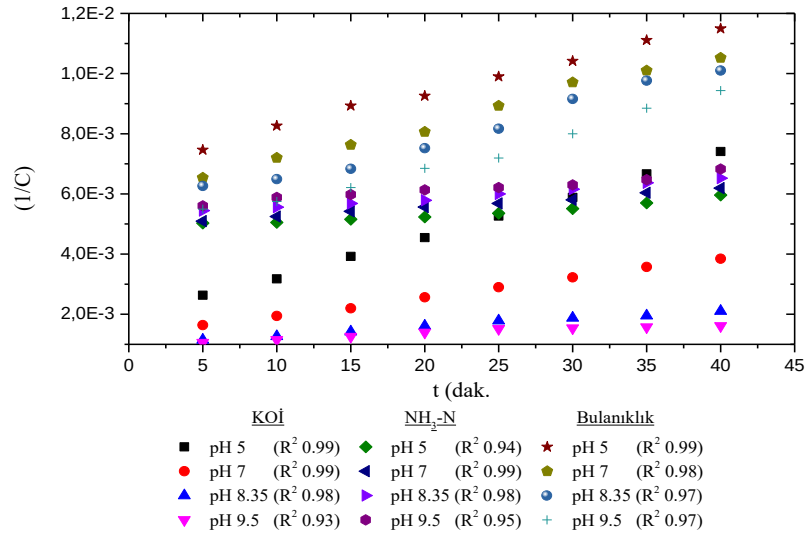
KOİ giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci merteye hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafe ve pH

değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e artması ile reaksiyon hız sabiti değeri artmış ve çözelti sıcaklığının 50°'den 60°C'ye yükselmesi hız sabiti değerleri azalmıştır. Ayrıca KOİ giderimi için pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm' çıkması ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır. Sızıntı suyundan KOİ gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri pH 5 değerinde $1.37 \cdot 10^{-4} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir.

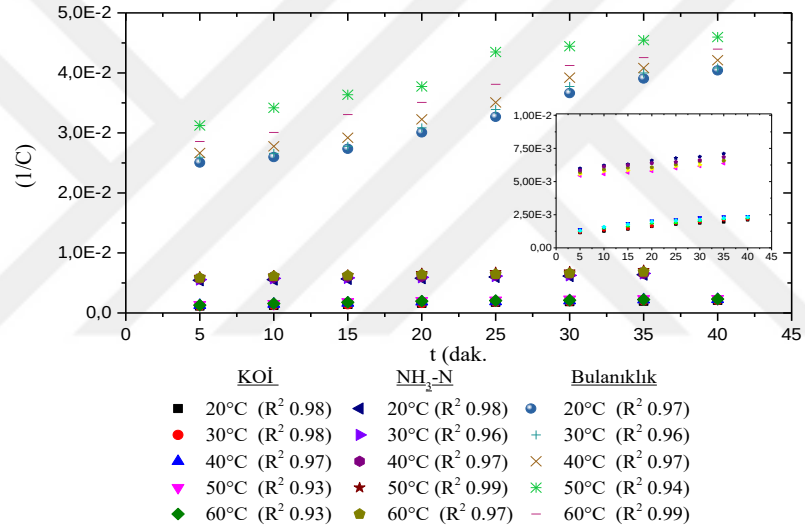
NH₃-N giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabitinin pH, sıcaklık, akım yoğunluğu, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ve elektrotlar arası mesafenin azalması ile artmıştır. Sızıntı suyundan NH₃-N gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri 10 M'lık NaCl konsantrasyonu için $5.23 \cdot 10^{-5} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Şekil (53-59)'dan da görüldüğü gibi tüm deneysel parametrelere ait değerlerin artması ile pseudo-ikinci mertebe hız sabiti değerleri de artmıştır.

Bulanıklık giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafenin ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e yükselmesi ile hız sabiti değeri artmış ancak sıcaklık değerinin 50°'den 60°C'ye yükselmesi ile hız sabiti değeri de azalmıştır. Ayrıca bulanıklık giderimi için pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200rpm' yükselmesi ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır. Sızıntı suyundan bulanıklık gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri NaCl konsantrasyonun 10 M olduğunda $6.25 \cdot 10^{-4} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Bulanıklık giderimine ait reaksiyon hız sabiti değerleri Şekil 48-55'den de görüldüğü gibi KOİ ve NH₃-N giderim hız sabiti değerlerinden oldukça daha büyük çıkmıştır. Bulanıklık giderimine ait hız sabitlerinin oldukça büyük olmasından dolayı KOİ ve NH₃-N'na ait reaksiyon hız sabitleri Şekil (53-59)'dan da görüldüğü gibi bulanıklığa ait hız sabiti değerleri tarafından baskılanmış ve zamana bağlı olarak hiç değişmemiş olarak görünmektedir. Ancak KOİ ve NH₃-N'na ait hız sabiti değerleri ayrı bir grafikte incelendiğinde deneysel şartlara bağlı olarak arttıkları veya azaldıkları görülmektedir.

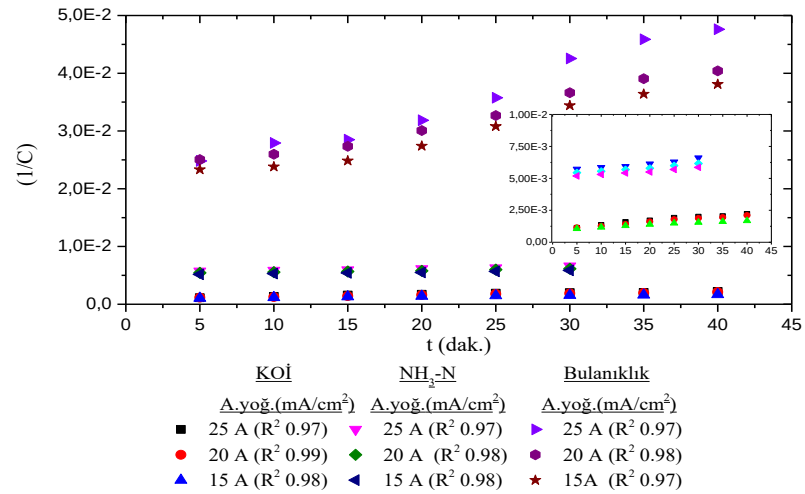
Farklı deneysel şartlarda sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine yönelik reaksiyon kinetikleri Şekil (46-52)'de o gösterilmiştir.



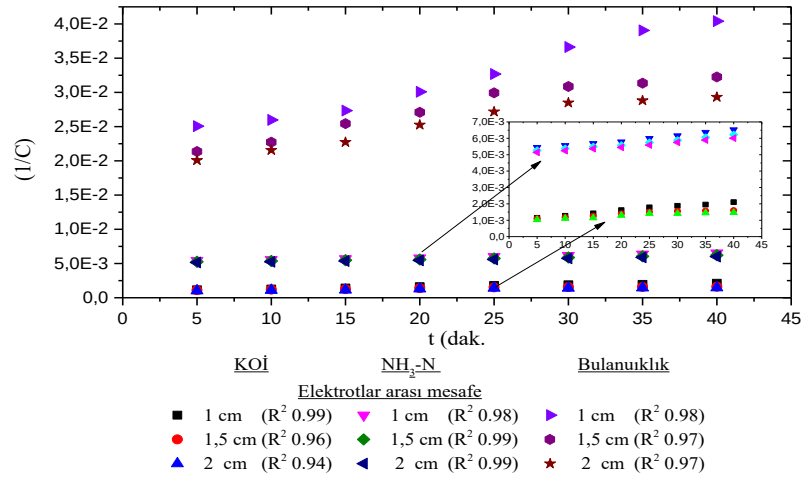
Şekil 46. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerinin fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri



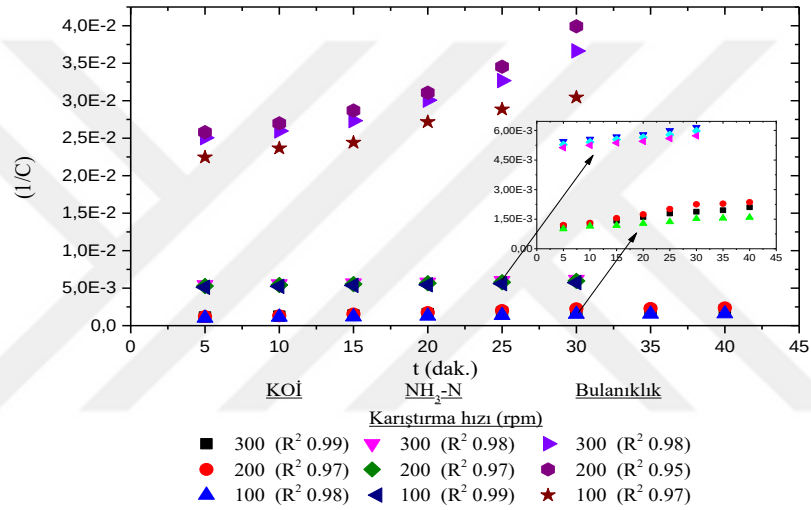
Şekil 47. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklığının fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri



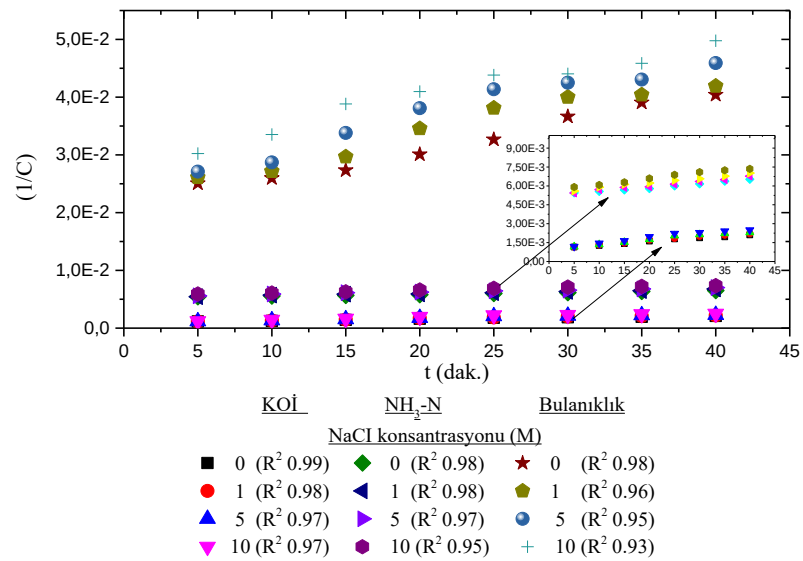
Şekil 48. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri



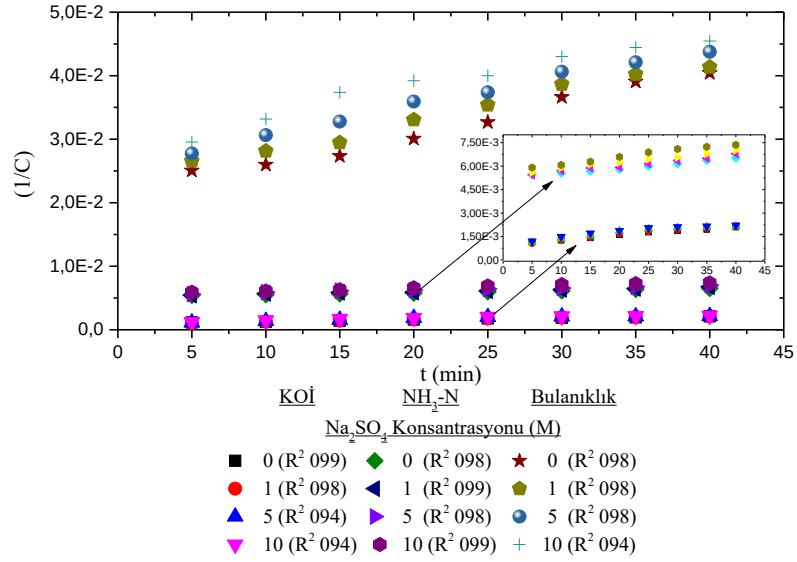
Şekil 49. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafenin fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri



Şekil 50. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızının fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri

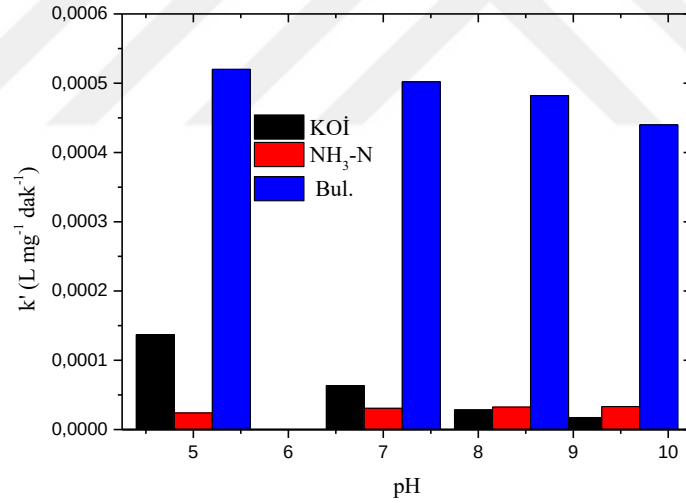


Şekil 51. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl konsantrasyonunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri

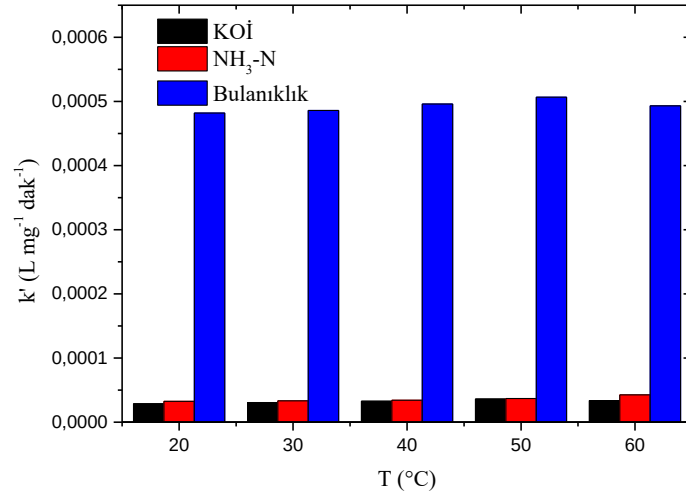


Şekil 52. Sızıntı suyunda bulunan KOI , NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait Na_2SO_4 konsantrasyonunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hızı kinetikleri

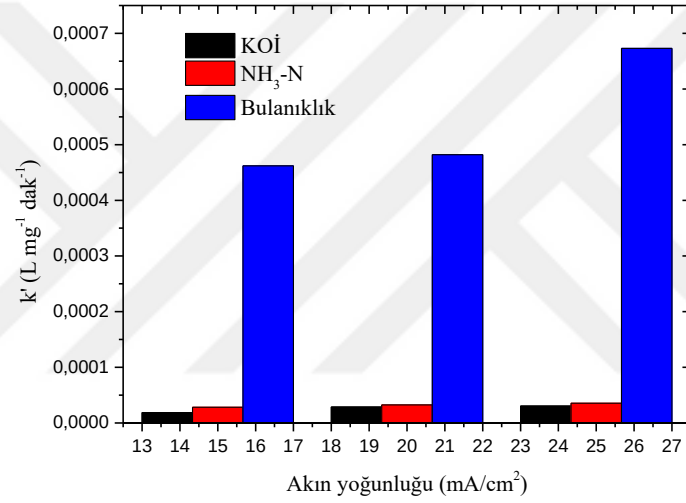
Farklı dnyssel şartlarda sızıntı suyundan KOI , NH_3-N ve bulanıklık giderimine yönelik pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değeri Şekil (53-59)'da aşağıdaki gibi gösterilmiştir.



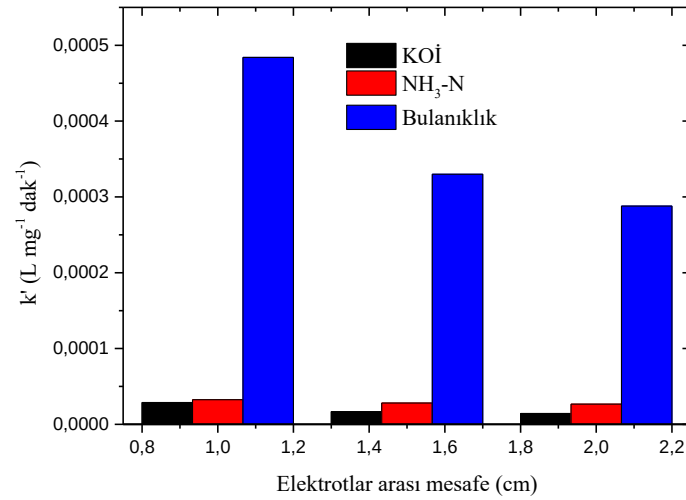
Şekil 53. Sızıntı suyunda bulunan KOI , NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değeri



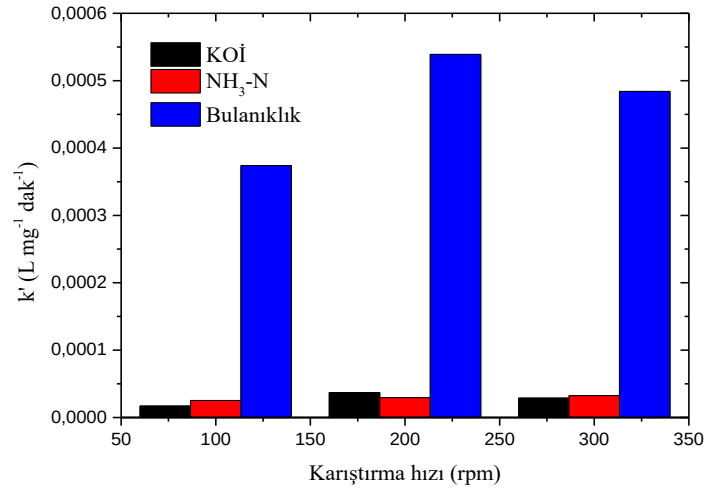
Şekil 54. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



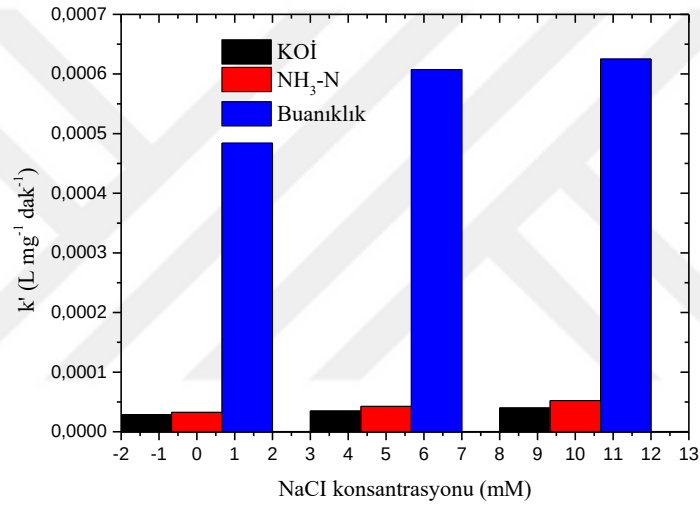
Şekil 55. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



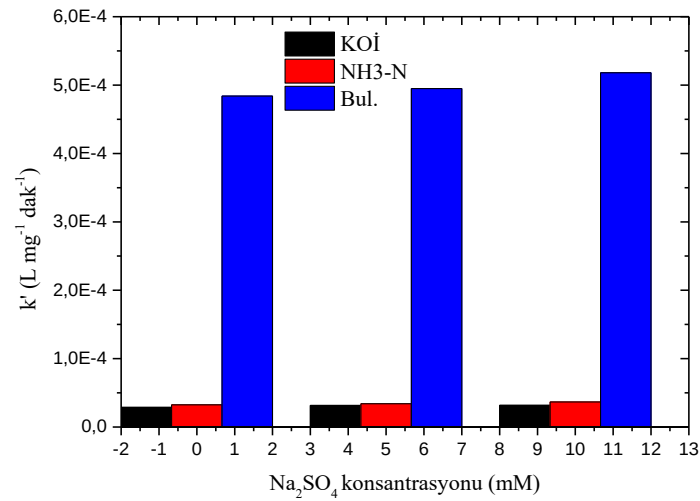
Şekil 56. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafe değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 57. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızı değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 58. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 59. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait Na_2SO_4 elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri

Elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ giderimi için işletme maliyetinin hesaplanması

Elektrokoagülasyon prosesinde önemli aşamalardan biride işletme maliyetinin hesaplanmasıdır. Bu tez çalışması kapsamında sızıntı suyunun uygulanan akım yoğunluğu ve proses süresine göre KOİ kirlilik parametresinin gideriminde işletme maliyetlerinin hesaplanmasında enerji tüketimi kWh/m³, birim enerji tüketimi kWh/kg KOİ, birim elektrot tüketim maliyeti \$/kg KOİ ve toplam tüketim maliyeti \$/kg KOİ hesaplanmıştır. Maliyet analizleri, sızıntı suyunun pH'sı 8.35, 20°C sıcaklık, 300 rpm karıştırma hızı, elektrotlara arası mesafe 1 cm, elektrolitsiz ortam, reaksiyon süresi 40 dakika ve numune hacmi 400 mL olan koşullarda belirlenmiştir.

Bu koşullara göre elektrokoagülasyon proseslerinin uygulanan akım yoğunluklarına göre elektrik sarfiyatı, birim enerji sarfiyatı ve toplam elektrot maliyeti hesaplamaları Tablo 12'de verilmiştir.

Tablo 12. Elektrokimyasal Proseslerin Maliyet Analizleri

Elektrokoagülasyon				
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	Birim Enerji Tüketimi (kWh/kg.KOİ)	Elektrot Maliyeti (\$/kg.KOİ)	Toplam Tüketim Maliyeti (\$/kg.KOİ)
15	80.12	9.602	0.27	1.134
20	144	19.913	0.415	2.207
25	218.56	36.222	0.622	3.882

Tablo 12'e göre, 40 dakikalık bir reaksiyon sonucunda Alüminyum elektrot ile elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun 15 mA/cm²'den 25mA/cm²'ye yükselmesiyle enerji tüketimi 80.12 kWh/m³'ten 218.56 kWh/m³'e, birim enerji tüketimi 9.602 kWh/kg.KOİ'den 36.22 kWh/kg.KOİ'ye, toplam tüketim maliyeti ise 1.134 \$/kg.KOİ'den 3.882 \$/kg.KOİ'ye yükselmiştir.

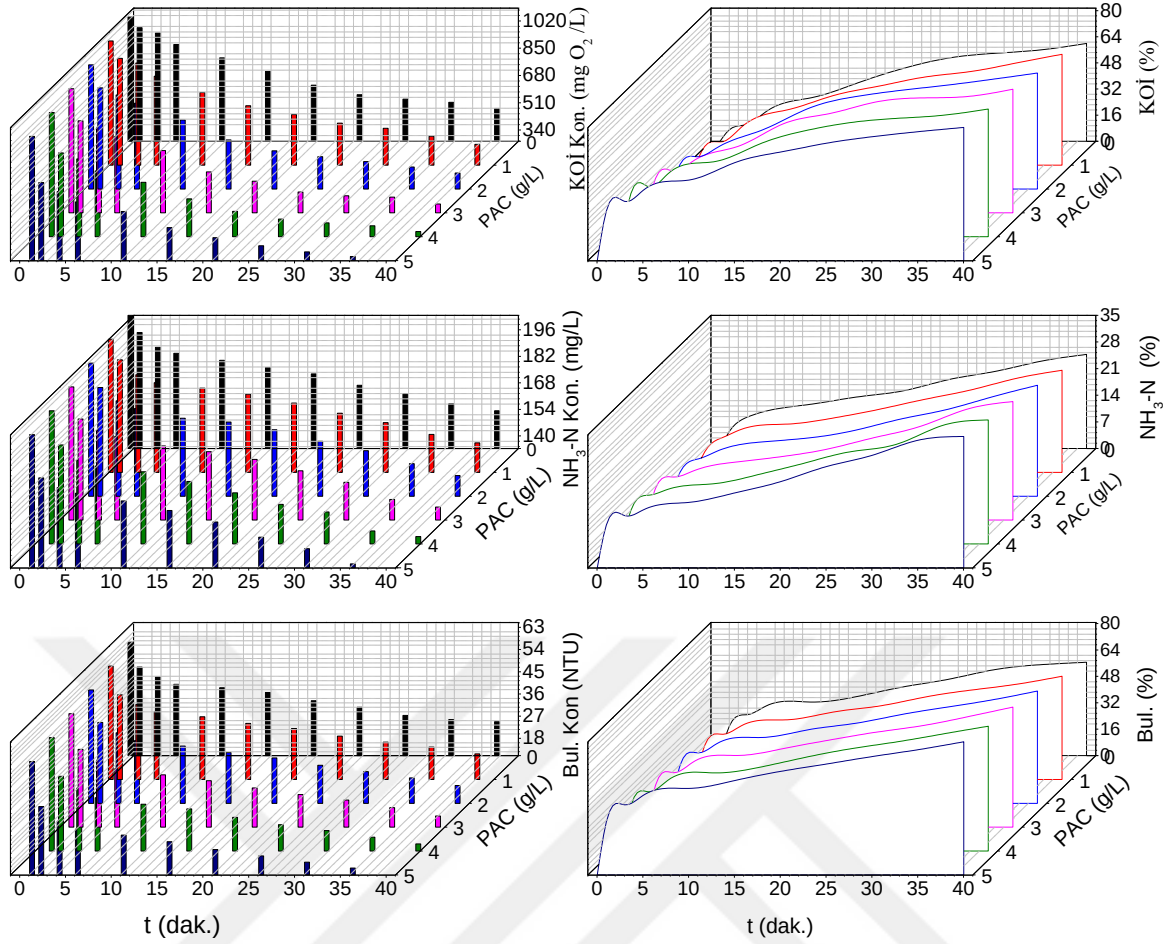
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK Prosesi ile Sızıntı Suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimine Deneysel Parametrelerin Etkisinin İncelenmesi

Kombine Elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine adsorbent miktarının etkisi

Yapılan bu tez çalışmasında kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesinde alüminyum anot ortamında sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimine toz aktif karbon (TAK) miktarının etkisi sinerjik olarak araştırılmıştır.

0, 1, 2, 3, 4 ve 5 g/l'lik TAK miktarlarının sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 60'da gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar 20 mA/cm² akım yoğunluğu, doğal pH 8,35, başlangıç sıcaklığı 20°C, elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm'lik ortamda gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. 1, 2, 3, 4 ve 5 g/l'lik TAK miktarları için 40 dakikalık elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi sonucu çıkış suyu pH değerleri sırası ile 8.68, 8.97, 9.36 ve 9.83 olarak belirlenmiştir. 0, 1, 2, 3, 4 ve 5 g/l'lik TAK miktarları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%59.9, %67.8, %71.1, %75.7, %78.2 ve %81.5), (%24.7, %26.8, %29.2, %31.1, %32.6 ve %34.5) ve (%56.6, %62.5, %68.1, %72.8, %75.6 ve %80.7) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 5 g/L'lik TAK miktarı için sırası ile %81.5, %31.1 ve %80.7 olarak bulunmuştur.

Ayrıca, BOİ₅ analizinde çıkış sızıntı suyundaki BOİ₅ konsantrasyonu %62 giderim verimiyle başlangıç BOİ₅ konsantrasyonu 413 mg O₂/L'den 158 mg O₂/L'ye düşmüştür. BOİ₅/KOİ oranı ise 0.59 olarak elde edilmiştir. Tasfiye edilmemiş atıksular için BOİ₅/KOİ (0.4-0.8) limitinin arasında kalmaktadır. Bu nedenle elektrokoagüle olmuş sızıntı suları kanalizasyon sistemlerine deşarj edilebilir.



Şekil 60. Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile farklı TAK miktarlarında sızıntı suunda KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 $\text{mg-O}_2\text{/L}$, $\text{NH}_3\text{-N}$ 204 mg/L , bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L , t 40 dak. ve elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Deneysel çalışmalarda elektrokoagülasyon prosesinden sonra adsorpsiyon prosesinin ardışık olarak kullanılmamasının nedeni: Elektrokoagülasyon prosesi ile birlikte TAK kullanımı maliyet açısından hem enerji tüketimi ve çalışma süresini azaltmak hem de adsorpsiyonla elektrokoagülasyon etkileşimi sonunda ortaya çıkacak sinerjik etkiyi görmek amacıyla. Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile sızıntı sularından KOİ ve bulanıklık gideriminin şu şekilde gerçekleştiği düşünülmektedir;

- (i) Çözelti içerisinde bulunan Cl^- iyonları alüminyum anotta elektropolarizasyonla Cl_2 gazına dönüştükten sonra su ile reaksiyona girip HOCl 'ye dönüşmektedir. Yüksek pH değerlerinde oluşan OCl^- iyonları çözeltideki çözünmüş maddeleri oksitleyerek ara ürünler oluşturmaktadır. Oluşan bu ara ürünler $\text{Al}(\text{OH})_3$ katısı tarafından adsorplanarak ya çökelirler ya da katotta suyun indirgenmesi sonucu oluşan hidrojen gazının oluşumu ile flotasyona uğramaktadırlar.

- (ii) Çözeltide bulunan çözünmüş maddeler, kolloidal maddeler ve OCI^- tarafından oksitlenen maddeler sonucu oluşan ara ürünler geniş yüzey alanına sahip TAK'ın yüzeyinde bulunan fonksiyonel gruplar tarafından elektrostatik veya kimyasal bağlarla etkileşerek TAK yüzeyine adsorbe olarak uzaklaştırılmaktadırlar.
- (iii) Ayrıca oluşan katı $\text{Al}(\text{OH})_3$ üzerinde adsorplanan kolloidal ve diğer maddelerin TAK yüzeyinde elektrostatik olarak tutunması ile ortamdan uzaklaştırılması sonucu anotta çözünen Al^{3+} iyonlarının yeniden çözelti ortamına transfer olmasından dolayı kirleticilerin giderimini hızlandırdığı düşünülmektedir.

Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile çözelti ortamından $\text{NH}_3\text{-N}$ giderimi yüksek pH değerlerinde karıştırmanın etkisiyle çözelti ortamına geçen hava ve anotta oluşan H_2 gazı kabarcıklarıyla flotasyona uğrayarak ya da oluşan katı $\text{Al}(\text{OH})_3$ üzerinde NH_3 'ın absorbe edilerek uzaklaştırıldığı düşünülmektedir. Ayrıca çözeltide bulunan NH_3 'ın TAK yüzeyindeki fonksiyonel gruplara polar moleküller arasında meydana gelen Van der Waals kuvvetlerinden biri olan dipol-dipol etkileşimi sonu absorbe olmasından kaynaklandığı söylenebilir.

Kombine elektorkoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile farklı TAK miktarlarında sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri literatürde bulunan çalışmalarla mukayese edildiğinde benzer mekanizmalarla bu kirletici parametreler çözelti ortamından uzaklaştırıldığı anlaşılmaktadır (Afef *et al.* 2019; Iqhrammullah *et al.* 2020; Kannan, 2006; Mansoorian *et al.* 2012).

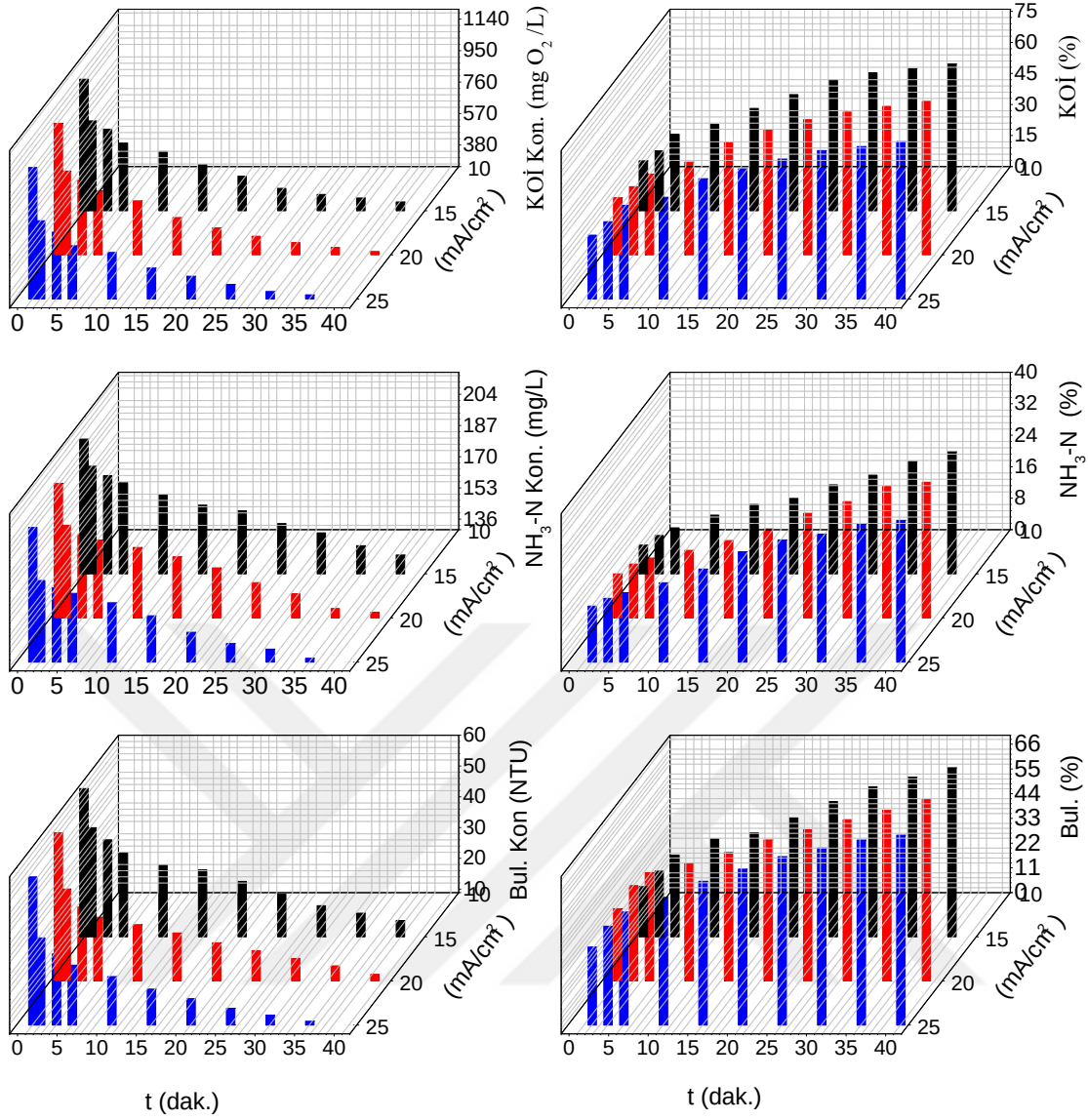
Kombine Elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine akım yoğunluğunun etkisi

Akım yoğunluğu, elektrot alanı başına düşen akım miktarıdır. Akım yoğunluğu elektrokoagülasyon prosesinde üretilen alüminyum koagülant miktarını belirlemektedir. Reaksiyon ünitesinde alüminyum elektrotlar elektron kaybeder ve Al^{3+} olarak çözelti içinde çözünüp asidik pH değerlerinde $\text{Al}(\text{OH})^{2+}$, $\text{Al}(\text{OH})_2^+$ iyonları ve $\text{Al}(\text{OH})_3$ formlarını oluştururlar. Akım yoğunluğunun artması ile EK hücresinde bu yapıların oluşum hızlarının arttığı bilinmektedir.

15, 20 ve 25 mA/cm^2 'lik akım yoğunluklarının kombine EK-adsorpsiyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 61'de gösterilmiştir. DeneySEL çalışmalar TAK miktarı 5 g/L, doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm'lik ortamda gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 μm 'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık, BOİ_5 ve $\text{BOİ}_5/\text{KOİ}$ değerleri belirlenmiştir. 15,

20 ve 25 mA/cm²'lik akım yoğunlukları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%71, %74 ve %76), (%31, %35 ve %36) ve (%75, %81 ve %85) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 25 mA/cm²'lik akım değeri için sırası ile %76, %36 ve %85 olarak elde edilmiştir. 25 mA/cm²'lik akım yoğunluğu değeri için kombine EK-adsorpsiyon prosesi KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EK prosesi ile mukayese edildiğinde KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %21.5, %11.3 ve % 27.8 olarak artmıştır. KOİ ve bulanıklık giderimindeki artış; sızıntı suyunun karakteristiğinde bulunan Cl⁻ iyonları alüminyum anotta elektro polarizasyonla Cl₂ gazına dönüştükten sonra su ile reaksiyona girip HOCl'ye daha sonra OCl⁻ iyonlarına dönüşmektedir. Oluşan OCl⁻ iyonları çözeltideki çözünmüş maddeleri oksitleyerek ara ürünler oluşturmaktadırlar. Oluşan bu ara ürünler, koloidal yapılar ve diğer polar yapılar eş zamanlı olarak Al(OH)₃ katısı ve TAK yüzeyinde adsorplanmanın yanısıra ayrıca Al(OH)₃ katısı ve TAK'ın birbirleri ile etkileşmesi sonucu ya çökelirler ya da mekanik karıştırma yoluyla ortama geçen hava kabarcıkları ve katotta suyun indirgenmesi sonucu oluşan hidrojen gazı kabarcıkları yardımıyla flotasyona uğrayarak ortamdaki uzaklaşmaktadırlar. Ayrıca, 15, 20 ve 25 mA/cm²'lik akım yoğunluğu değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu BOİ₅ konsantrasyonları ve BOİ₅/KOİ oranları sırası ile (145, 158 ve 167 mg O₂/L) ve (0.48, 0.58 ve 0.66) olarak belirlenmiştir. 15, 20 ve 25 mA/cm²'lik akım yoğunluğu değerlerinde kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi çıkış suları için BOİ₅/KOİ oranları tasfiye edilmemiş atıksular için 0.4-0.8 standart limit değerleri arasında olduğu belirlenmiştir. Bu nedenle elektrokoagüle olmuş sızıntı suları kanalizasyon sistemlerine deşarj edilebilir.

pH 8.35 değerine sahip sızıntı suyunun 15, 20 ve 25 mA/cm²'lik akım yoğunlukları için 40 dakikalık kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi sonucu çıkış suyu pH değerleri sırası ile 9.22, 9.37 ve 9.44 olarak belirlenmiştir. Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile sızıntı suyundan NH₃-N giderimi yüksek pH değerlerinde karıştırmanın etkisiyle çözelti ortamına geçen hava ve anotta oluşan H₂ gazı kabarcıklarıyla flotasyonu ya da oluşan katı Al(OH)₃ üzerinde NH₃'ün absorbe olması şeklinde gerçekleşmektedir. Ayrıca çözeltide bulunan NH₃-N'nin TAK yüzeyindeki fonksiyonel gruplara polar moleküller arasında meydana gelen Van der Waals kuvvetlerinden biri olan dipol-dipol etkileşimi sonucu absorbe olmasından kaynaklandığı söylenebilir.



Şekil 61. Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile farklı akım yoğunluklarının fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 $\text{mg-O}_2/\text{L}$, $\text{NH}_3\text{-N}$ 204 mg/L , bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L , T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrotlar arası mesafe 1 cm ve elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L)

Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile farklı akım yoğunluklarında sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim mekanizmaları literatürde yapılan diğer çalışmalarla desteklenmektedir (Afef *et al.* 2019; Benhelal *et al.* 2019; Xiangdong Li *et al.* 2011; Mahesh *et al.* 2006; Secula *et al.* 2012).

Kombine Elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanık giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi

Basit bir elektrokoagüle edici reaktör, bir anottan ve bir katottan oluşmaktadır. Harici bir güç kaynağından elektrik potansiyeli uygulandığında anot malzemesi oksidasyona uğrar ve katot ise indirgemeye veya temel metallerin indirgeyici birikimine maruz kalmaktadır (Mollah

ve diğerleri, 2004). Al^{3+} iyonları alüminyum elektrotun çözünmesinden meydana gelen genel katyonlardır. Bunun aksine katotta hidroksit anyonları üretilmektedir. Çözeltinin yeterince karıştırılmasıyla adsorpsiyon ve birlikte çökeltme vasıtasıyla çözünmüş organik maddeler, katyonlar, kolloidal yapılar ve oksidasyon sonucu meydana gelen yan ürünlerin giderilmesine neden olan hidroksit iyonları katotta oluşmaktadır.

Elektrot reaksiyonları tarafından üretilen Al^{3+} ve OH^- iyonları $Al(OH)^{2+}$, $Al_2(OH)_2^{4+}$, $Al(OH)_4^-$ gibi farklı yapılar ve $Al_6(OH)_{15}^{3+}$, $Al_7(OH)_{17}^{4+}$, $Al_8(OH)_{20}^{4+}$, $Al_{13}O_4(OH)_{24}^{7+}$ ve $Al_{13}(OH)_{34}^{5+}$ gibi çeşitli kompleks yapıları meydana getirmek için kompleks çökeltme kinetiklerine göre reaksiyona uğramaktadırlar (S Bellebia *et al.* 2009).

Elektrokoagülasyon (EK) prosesinde başlangıç pH değeri önemli bir parametresidir. Genel olarak, atık suyun pH değeri EK prosesi esnasında değişmektedir (X. Chen *et al.* 2000). Çözeltinin başlangıç pH değerindeki değişim elektrot malzemesi, adsorbent, adsorbat ve atık suyun başlangıç pH değerlerine bağlıdır. Yüksek pH değerlerinde Al^{3+} katyonları $Al(OH)_3$ olarak bir koagülant görevi görmektedirler. 4'ten düşük ve 10'dan büyük pH değerlerinde Al^{3+} katyonlarının gereksizce tükenmesi söz konusudur.

5, 7, 8.35 ve 9.5 gibi pH değerlerinin kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH_3-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 62'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar TAK miktarı 5 g/L, başlangıç sıcaklığı 20°C, akım yoğunluğu 20 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm'lik deneysel şartlarda gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH_3-N ve bulanıklık değerleri belirlenmiştir. 5, 7, 8.35 ve 9.5'lik pH değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH_3-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%86, %77, %74 ve %71), (%28, %31, %35 ve %40) ve (%91, %86, %81 ve %76) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 değerinde sırası ile %86 ve %91 olarak belirlenmiştir. En yüksek NH_3-N giderim verimi ise pH 9.5 değerinde %40 olarak bulunmuştur.

pH 5 değerinde kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesi ile KOİ ve bulanıklık giderim verimleri EK prosesi ile mukayese edildiğinde artmıştır. KOİ ve bulanıklık giderim verimindeki artışlar sırası ile %31.5 ve %35 olarak belirlenmiştir. pH 9.5 değerinde kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesi ile NH_3-N giderim verimi EK prosesi ile mukayese edildiğinde %15 olarak artmıştır. KOİ ve bulanıklık giderimindeki artış; sızıntı suyunun karakteristiğinde bulunan Cl^- iyonları alüminyum anotta elektropolarizasyonla Cl_2 gazına dönüştükten sonra su ile reaksiyona girip HOCl'ye daha sonra OCl⁻ iyonlarına dönüşmektedirler. Oluşan OCl⁻ iyonları çözeltideki çözünmüş maddeleri oksitleyerek ara ürünler oluşturmaktadırlar. Oluşan

ara ürünler koloidal yapılar ve diğer polar yapılar eş zamanlı olarak $\text{Al}(\text{OH})_3$ katısı ve TAK yüzeyinde adsorplanmanın yanı sıra ayrıca $\text{Al}(\text{OH})_3$ katısı ve TAK'ın birbirleri ile etkileşmesi sonucu ya çökelirler ya da mekanik karıştırma yoluyla ortama geçen hava kabarcıkları ve katotta suyun indirgenmesi sonucu oluşan hidrojen gazı kabarcıkları yardımıyla flotasyona uğrayıp ortamdan uzaklaşırlar.

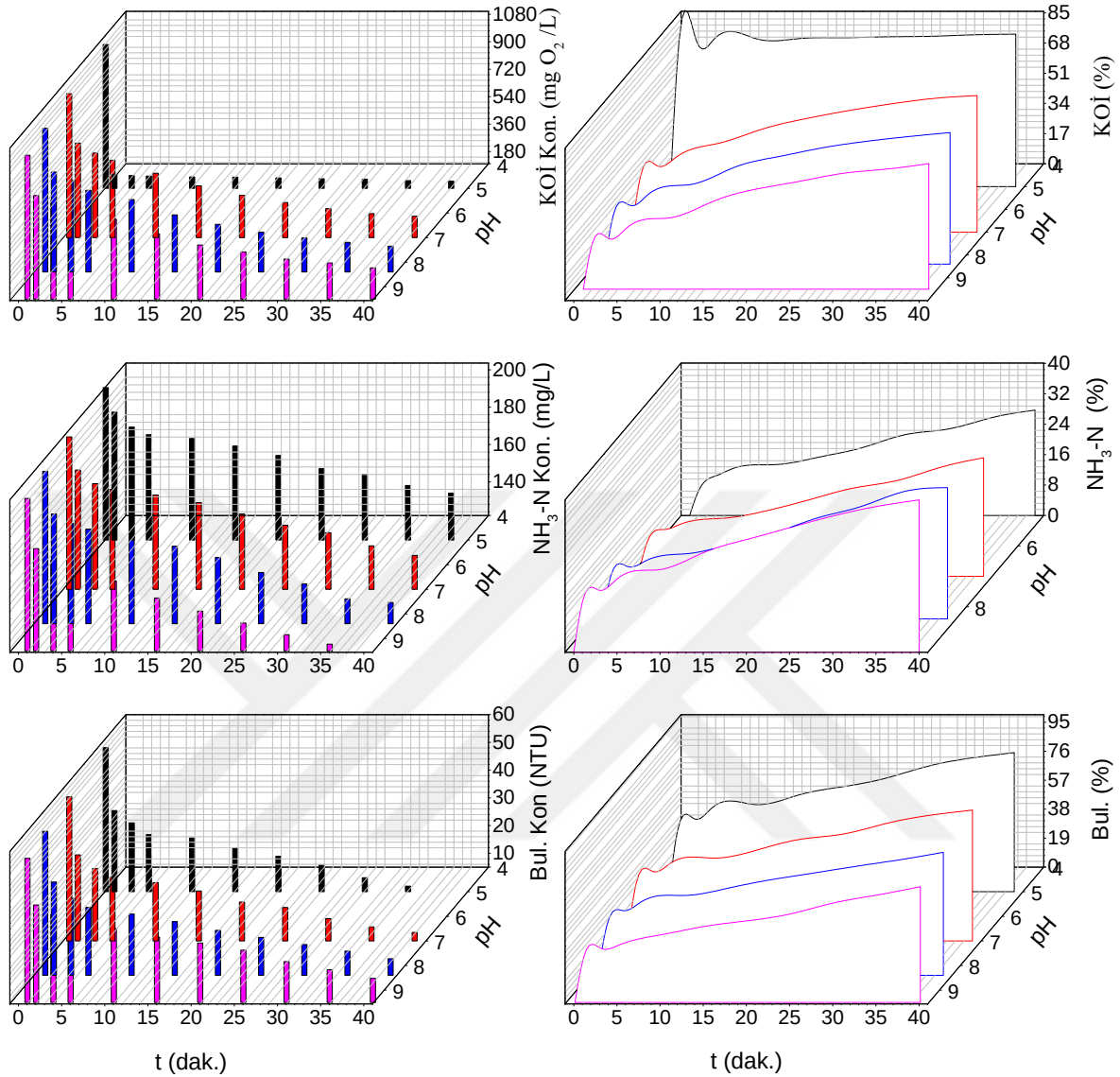
5, 7, 8.35 ve 9.5 başlangıç pH değerlerine sahip sızıntı suyunun 40 dakikalık bir kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi sonucu çıkış suyu pH değerleri sırası ile 8.14, 9.06, 9.37 ve 10.22 olarak belirlenmiştir.

Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık giderimlerinin pH 5 ve 7 değerlerinde yüksek verime sahip olduğu belirlenmiştir. pH 5 ve 7 aralığında ortamda bulunan katı $\text{Al}(\text{OH})_3$ ve TAK partiküllerinin çözelti ortamında bulunan okside olmuş yan ürünleri, çözünmüş maddeleri ve destabilize olmuş kolloidleri üzerinde adsorplayarak ortamdan uzaklaştırdıkları veya bu maddelerin çökme yoluyla çözelti ortamından uzaklaştıkları düşünülmektedir. pH 8.35 ve 9.35 değerlerinde KOİ ve bulanıklık giderim verimleri çözelti ortamında bulunan katı $\text{Al}(\text{OH})_3$ miktarının az olması ve $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ türünün aşırı miktarda bulunmasından kaynaklandığı düşünülmektedir.

Yüksek pH değerlerinde çözelti ortamından $\text{NH}_3\text{-N}$ giderimi yüksek pH değerlerinde karıştırmanın etkisiyle çözelti ortamına geçen hava ve anotta oluşan H_2 gazı kabarcıklarıyla flotasyon şeklinde ya da oluşan katı $\text{Al}(\text{OH})_3$ üzerinde NH_3 'ün absorbe olması şeklinde gerçekleştiği düşünülmektedir. Ayrıca çözeltide bulunan NH_3 'ün TAK yüzeyindeki fonksiyonel gruplara polar moleküller arasında meydana gelen Van der Waals kuvvetlerinden biri olan dipol-dipol etkileşimi sonu adsorbe olmasından kaynaklandığı söylenilebilir.

pH ile ilgili yapılan açıklamalara ilaveten TAK partiküllerinin çözeltinin pH değerinden nasıl etkilendiğini ve bunun sonucunda nasıl bir davranış sergileyebileceklerini belirlemek için TAK partiküllerinin pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerinde adsorpsiyondan önce ve sonra zeta potansiyel analizleri gerçekleştirilmiştir. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerindeki zeta potansiyel değerleri sırası ile 193.3, 0, 0 ve 0 mV olarak bulunmuştur. Adsorpsiyon sonrasında TAK partiküllerinin pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerlerindeki zeta potansiyelleri ise sırası ile 45.3, 21.54, -5.1 ve -404.9 mV olarak belirlenmiştir. Asidik pH değerinde çözünmüş organik madde ve negatif yüklü koloidal maddelerin pozitif yüklü TAK partiküllerinin yüzeyine adsorpsiyonu artmış ve bunun sonucunda sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. Adsorpsiyondan önce çözelti pH değerlerinin artması sonucu partiküllerin yüzey yükü nötr hale gelmiştir. pH 8.35 ve 9.5 değerlerinde adsorpsiyondan sonra TAK partiküllerinin yüzey yükü azalıp negatif değerlere ulaşması sonucu

adsorbat ve adsorbent yüzeyi arasındaki itmelerden dolayı sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır.



Şekil 62. Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi ile farklı pH değerlerinin fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L, T 20°C, pH 8.35, akım yoğunluğu 20 mA/cm², karıştırma hızı 300 rpm, elektrotlar arası mesafe 1 cm ve elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L)

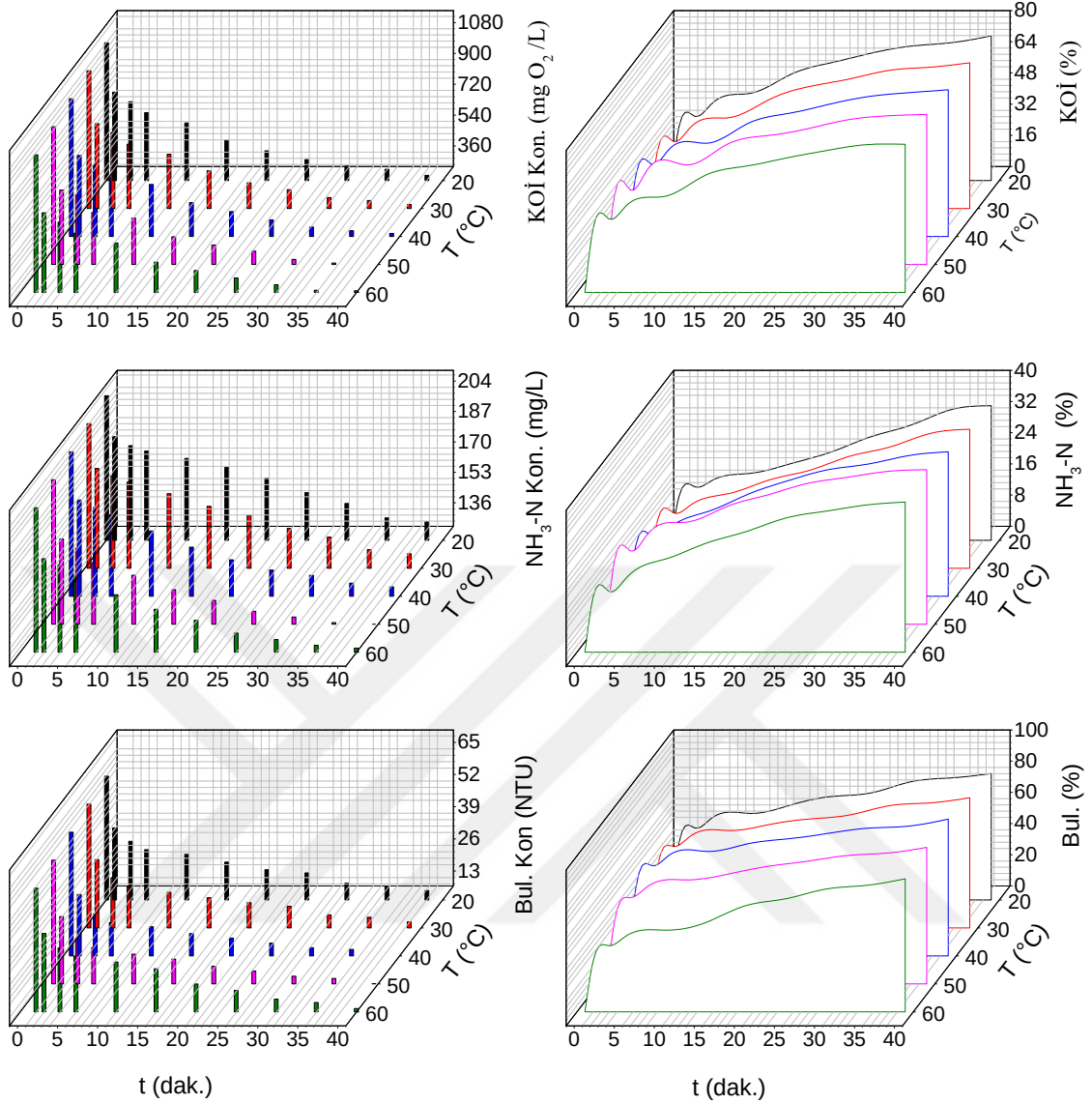
Şekil 62’de görüldüğü gibi asidik pH değerlerinde sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık giderim verimleri artmış bazı pH değerlerinde ise azalmıştır. Buna karşı asidik pH değerlerinde NH₃-N giderim verimi azalmış bazı pH değerlerinde ise artmıştır. Ayrıca, pH 8.35 değeri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu BOİ₅ konsantrasyonu ve BOİ₅/KOİ oranı sırası ile (158 mg O₂/L) ve (0.58) olarak belirlenmiştir. pH 8.35 değerinde kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi çıkış suyu için BOİ₅/KOİ oranları tasfiye edilmemiş atıksular için 0.4-0.8 standart limit değerleri arasında olduğu belirlenmiştir. Bu nedenle elektrokoagüle olmuş sızıntı suları kanalizasyon sistemlerine deşarj edilebilir.

Kombine elektorkoagülasyon-TAK adsorpsiyon prosesi ile farklı pH değerlerinde sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim mekanizmaları literatürde yapılan diğer çalışmalara ilgili mekanizmalarla bağdaşmaktadır (Al-Qodah *et al.* 2020; Benhelal *et al.* 2019; Halim *et al.* 2010; Kannan, 2006; Karri *et al.* 2018; Kinidi & Salleh, 2020; Linares-Hernández *et al.* 2007).

Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanık giderimine sıcaklığın etkisi

20, 30, 40, 50 ve 60°C başlangıç sıcaklıklarının kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 63'te gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar TAK miktarı 5g/L, doğal pH 8.35, akım yoğunluğu 20 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir.

20, 30, 40, 50 ve 60°C'lik başlangıç sıcaklıkları değerleri için 40 dakikalık bir kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyon prosesi sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri kısmen olarak artmış olup sırası ile (%74, %75, %76, %77 ve %75), (%35, %36 %37, %39 ve %40) ve (%81, %82, %84, %88 ve %86) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ ve bulanıklık giderim verimleri 50°C'de sırası ile %77 ve %88 olarak belirlenmiştir. En yüksek NH₃-N giderim verimi ise 60°C'de %40 olarak belirlenmiştir. Şekil 63'ten görüldüğü gibi sıcaklık değerleri 20°C'ten 50°C'e yükselmesi ile KOİ ve bulanıklık giderim verimleri artmış ancak başlangıç sıcaklık değeri 50°'ten 60°C'e çıkınca oluşan flokların parçalanması ile KOİ ve bulanıklık giderim verimlerinde kısmen de olsa bir azalma meydana gelmiştir. Kombine EK-TAK adsorpsiyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EK prosesi ile mukayese edildiğinde oldukça artmıştır. 50°C sıcaklık değeri için KOİ ve bulanıklık giderim verimindeki artışlar sırası ile %22.5 ve %31 olarak belirlenmiştir. NH₃-N giderim verimindeki artış ise %15 olarak belirlenmiştir. Ayrıca, 20°C değeri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu BOİ₅ konsantrasyonu ve BOİ₅/KOİ oranı sırası ile (158 mg O₂/L) ve (0.58) olarak belirlenmiştir. 20°C değerinde kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi çıkış suyu için BOİ₅/KOİ oranları tasfiye edilmemiş atıksular için 0.4-0.8 standart limit değerleri arasında olduğu belirlenmiştir. Bu nedenle elektrokoagüle olmuş sızıntı suları kanalizasyon sistemlerine deşarj edilebilir.



Şekil 63. Kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile farklı başlangıç sıcaklık değerlerinin fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 $\text{mg-O}_2/\text{L}$, $\text{NH}_3\text{-N}$ 204 mg/L , bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L , pH 8.35, akım yoğunluğu 20 mA/cm^2 , karıştırma hızı 300 rpm, elektrotlar arası mesafe 1 cm ve elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L)

Kimyasal reaksiyon hızlarında olduğu gibi kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyon prosesinin reaksiyon hızı çözelti sıcaklığının artması ile kısmen de olsa artmıştır (Al-Raad *et al.* 2020; Modirshahla *et al.* 2008). Sıcaklığın artması ile sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimlerinin artması aşağıdaki gibi açıklanabilir:

- (iii) Elektrokoagülasyon prosesinde belli bir değere kadar sıcaklığın artması akım verimi ve aktivitenin artmasına neden olup elektrot yüzeyindeki alüminyum oksit filmin bozulmasıyla meydana gelmektedir. Çözelti sıcaklığının artması alüminyum

anotta çözünen Al^{3+} katyonlarının çözünmesini hızlandırıp artırmaktadır. Al^{3+} katyonları daha sonra $Al(OH)_3$ katısına dönüşmektedirler.

- (iv) Sıcaklığın artması Stokes-Einstein denklemine göre Al^{3+} katyonlarının bulk çözeltiye difüzyon hızını artırıp anot yüzeyinden ana çözeltiye Al^{3+} katyonlarının kütle transfer hızını artırarak kirletici parametrelerin ana çözeltiden koagülasyonla uzaklaşmasına neden olmaktadır.
- (v) Sıcaklığın artması ile kinetik enerji artacağından dolayı TAK partiküllerinin çözelti ortamında bulunan kirleticilerle etkileşimi artarak veya sıcaklığın artması ile partiküllerdeki şişme etkisi sonucu kirleticilerin TAK yüzeyinde bulunan porlara kütle transferi hızlanacaktır.
- (vi) Ayrıca sıcaklığın artması ile $Al(OH)_3$ katısı üzerinde adsorplanmış kirleticiler TAK yüzeyindeki aktif bölgelere ve porlara elektrostatik veya kimyasal bağlarla adsorbe olacaklardır. Böylece kombine prosesin sinerjik etkisi sızıntı suyundan KOI , NH_3-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artmasına neden olacaktır.

Yukarıda belirtilen nedenlerden dolayı sıcaklıkta meydana gelen bir artış sızıntı suyundan KOI , NH_3-N ve bulanıklık giderim verimlerini kısmen de olsa pozitif yönde etkilediği Şekil 63'ten görülmektedir. Ayrıca sızıntı suyundan NH_3-N 'nun gideriminde başka bir neden: sızıntı atıksuyunun başlangıç sıcaklığının artması sonucu amonyakın sıcaklıkla çözünürlüğünün azalmasından dolayı ortamdan NH_3-N giderim verimi yine kısmen de olsa artmıştır.

Çözelti sıcaklığına bağlı olarak, KOI , NH_3-N ve bulanıklık giderimleri literatürde yapılan diğer çalışmalar tarafından benzer mekanizmalar kullanılarak açıklanmıştır (Joseph *et al.* 2021; Mahdavi *et al.* 2018).

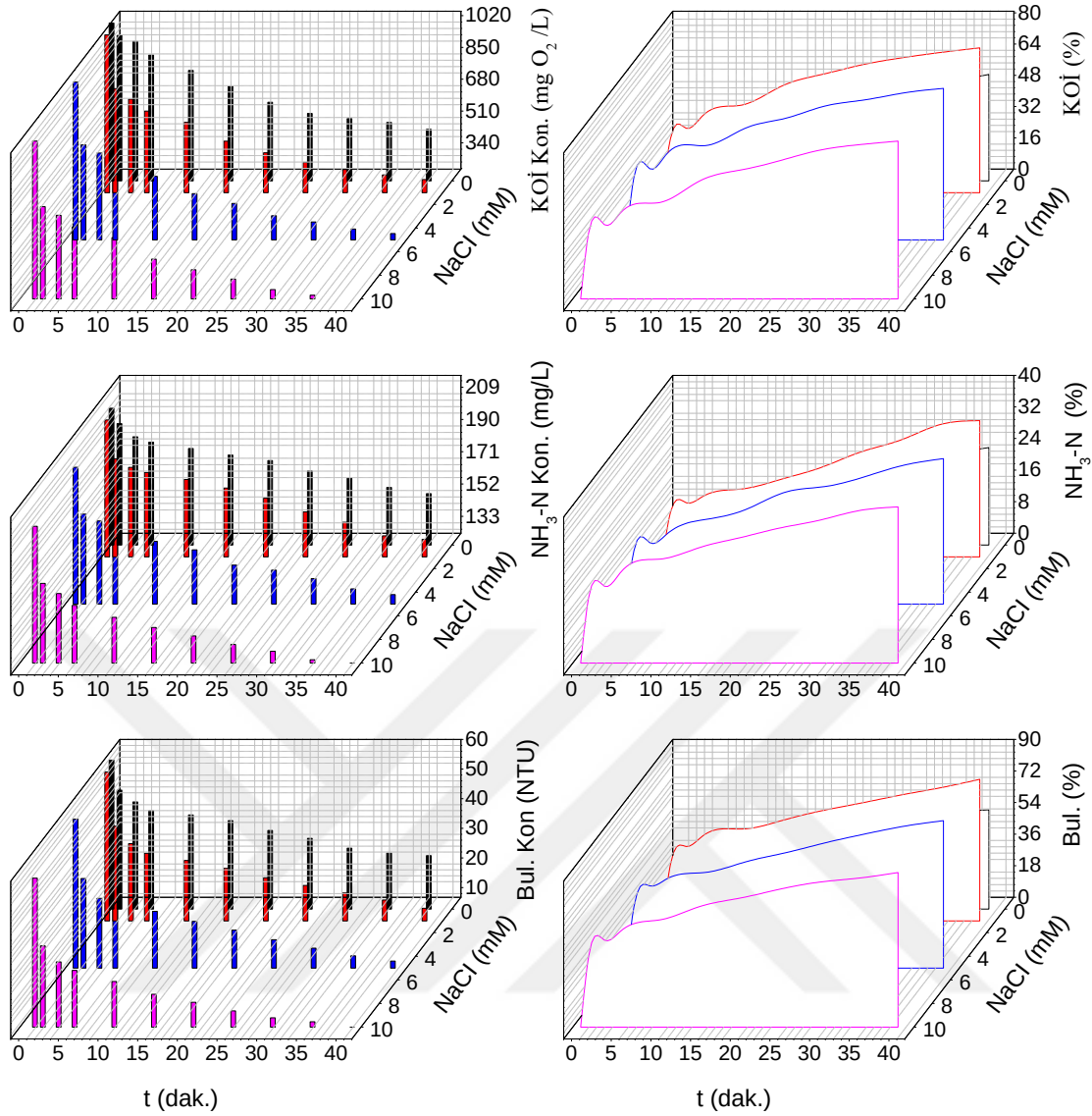
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOI , NH_3-N ve bulanıklık giderimine $NaCl$ destek elektrolitinin etkisi

Elektrolitler çözelti ortamında hem iletkenliği yükseltmek hem de akımın etkisini artırmak amacıyla kullanılan kimyasal içerikler olup elektrokoagülasyon uygulamalarında yaygın bir kullanım alanına sahiptirler.

0, 1, 5 ve 10 mM'lık $NaCl$ destek elektrolit konsantrasyonlarının kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOI , NH_3-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 64'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar TAK miktarı 5 g/L, doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, akım yoğunluğu 20 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm olan atıksu ortamında gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten

sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. Başlangıç doğal pH değeri 8.35 olan sızıntı suyunun 40 dakikalık bir reaksiyon sonucunda 1, 5 ve 10 mM'lık NaCl konsantrasyon değerleri için çıkış suyu pH değerleri sırası ile 9.46, 9.73 ve 10.08 olarak belirlenmiştir. 0, 1, 5 ve 10 mM'lık NaCl konsantrasyon değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%55, %74, %78 ve %81), (%25, %35, %37 ve %40) ve (%57, %81, %84 ve %89) olarak belirlenmiştir.

En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 10 mM'lık NaCl konsantrasyon değeri için sırası ile %81, %40 ve %89 olarak elde edilmiştir. Şekil 64'ten görüldüğü gibi NaCl destek elektrolit konsantrasyonunun artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. Kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EK prosesi ile mukayese edildiğinde verimler oldukça artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki artışlar sırası ile %26, %15 ve %32 olarak belirlenmiştir. Ayrıca, 0 ve 10 mM NaCl değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu BOİ₅ konsantrasyonu ve BOİ₅/KOİ oranları sırası ile (158 ve 125 mg O₂/L) ve (0.58 ve 0.63) olarak belirlenmiştir. 0 ve 10 mM NaCl değerlerinde kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi çıkış suyu için BOİ₅/KOİ oranları tasfiye edilmemiş atıksular için 0.4-0.8 standart limit değerleri arasında olduğu belirlenmiştir. Bu nedenle elektrokoagüle olmuş sızıntı suları kanalizasyon sistemlerine deşarj edilebilir.



Şekil 64. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile farklı NaCl destek elektrot konsntrasyonlarının fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L, pH 8.35, akım yoğunluğu 20 mA/cm², karıştırma hızı 300 rpm, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Sızıntı suyunda kullanılan NaCl destek elektrolit konsantrasyonunun artması ile anot elektrotun pasivizasyonunda azalmaya neden olarak çözelti ortamına daha fazla Al³⁺ katyonlarının geçmesine neden olmuştur.

Kombine EK-TAK adsorpsiyon prosesi sırasında Cl⁻ iyonları girdikleri bir dizi reaksiyondan sonra kirleticileri oksitleyebilecek ClO⁻ iyonuna dönüşmektedir (C.-T. Wang *et al.* 2009). Oluşan OCI⁻ iyonları çözeltideki çözünmüş maddeleri oksitleyerek ara ürünler oluşturmaktadırlar. Bu ara ürünler, destabilize olmuş koloidal yapılar ve diğer polar yapıların eş zamanlı olarak Al(OH)₃ katısı ve TAK yüzeyinde adsorplandıkları düşünülmektedir. Ayrıca Al(OH)₃ katısı ve TAK partiküllerinin birbirleri ile elektrostatik olarak etkileşmesi sonucu oluşan bu ürünler adsorplandıkları partiküle bağlı olarak ya çökelirler ya da karıştırma yoluyla

çözeltiye geçen hava kabarcıkları ve katotta oluşan hidrojen gazı kabarcıkları yardımıyla flotasyona uğrayarak çözelti ortamından uzaklaşırlar. Geniş yüzey alanı ve aktif bölgelere sahip olan TAK partikülleri çözeltide bulunan parçalanmış ara ürünleri, destabilize olmuş kolloial maddeleri ve $\text{NH}_3\text{-N}$ 'nu kendi yüzey yapısında bulunan fonksiyonel gruplar vasıtası ile Van der Waals kuvvetlerinden olan iyon-dipol etkileşimi veya dipol-dipol etkileşimi sonucu absorbe ettikleri düşünülmektedir. Ayrıca çözülmüş organik madde ile reaksiyona girerek oluşan klorlu organik bileşiklerin de TAK yüzeyinde elektrostatik etkileşimle adsorplandığı söylenebilir.

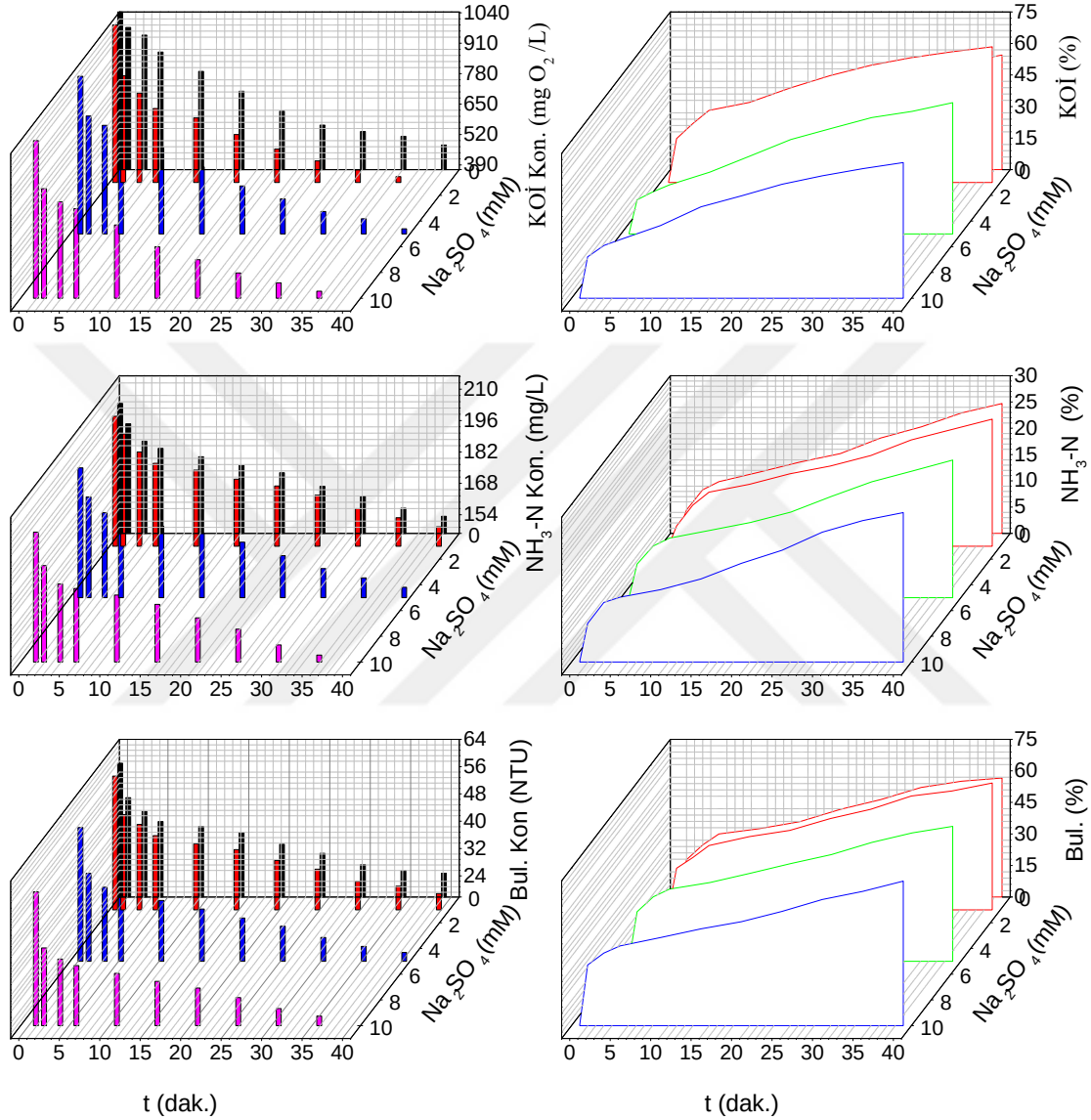
NaCl destek elektrolit konsantrasyonuna bağlı olarak sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimleri literatürde yapılan diğer çalışmalarda önerilen mekanizmalarla desteklenmektedir (Joseph *et al.* 2021; Mahdavi *et al.* 2018).

Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine Na_2SO_4 destek elektrolitinin etkisi

0, 1, 5 ve 10 mM'lık Na_2SO_4 destek elektrolit konsantrasyonlarının kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 65'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar TAK miktarı 5 g/L, doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, akım yoğunluğu 20 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm olan atıksu ortamında gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyondan sonra reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık, BOİ_5 ve $\text{BOİ}_5/\text{KOİ}$ değerleri belirlenmiştir. Başlangıç doğal pH değeri 8.35 olan sızıntı suyunun 40 dakikalık bir reaksiyon sonucunda 1, 5 ve 10 mM'lık Na_2SO_4 konsantrasyon değerleri için çıkış suyu pH değerleri sırası ile 9.4, 9.45 ve 9.52 olarak belirlenmiştir. 0, 1, 5 ve 10 mM'lık Na_2SO_4 konsantrasyon değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%55, %63, %65 ve %66), (%25, %35, %36 ve %37) ve (%57, %61, %69 ve 75) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri 10 mM'lık Na_2SO_4 destek elektrolit kullanıldığında sırası ile %66, %37 ve %75 olarak elde edilmiştir. Şekil 65'ten görüldüğü gibi Na_2SO_4 destek elektrolit konsantrasyonunun artması ile KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri kısmen de olsa artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri EK prosesi ile mukayese edildiğinde yine oldukça artmıştır. KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimlerindeki artışlar sırası ile %11, %12 ve %18 olarak belirlenmiştir.

Kombine elektrokoagülasyon-adsorpsiyon prosesi sırasında Cl^- iyonları girdikleri bir dizi reaksiyondan sonra kirleticileri oksitleyebilecek ClO^- iyonuna dönüşmektedirler (C.-T. Wang *et al.* 2009). OCI^- iyonları çözeltide çözülmüş maddeleri oksitleyerek ara ürünler

oluştururlar. Oluşan ara ürünler, destabilize olmuş koloidal yapılar ve diğer polar yapılar eş zamanlı olarak $\text{Al}(\text{OH})_3$ katısı ve TAK yüzeyinde adsorplanmanın yanı sıra ayrıca $\text{Al}(\text{OH})_3$ katısı ve TAK partiküllerinin birbirleri ile etkileşmesi sonucu ya çökelirler ya da karıştırma yoluyla çözeltiye geçen hava kabarcıkları ve katotta oluşan H_2 gazı kabarcıkları yardımıyla flotasyona uğrayarak çözelti ortamından uzaklaşırlar.



Şekil 65. Kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile farklı Na_2SO_4 destek elektrot konsantrasyonlarının fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 $\text{mg-O}_2/\text{L}$, $\text{NH}_3\text{-N}$ 204 mg/L , bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L , pH 8.35, akım yoğunluğu 20 mA/cm^2 , karıştırma hızı 300 rpm, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Ayrıca, geniş yüzey alanı ve aktif bölgelere sahip TAK partikülleri çözeltide bulunan parçalanmış ara ürünleri, destabilize olmuş koloidal maddeleri ve $\text{NH}_3\text{-N}$ 'unu kendi yüzeyinde bulunan fonksiyonel grupları Van der Waals kuvvetlerinden iyon-dipol etkileşimi veya dipol-dipol etkileşimi ile adsorbe ettiği düşünülmektedir. Ayrıca çözünmüş organik madde ile

reaksiyona girerek oluşan klorlu organik bileşiklerin de TAK yüzeyinde elektrostatik etkileşimle adsorplandığı söylenebilir.

Çözeltide SO_4^{2-} destek iyonlarının mevcudiyetinde sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri Cl^- destek elektroliti ile kıyaslandığında kirletici maddelerin giderim verimlerinde önemli bir miktar azalma meydana gelmiştir. Bu azalmanın nedeni şu şekilde açıklanabilir:

Kompleks bir karakter içeren sızıntı suları Ca^{2+} , Mg^{2+} , CO_3^{2-} içermektedir. Bu iyonlar CaCO_3 , MgCO_3 , CaSO_4 ve MgSO_4 şeklinde alüminyum anot üzerinde adsorbe olmaktadır (Chou *et al.* 2009; Mansoorian *et al.* 2012). Ayrıca anotta OH^- iyonlarının indirgenmesi ile oluşan çözünmüş oksijen (O_2) katı alüminyum ile (Al^0) reaksiyona girerek oluşan Al_2O_3 yapısı anot yüzeyinde pasivizasyon tabakasının oluşumuna neden olmaktadır (Mansouri *et al.* 2011). Anot yüzeyine adsorbe olan bu tabakalar yalıtım görevi yaparak elektrokimyasal hücrenin ohmik direncinde bir artışa neden olup sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimlerinde önemli bir azalmaya neden olmuşlardır. Ancak sızıntı suyu ortamında Cl^- iyonlarının bulunması durumunda anot yüzeyinde bulunan bu yapılar Cl^- iyonları ile reaksiyona girmektedirler. Cl^- iyonları oluşan pasivizasyon tabakasını uzaklaştırarak bu yapıları CaCl_2 , MgCl_2 ve AlCl_3 şeklinde tekrar bulk çözeltiye transfer olmasına neden olurlar. Dolayısı ile çözelti ortamındaki alüminyum türleri konsantrasyonu zamanla artmaktadır. Böylece SO_4^{2-} iyonlarının artması ile KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri iletkenliğin artmasından dolayı kısmen de olsa bir miktar artmıştır.

Na_2SO_4 destek elektrolit konsantrasyonuna bağlı olarak, KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri ile ilgili literatürde yapılan diğer çalışmalarda kirlilik giderim verimleri benzer mekanizmalarla açıklanmıştır (Joseph *et al.* 2021; Mahdavi *et al.* 2018).

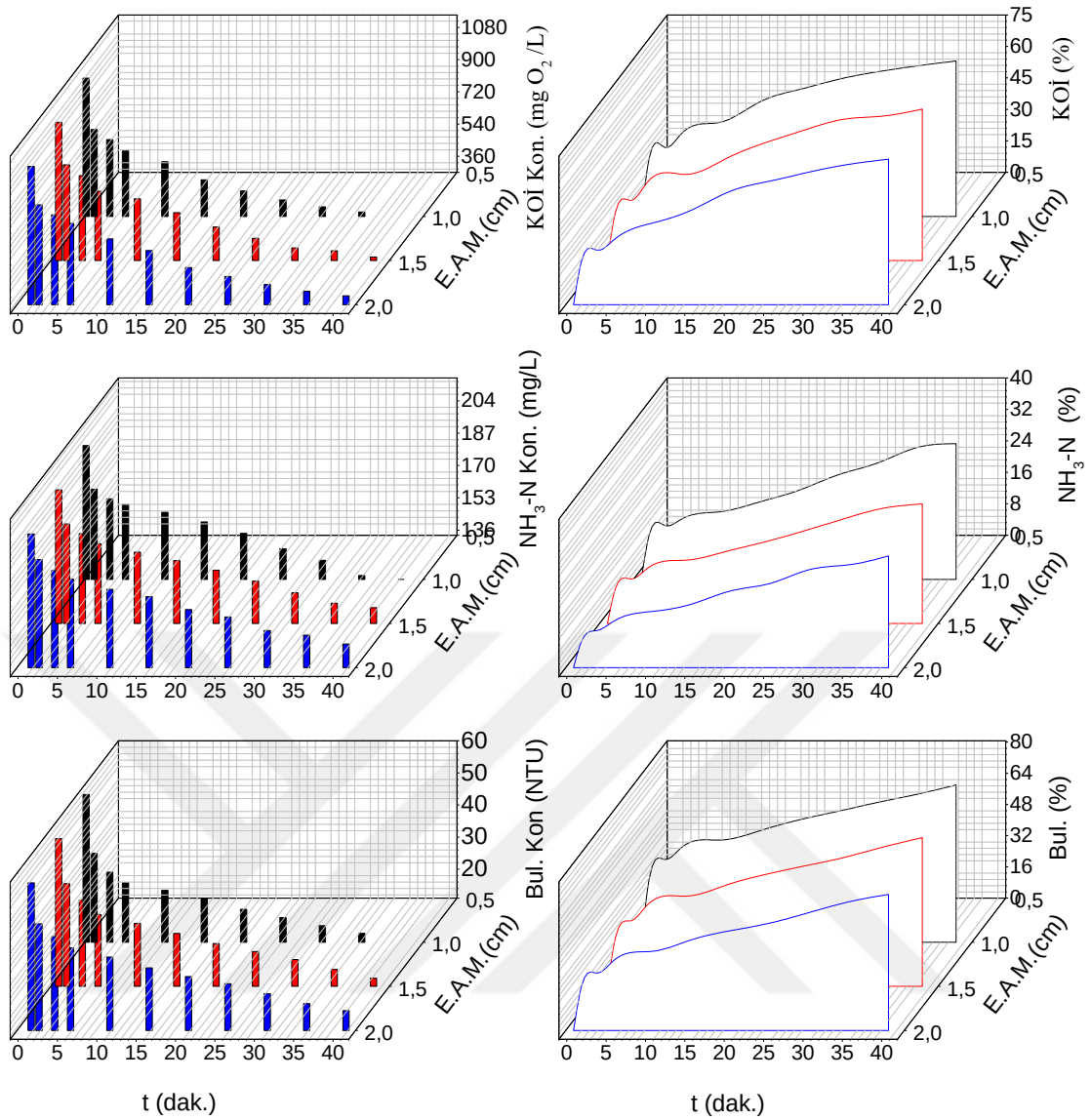
Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine elektrotlar arası mesafenin etkisi

Elektrotlar arası mesafenin elektrokoagülasyon prosesi performansına etkisi önemli bir parametredir. Literatürde elektrotlar arası mesafenin elektrokoagülasyon prosesine olan etkisi elektrot yapısı, hidrodinamik koşullar ve kirletici doğası gibi birçok faktöre bağlı olduğu ifade edilmektedir (Daneshvar *et al.* 2004; MODIRSHAHLA, 2007).

1, 1.5 ve 2 cm'lik elektrotlar arası mesafenin kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 66'da gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar TAK miktarı 5 g/L, doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, akım yoğunluğu 20 mA/cm², karıştırma hızı 300 rpm olan atıksu

ortamında gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon sonunda reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. 1, 1.5 ve 2 cm'lik elektrotlar arası mesafe değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%74, %72 ve %69), (%35, %30 ve %28) ve (%81, %76 ve 70) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 1 cm'lik elektrotlar arası mesafe için sırası ile %74, %35 ve %81 olarak bulunmuştur. Şekil 66'dan görüldüğü gibi elektrotlar arası mesafenin azalması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır. Kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EK prosesi ile mukayese edildiğinde artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki artışlar sırası ile %18, %10 ve %24 olarak belirlenmiştir.

Elektrotlar arası mesafenin elektrokoagülasyon prosesi performansı üzerine olan etkisi önemli bir parametredir. Literatürde elektrotlar arası mesafenin elektrokoagülasyon prosesine olan etkisi, elektrot yapısı, hidrodinamik koşullar ve kirletici doğası gibi birçok faktöre bağlı olduğu ifade edilmektedir (Daneshvar *et al.* 2004; MODIRSHAHLA, 2007). Elektrotlar arası mesafenin artması ile elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde belirlenen azalma elektrotlar arasındaki mesafenin artması ile prosesin elektriksel iletkenliğindeki düşüşten kaynaklandığı söylenebilir.



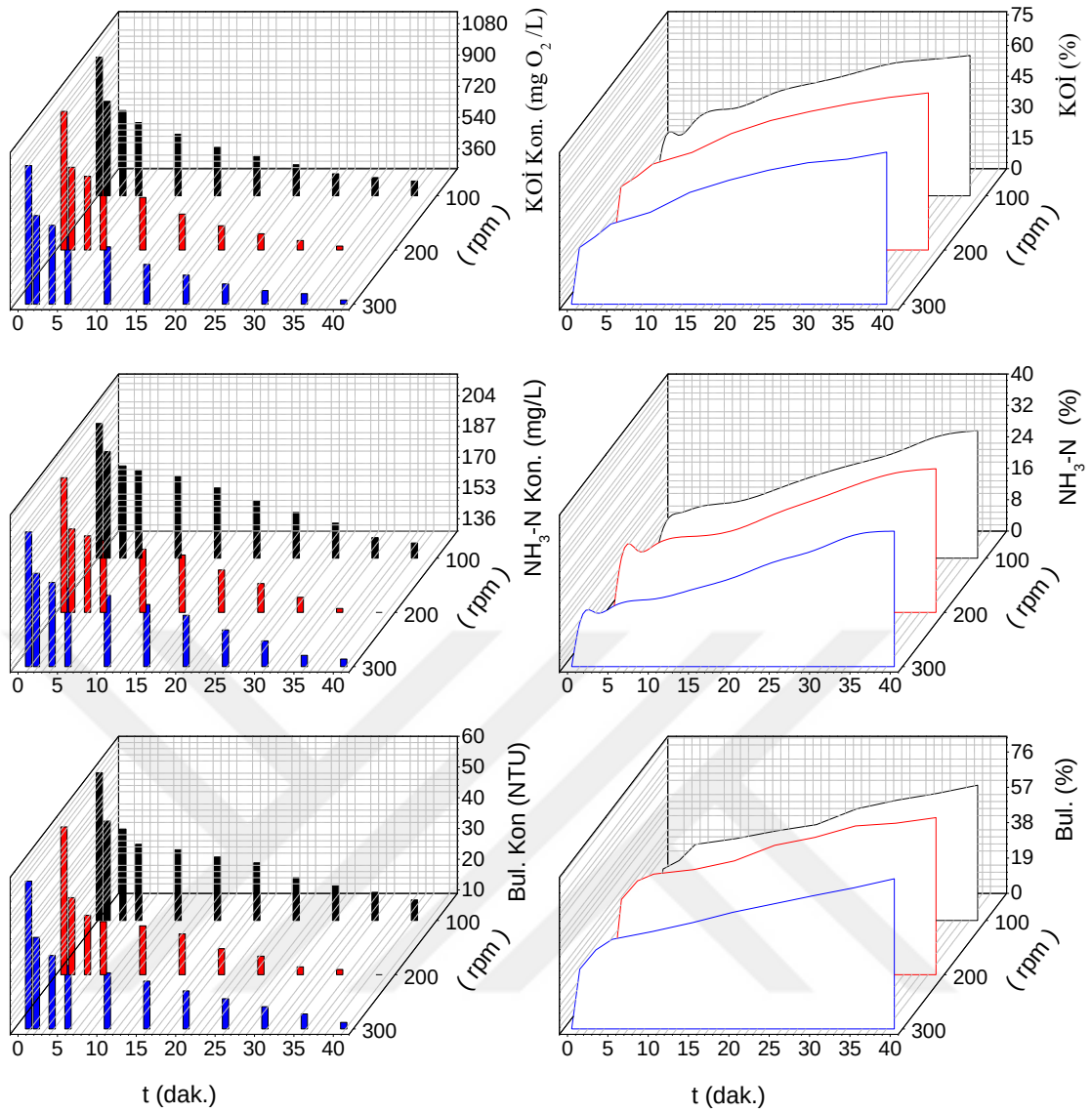
Şekil 66. Kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile farklı elektrot mesafeleri fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 $\text{mg-O}_2/\text{L}$, $\text{NH}_3\text{-N}$ 204 mg/L , bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L , pH 8.35, akım yoğunluğu 20 mA/cm^2 , karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L)

Elektriksel iletkenliğin azalması aynı zamanda iyon metalinin çözünmesinde de bir azalmaya yol açarak yığın çözelti içindeki flok sayısını en aza indirdiği düşünülmektedir. Bununla birlikte elektrotlar arası mesafenin artması ile sızıntı suyundaki destabilize olmuş koloidal maddelerin ve çözünmüş maddelerin iyonik haldeki alüminyum türleri ve alüminyum hidroksit katısı ile etkileşimini azaltmaktadır. Bundan dolayı iyonlar arasındaki elektrostatik çekim ve oluşan alüminyum türlerinin konsantrasyonunda azalmaya neden olmaktadır. Bu nedenle sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri elektrotlar arası mesafenin artması ile azalmıştır (Khandegar & Saroha, 2012; Naje *et al.* 2019).

Elektrotlar arası mesafeye bağılı olarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile ilgili literatürde yapılan diğer çalışmalarda kirletici giderimi hakkında benzer mekanizmalarla açıklamalar yapılmıştır (Joseph *et al.* 2021; Mahdavi *et al.* 2018).

Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi

100, 200 ve 300 rpm'lik karıştırma hızlarının kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 67'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar TAK miktarı 5 g/L, doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, akım yoğunluğu 20 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm olan atıksu ortamında gerçekleştirilmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık, BOİ₅ ve BOİ₅/KOİ değerleri belirlenmiştir. 100, 200 ve 300 rpm'lik karıştırma hızı değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%68, %77 ve %74), (%33, %37 ve %35) ve (%73, %84 ve %81) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 200 rpm'lik karıştırma hızı kullanıldığında sırası ile %77, %37 ve %84 olarak belirlenmiştir. Şekil 67'den görüldüğü karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm'e çıkması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmış 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesiyle KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde kısmen bir azalma meydana gelmiştir. Kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EK prosesi ile mukayese edildiğinde artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki artışlar 200 rpm değeri için sırası ile %22, %12 ve %28 olarak belirlenmiştir.



Şekil 67. Kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile farklı karıştırma hızlarının fonksiyonu olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, TAK 5 g/L, pH 8.35, akım yoğunluğu 20 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L)

Homojen çözelti ortamı koagülantlar, çözünmüş organik maddeler, okside olmuş ara ürünler ve partikül halindeki süspanse maddeler arasında temas sağlamak açısından önemlidir. Karıştırma hızı anot pasifliğini azaltarak anot çözünmesini artırır ve oluşan koagülantı hareket ettirerek bulk çözeltiye transfer eder. Ayrıca uygun bir karıştırma hızı çözeltideki kirleticileri ve koagülantları homojenize etmektedir. Uygun karıştırma hızlarında koagülantların destabilize olmuş kolloidlerle adsorpsiyonu ve oluşan Al(OH)₃ katısı tarafından ağ şeklinde sarılarak tutulması karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm'e çıkması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimi artırmıştır.

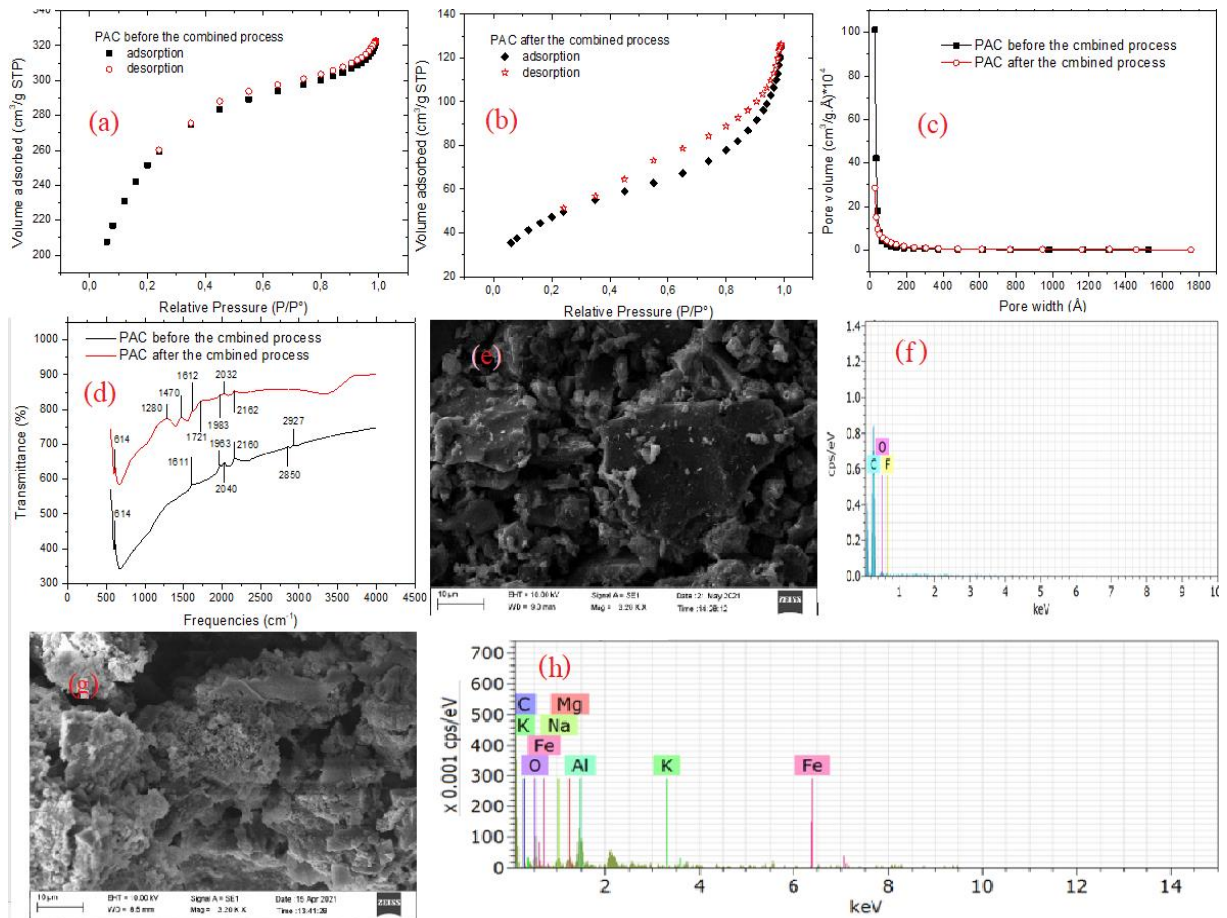
Reaksiyon ortamında oksidasyonla oluşan ürünler, koloidal yapılar ve diğer polar yapılar eş zamanlı olarak $\text{Al}(\text{OH})_3$ katısı ve TAK yüzeyinde adsorplanmanın yanı sıra ayrıca katı $\text{Al}(\text{OH})_3$ ve TAK partiküllerinin birbirleri ile etkileşmesi sonucu ya çökeller ya da karıştırma yoluyla çözeltiye geçen hava kabarcıkları ve katotta oluşan H_2 gazı kabarcıkları yardımıyla flotasyona uğrayarak çözelti ortamından uzaklaşırlar. Ayrıca, geniş yüzey alanı ve fonksiyonel bölgelere sahip TAK partiküllerinin çözeltide bulunan parçalanmış ara ürünleri, destabilize olmuş kolloial maddeleri ve $\text{NH}_3\text{-N}$ 'nu yüzeyinde bulunan fonksiyonel gruplarla polar moleküller arasında meydana gelen Van der Waals kuvvetlerinden iyon-dipol etkileşimi veya dipol-dipol etkileşimi sonu adsorbe ettiği düşünülmektedir. Ayrıca çözünmüş organik madde ile reaksiyona girerek oluşan klorlu organik bileşiklerin de TAK yüzeyinde elektrostatik etkileşimle adsorplandığı söylenebilir.

Karıştırma hızına bağlı olarak KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimleri literatürde yapılan diğer çalışmalarda benzer açıklamalar yapılarak desteklenmektedir (Sohbi Bellebia *et al.* 2012; Bouhezila *et al.* 2011; Hamid *et al.* 2021; Modirshahla *et al.* 2008; Sitorus *et al.* 2018).

Kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesinden önce ve sonra TAK partiküllerinin adsorpsiyon ve desorpsiyon izotermelri, BET yüzey alanları, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM ve EDX görüntüleri

Şekil 68 (a, b) incelendiğinde kombine elektrokoagülasyon prosesinden önce ve sonra TAK partiküllerine ait adsorpsiyon izotermelerinde rölatif (bağıl) basıncın artması ile partiküller tarafından adsorplanan gaz hacmi artmış ve rölatif basınç değeri 0.99 olduğu zaman adsorplanan gaz hacmi maksimum değere ulaşmıştır. Rölatif basınç ekseninin sağına doğru gittikçe adsorplanan N_2 gazı hacminin basıncındaki artışın bir fonksiyonu olarak nasıl değişeceği görülmektedir. Daha sonra rölatif basıncın 1'e yaklaşmasından dolayı gaz basıncı ne kadar artırılırsa artırılın adsorplanan gaz hacmi değişmeyip sabit kalmıştır. Şekil 68 (a) incelendiğinde TAK partiküllerinin adsorpsiyon mekanizması diğer adsorpsiyon türlerine benzemediğinden dolayı adsorpsiyonun Tip I adsorpsiyon izotermi olduğu belirlenmiştir. Tip I izotermine adsorpsiyon çoğunlukla mikroporlarda kemisorpsiyon olarak meydana gelmektedir. Bu durumda adsorplanan madde adsorbentteki mikroporların ve çok az sayıda mezoporların yüzeyine güçlü bir şekilde bağlandıktan sonra adsorbent yüzeyinde adsorbatı barındıracak mikroporların tükenmesinden dolayı adsorpsiyon makroporlarda meydana gelmemiştir (Z. Chen *et al.* 2021; Koyuncu & Kul, 2020; F. Liu *et al.* 2021). Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderildikten sonra TAK partiküllerinin mikroporları kirleticilerle tükendikten sonra TAK partiküllerinin adsorpsiyon ve desorpsiyon izotermelri Şekil 68 (b)'de olduğu gibi gösterilmiştir. Bu şekil incelendiğinde rölatif basınç değerinin artması ile adsorplanan gaz

hacmi artmış ancak adsorpsiyondan sonra adsorbent yüzeyindeki adsorplanan gaz hacmi oldukça azalmıştır. Şekil 68 (b) incelendiğinde bu adsorpsiyon ve desorpsiyon izotermine Tip II adsorpsiyonuna uyduğu belirlenmiştir (Gong *et al.* 2022; Koyuncu & Kul, 2020; D. Liu *et al.* 2021). Bu tür adsorpsiyonda adsorpsiyon eğrisi sigmoidal olup oluşacak izoterm eğrileri hem gözeneksiz hem de makro gözenekli adsorbentlerde fiziksel soğurma şeklinde meydana gelmektedir. Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesinden sonra kirletici parametrelerin TAK partikülleri yüzeyine adsorlandıktan sonra adsorbentte mikro ve mezo porlar büyük ölçüde tükenmiştir. Arta kalan mezoporlar ve makroporlarda ise por genişliğinden dolayı gaz adsorpsiyonu gerçekleşmemiştir.



Şekil 68. 373 K sıcaklığında kombine EK-TAK prosesinden önce ve sonra TAK partiküllerine ait N₂ adsorption/desorption izotermi (a, b), adsorbent por boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (c), FTIR spektrumları (d), SEM görüntüleri (e, g) ve EDX grafikleri (f, h)

Kombine EK-TAK adsorpsiyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden önce ve sonra TAK partiküllerin yüzey alanı ve por hacimlerini belirlemek için Brunauer-Emmett-Teller (BET) yüzey alanı analizleri gerçekleştirilmiştir. Kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesinden önce ve sonra TAK partiküllerinin BET yüzey alanı ve por hacmi sırasıyla (888 m² g⁻¹ ve 0.498 cm³ g⁻¹) ve (173 m² g⁻¹ ve 0.18 cm³ g⁻¹) olarak belirlenmiştir. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra ortalama por çapı ise sırasıyla 22.28 ve 42.8

Å olarak belirlenmiştir. Kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesinden sonra partiküllerin yüzey alanı ve hacimlerinde meydana gelen azalma ve ortalama por çapındaki artış KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin TAK partiküllerinin yüzeyinde adsorplandığını belirtmektedir.

Kombine EK-TAK prosesinde kullanılan TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra por boyutu dağılımlarını belirlemek için Barrett, Joyner and Halenda (BJH) yöntemi uygulanıp Şekil 68 (c)'de gösterilmiştir. Şekil 68 (c) kombine EK-TAK adsorpsiyon prosesinde TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra por çapları ile partiküllerin gram başına cm³ olarak hacimleri arasındaki ilişkiyi göstermektedir. Şekil 68 (c) incelendiğinde adsorpsiyondan önce TAK partiküllerinin por çapları 26.2-1524 Å arasında değiştiği görülmektedir. Şekil 68 (c) incelendiğinde gram başına en yüksek hacme sahip partikül boyutları ile por hacimleri sırası ile (26.2 Å, 0.01 cm³), (32.6 Å, 0.0042 cm³) ve (40.3 Å, 0.0017 cm³) dir. TAK partiküllerinin kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesinden önceki ortalama por çapı 22.3 Å olarak belirlenmiştir. TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin bir kısmı adsorpsiyonla uzaklaştırıldıktan sonra partiküllerin gram başına cm³ olarak hacimleri arasındaki ilişki Şekil 68 (c) verilmiştir. Adsorpsiyondan sonra partiküllerin por çapı ile gram başına sahip oldukları hacimleri sırası ile (26.2-1757.4 Å) ve (0.0028-0.000075 (cm³/g nm) olarak belirlenmiştir. Adsorpsiyondan sonra TAK partiküllerinin ortalama çapı 42.8 Å olarak belirlenmiştir. Kombine EK-TAK prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra TAK partiküllerine ait mikroporlar tamamen tükenmiş mezopor hacimlerinde ise oldukça büyük azalmalar meydana gelmiş ve adsorpsiyondan sonra adsorbentin por çapı artmıştır. Bu durum kirleticilerin sızıntı suyundan kombine EK-TAK prosesi ile uzaklaştırıldığı anlamına gelmektedir.

Gerçekleştirilen bu çalışmada kombine EK-TAK prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde adsorpsiyona katılan aktif grupları belirlemek için FTIR spektrumları kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesinden önce ve sonra analiz edilmiştir. 500-4000 cm⁻¹ frekans aralığında TAK partiküllerine ait FTIR spektrumları Şekil 68 (d)'de gösterilmiştir.

Kombine EK-TAK prosesinden önce TAK partiküllerine ait FTIR spektrumları Şekil 68 (d)'de görüldüğü gibi şu şekilde belirlenmiştir; 614 cm⁻¹ deki bantta RHC=CH₂ vinil yapısında CH₂ titreşimi, 1611 cm⁻¹ frekansında 5 karbonlu halkada C=C grubu titreşimi, 1963 cm⁻¹ frekansında, C=C=C titreşen grup allenler olup belirtisi halojen süstitüentler, 2040 cm⁻¹ frekansında titreşen grup ketenler C=C=O, 2160 cm⁻¹ frekansında R-C≡C-H titreşim grubu, 2850 cm⁻¹ frekansında -CH₂- titreşimi ve 2927 cm⁻¹ frekansında -CH₂- titreşimi (Colthup

2012). Kombine EK-TAK prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra adsorbent yüzeyinde bulunan titreşim yapan grupların geçirimsilik yüzde değerleri artmış piklerde çok sayıda kaymalar meydana gelerek yeni pikler oluşmuştur (Şekil 68 (d)).

Kombine EK-TAK adsorpsiyon prosesinden sonra adsorbentin FTIR spektrumlarındaki değişimler şu şekilde gerçekleşmiştir; adsorpsiyondan sonra 614 cm⁻¹ (RHC=CH₂ vinil yapısında CH₂ salınımı), 1280 cm⁻¹ frekansında –CF₂– titreşimi, 1470 cm⁻¹ frekansında –CH₃ titreşimi, 1612 cm⁻¹ frekansında aromatik birincil aminler titreşimi, 1721 cm⁻¹ frekansında aldehitler titreşimi, 1980 cm⁻¹ frekans değerinde titreşim yapan grup Allenler grubu (C=C=C), 2032 cm⁻¹ frekans değerinde –NH₃⁺ titreşim grubunda aril aminler belirtisi ve 2161 cm⁻¹ frekans değerinde thiocyanates S–C≡N grubunda aromatik belirti olarak gerçekleşmiştir. Şekil 68 (d)’den görüldüğü gibi kombine EK-TAK adsorpsiyon prosesinden sonra piklerin geçirimsilik değerlerinde artma ve çok sayıda yeni piklerin oluşumu ve bazı piklerin diğer piklere kaymaları KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan çözünmüş organik maddelerin ve negatif yüklü kolloidlerin adsorbent yüzeyinde adsorplandığını göstermektedir.

Kombine EK-TAK prosesinden önce TAK partiküllerinin morfolojik yapısını incelemek amacı ile kombine EK-TAK prosesinden önce ve sonra partiküllere ait SEM analizleri gerçekleştirilmiştir. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra elde edilen görüntüleri Şekil 68 (e, g)’de gösterilmiştir. Sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin gideriminden önce TAK partiküllerinin fiziksel morfolojisi aglomera olmuş partiküllerden oluştuğu ve partiküller yüzeyinde sırası ile makro, mezzo ve mikro partiküllerin bulunduğu anlaşılmaktadır. TAK partiküllerinin yüzeyinde çatlakların, yarıkların ve büyük ve küçük deliklerin bulunduğu Şekil 68 (e)’den görülmektedir. Şekil 68 (e), TAK’ın yüzey yapısının heterojen, amorf bir yapı ve değişik por çaplarına sahip olduğunu göstermektedir. Adsorpsiyonun mikroporlarda büyük düzeyde mezoporlarda ise oldukça düşük düzeyde gerçekleştiği yapılan analizlerden anlaşılmaktadır. TAK partiküllerinin yüzeyinde bulunan makroporların kirletici parametrelerin mezo ve mikroporlara transfer olunmasında köprü görevi sağladığı anlaşılmaktadır. Kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesinden sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan çözünmüş organik maddelerin TAK yüzeyinde adsorplanmasından sonra TAK yüzeyinin giderilen kirleticiler tarafından bir örtü şeklinde kaplandıktan sonra mikropor ve mezoporların büyük ölçüde kaybolduğunu yapılan partikül boyut analizleri desteklemektedir.

Kombine EK-TAK adsorpsiyon prosesinden önce ve sonra TAK partiküllerinin yapısında hangi elementlerin bulunduğunu belirlemek ve adsorpsiyon prosesini aydınlatmak amacı ile partiküllerin EDX analizleri yapılmış ve Şekil 68 (f, h)’da gösterilmiştir. TAK

partikülleri kombine EK-TAK prosesinden önce ağırlıkça %81.84 C, %8.11 O ve %2.05 F atomu içermektedir. Kombine EK-TAK prosesinden sonra TAK partikülleri ağırlıkça %34.39 Al, %32.67 O, %12.12 Fe, %9.87 Na, %7.49 Mg, %2.31 K ve %1.14 C atomu içerdiği belirlenmiştir. Kombine prosten sonra TAK partiküllerinin bileşiminde meydana gelen azalma ve kombine EK-TAK adsorpsiyonu prosesinden sonra TAK partiküllerinin bileşiminde meydana gelen değişim sızıntı suyunda bulunan kirletici parametrelerin TAK partikülleri yüzeyinde adsorplanarak uzaklaştırıldığını göstermektedir.

Kombine Elektrokoagülasyon adsorpsiyon (EK-TAK) prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait reaksiyon kinetikleri ve reaksiyon hız sabitleri

Atıksu arıtımında kullanılan herhangi bir reaktörde gerekli kirletici maddeleri istenilen seviyede uzaklaştırmak için reaksiyona ait kinetik çalışmalarının gerçekleştirilmesi reaktördeki hidrolik alıkonma zamanını belirlemek için oldukça önemlidir (Dash & Chaudhari, 2005). Bundan dolayı atıksu arıtma proseslerinin optimizasyonunda reaksiyon hız sabitinin belirlenmesi oldukça önemli bir parametredir.

Reaksiyon hızı birim zamanda reaksiyona giren maddenin konsantrasyonundaki değişim oranı olarak bilinmektedir. Çözelti pH'sı, sıcaklık, akım yoğunluğu, elektrotlar arası mesafe, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun fonksiyonu olarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde yüksek korelasyon katsayılarından ($R^2 > 0.95$) dolayı reaksiyon kinetikleri pseudo-ikinci merteye reaksiyon kinetiği gösterdiği belirlenmiştir. Pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetiği $V = k'[C]^2$ eşitliği ile ifade edilmektedir. Bu reaksiyonun $t = t_0$ ve $t = t$ ve $C = C_0$ ve $C = C$ değerlerinde integrali alındığında $(1/C) = (1/C_0) + k't$ liner formuna dönüşmektedir. Burada C_0 , C , t ve k' değerleri sırası ile sızıntı suyunun mg L⁻¹ olarak başlangıçtaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonları, reaksiyon süresi sonunda mg L⁻¹ olarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonları, dakika cinsinden zaman ve L mg⁻¹ dak⁻¹ pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabitleridir. Kombine elektrokoagülasyon prosesi için farklı deneysel şartlarda belirlenen pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabitlerine ait değerler sırası ile Şekil (69-76)'de verilmiştir.

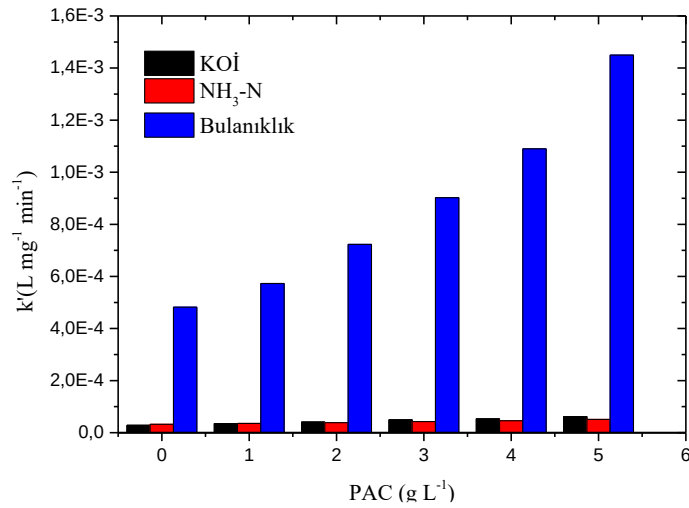
Kombine proseslerle KOİ giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci merteye hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerinin 20°C'den 50°C'e artması ile reaksiyon hız sabiti değeri artmış ve çözelti sıcaklığının 50°C'den 60°C'ye yükselmesi azalmıştır. Ayrıca KOİ giderimi için pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm' çıkması ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır. Kombine

proses ile sızıntı suyundan KOİ gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri başlangıç çözelti sıcaklık değeri $T = 50^{\circ}\text{C}$ değerinde $9.27 \cdot 10^{-5} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir.

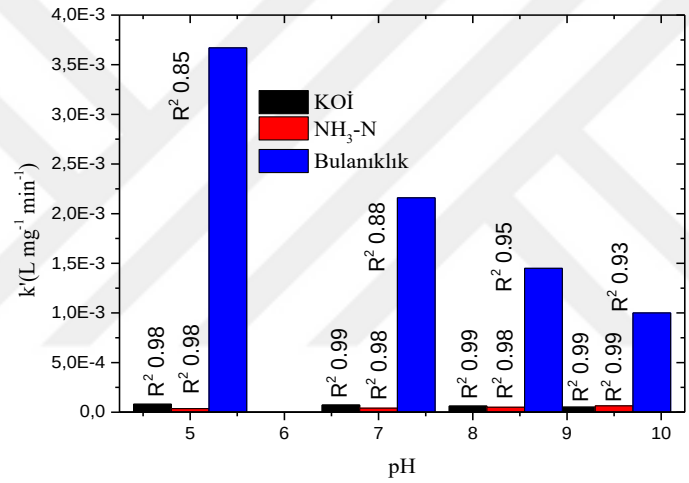
Kombine proseslerle $\text{NH}_3\text{-N}$ giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabitinin pH, sıcaklık, akım yoğunluğu, karıştırma hızı, NaCl ve Na_2SO_4 elektrolit konsantrasyonunun artması ve elektrotlar arası mesafenin azalması ile artmıştır. Sızıntı suyundan KOİ gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri pH 9.5’de $6.47 \cdot 10^{-5} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Şekil (69-76)’den de görüldüğü gibi 300 rpm’deki karıştırma hızı hariç tüm deneysel parametrelere ait değerlerin artması ile pseudo-ikinci mertebe hız sabiti değerleri de artmıştır.

Kombine elektrokoagülasyon prosesinde bulanıklık giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na_2SO_4 elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C ’den 50°C ’e yükselmesi ile hız sabiti değeri artmış ancak sıcaklık değerinin 50° ’den 60°C ’ye yükselmesi ile hız sabiti değeri azalmıştır. Ayrıca bulanıklık giderimi için pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm’den 200 rpm’ yükselmesi ile artmış ancak 200 rpm’den 300 rpm’e yükselmesi ile azalmıştır. Sızıntı suyundan bulanıklık gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri NaCl konsantrasyonun 10 mM olduğunda $0.00285 \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Kombine proseste bulanıklık giderimine ait reaksiyon hız sabiti değerleri Şekil 69-76’den de görüldüğü gibi KOİ ve $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim hız sabiti değerlerinden oldukça daha büyük çıkmıştır. Bulanıklık giderimine ait hız sabitlerinin oldukça büyük olmasından dolayı KOİ ve $\text{NH}_3\text{-N}$ ’na ait reaksiyon hız sabitleri Şekil (69-76)’den de görüldüğü gibi bulanıklığa ait hız sabiti değerleri tarafından baskılanmış ve zamana bağlı olarak hiç değişmemiş olarak görünmektedir. Ancak KOİ ve $\text{NH}_3\text{-N}$ ’na ait hız sabiti değerleri ayrı bir grafikte incelendiğinde deneysel şartlara bağlı olarak arttıkları veya azaldıkları anlaşılmaktadır.

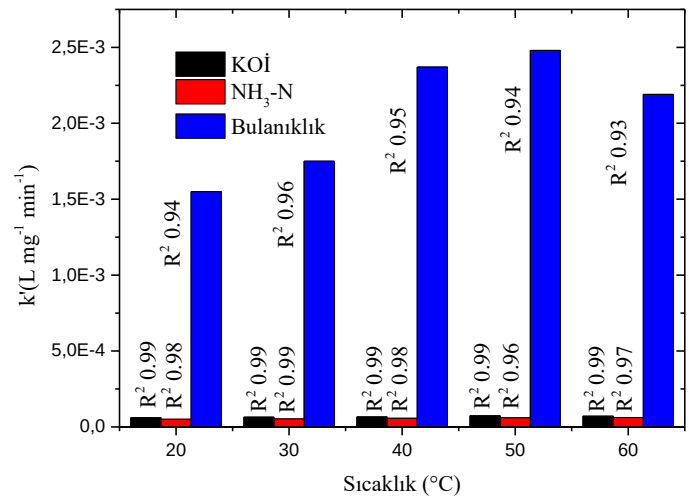
Farklı deneysel şartlarda sızıntı suyundan kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri Şekil (69-76)’de aşağıdaki gibi gösterilmiştir.



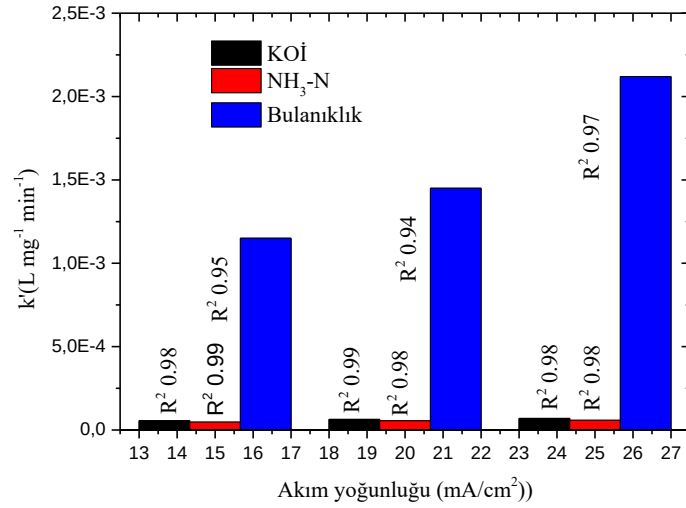
Şekil 69. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait TAK miktarına bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri



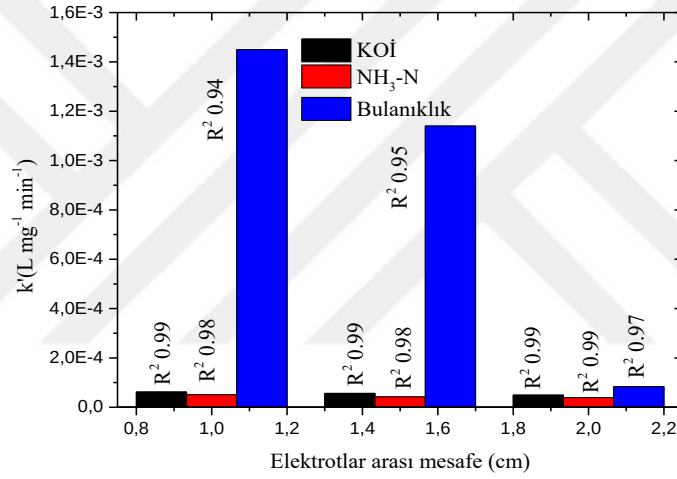
Şekil 70. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri



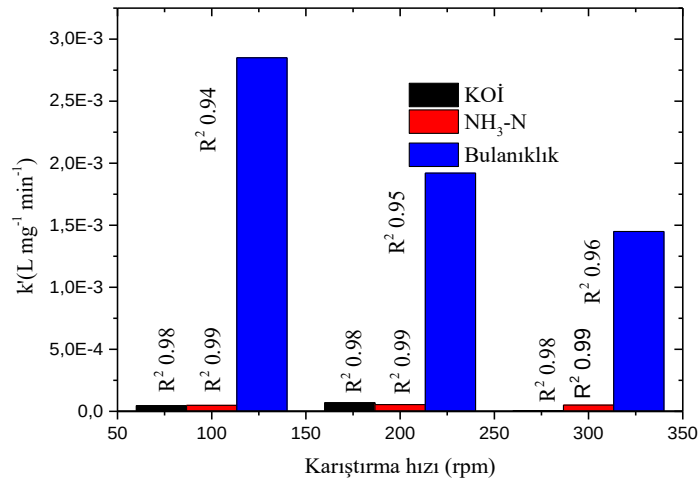
Şekil 71. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleri



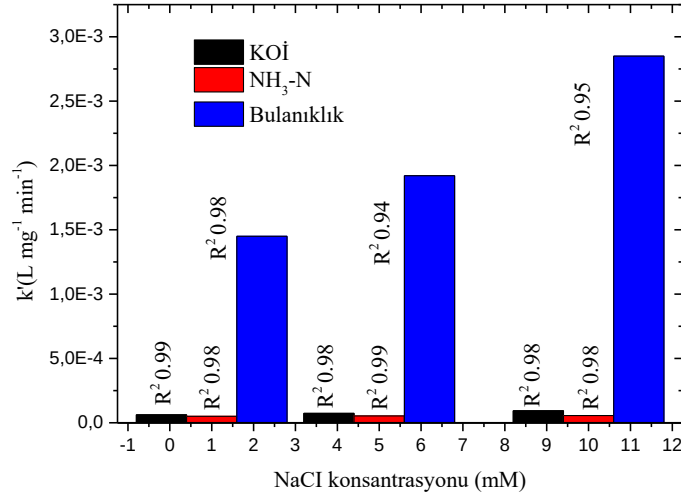
Şekil 72. S Kombine elektrokoagülasyon prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertbe reaksiyon hız sabiti değerleri



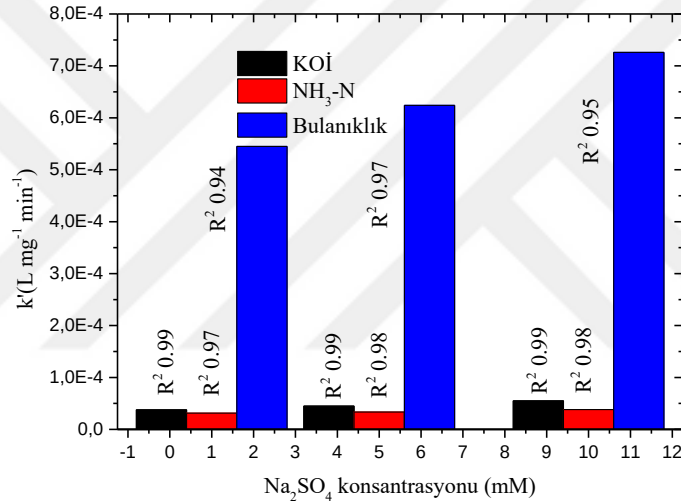
Şekil 73. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafe değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertbe reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 74. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızı değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci mertbe reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 75. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 76. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesi ile sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri

Kombine Elektrokoagülasyon-TAK prosesi ile sızıntı suyundan KOİ giderimi için işletme maliyetinin hesaplanması

Kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesinde önemli aşamalardan biride işletme maliyetinin hesaplanmasıdır. Bu tez çalışması kapsamında sızıntı suyunun uygulanan akım yoğunluğu ve proses süresine göre KOİ kirlilik parametresinin gideriminde işletme maliyetlerinin hesaplanmasında enerji tüketimi kWh/m³, birim enerji tüketimi kWh/kg KOİ, birim elektrot tüketim maliyeti \$/kg KOİ ve toplam tüketim maliyeti \$/kg KOİ hesaplanmıştır. Maliyet analizleri, sızıntı suyunun pH'sı 8.35, 20°C sıcaklık, 300 rpm karıştırma hızı, elektrotlara arası mesafe 1 cm, adsorbent dozu 5 g/L, elektrolitsiz ortam, reaksiyon süresi 40 dakika ve numune hacmi 400 mL olan koşullarda hesaplanmıştır.

Bu koşullara göre elektrokoagülasyon proseslerinin uygulanan akım yoğunluklarına göre elektrik sarfiyatı, birim enerji sarfiyatı ve toplam elektrot maliyeti hesaplamaları Tablo 13’de verilmiştir.

Tablo 13. Kombine Elektrokoagülasyon-TAK Adsorpsiyon Prosesleri İçin Maliyet Analizleri

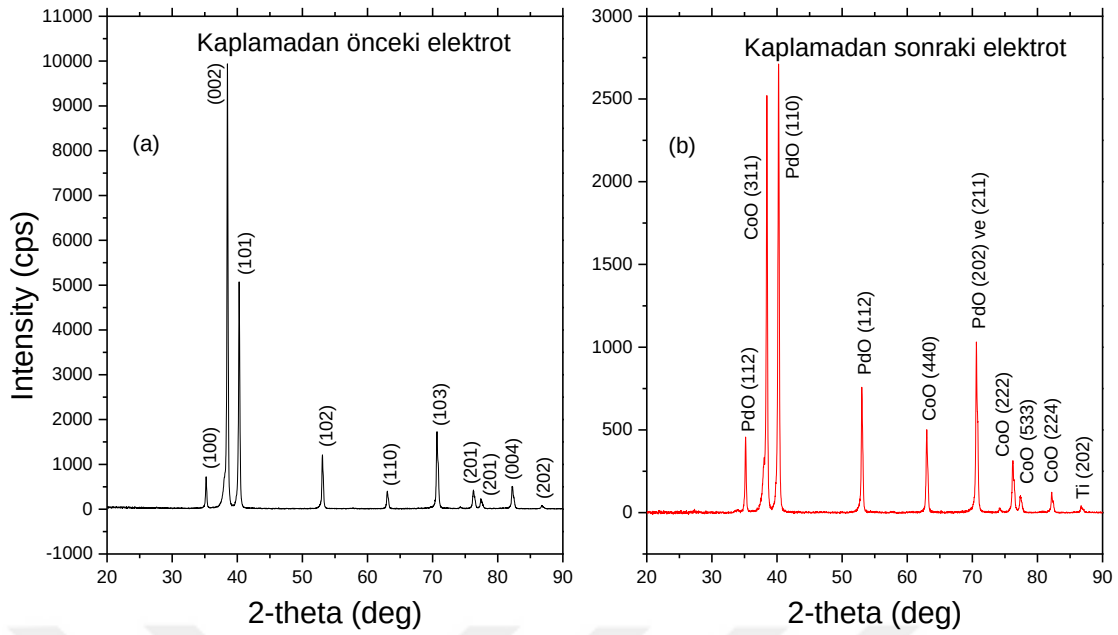
Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyon prosesi				
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	Birim Enerji Tüketimi (kWh/kg.KOİ)	Elektrot Maliyeti (\$/kg.KOİ)	Toplam Tüketim Maliyeti (\$/kg.KOİ)
15	68.68	6.948	0.228	0.853
20	91.8	9.991	0.327	0.416
25	122.4	15.226	0.468	1.838

Tablo 13’e göre, Kombine elektrokoagülasyon ve adsorpsiyon prosesinde 40 dakikalık bir reaksiyon sonucunda alüminyum elektrot kullanılarak yapılan çalışmalarda akım yoğunluğu 15 mA/cm²’den 25 mA/cm²’ye yükselmesiyle enerji tüketimi 68.7 kWh/m³’ten 122.4 kWh/m³’e, birim enerji tüketimi 6.948 kWh/kg.KOİ’den 15.226 kWh/kg.KOİ’ye, toplam tüketim maliyeti ise 0.85 \$/kg.KOİ’den 1.838 \$/kg.KOİ’ye yükselmiştir.

Elektrooksidasyon Prosesi ile Sızıntı Suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklığın Giderime Deneysel Parametrelerin Etkisinin Araştırılması

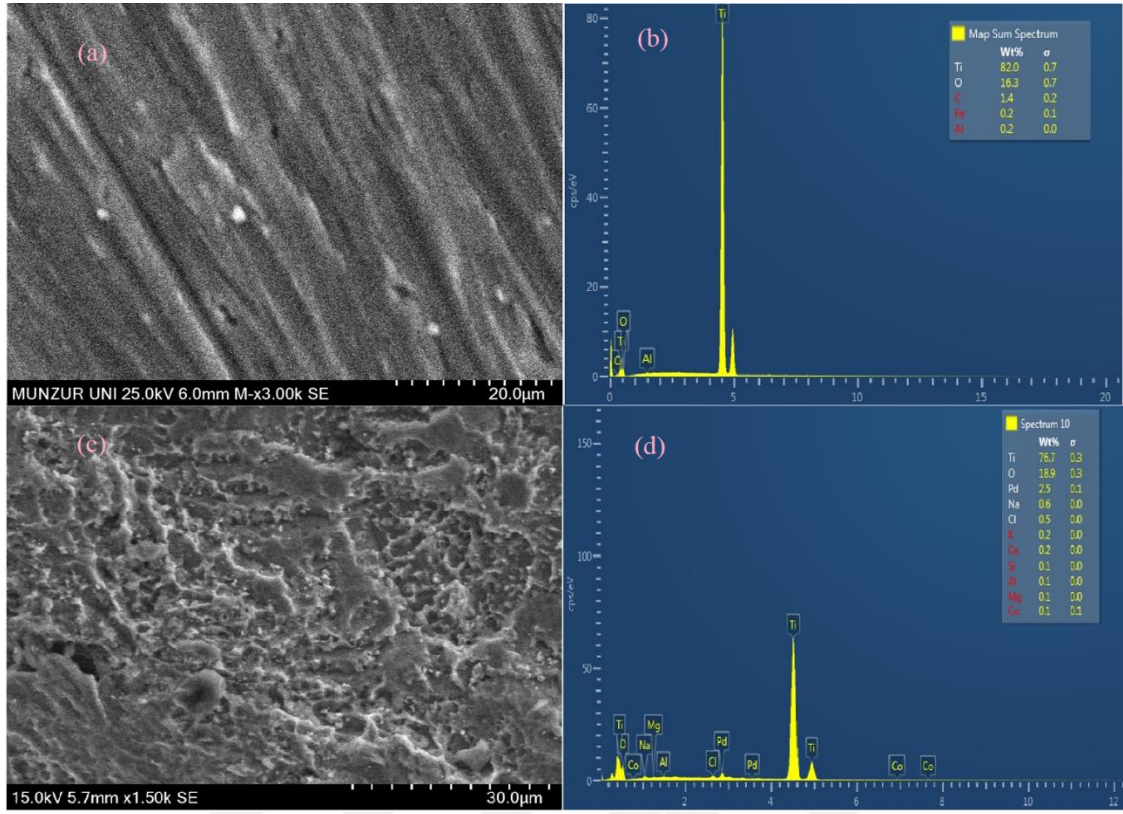
Düzenli deponi alanı sızıntı suyunun Elektrooksidasyonunda kullanılan Ti/PdO-CoO elektrotunun üretimi

Gerçekleştirilen elektrooksidasyon çalışmalarında Titanyum malzeme Pd-Co ile bir takım işlemlerden geçirildikten sonra malzemenin yüzeyi PdO-CoO ile kaplandıktan sonra Ti/PdO-CoO elektrotu elde edilmiştir. Ti/PdO-CoO elektrotu düzenli deponi sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde anot olarak kullanılmıştır. Titanyum malzemenin PdO-CoO ile kaplanmadan önceki ve sonraki X-ray Powder Diffraction (XRD) görüntüleri Şekil 77 (a ve b)’de verilmiştir. Titanyum malzemenin kaplamadan önce XRD görüntüsü incelendiğinde farklı 2θ açılarında farklı düzlemlere sahip oldukları belirlenmiştir. Titanyum malzemesi 35.22°, 38.48°, 40.28°, 53.08°, 63.04°, 70.68°, 76.26°, 77.4°, 82.22° ve 86.74° gibi farklı 2θ açılarında sırası ile (100), (002), (101), (102), (110), (103), (201), (201), (004) ve (202) düzlemlerine sahip olduğu belirlenmiştir.



Şekil 77. (a ve b) Titanyum malzemenin PdO-CoO ile kaplanmadan önceki ve sonraki XRD grafikleri

Titanyum malzemesi PdO-CoO ile kaplandıktan sonra Titanyum kristalleri üzerinde büyüyen veya çökelen oksitler kristal yapıyı bozarak amorf hale getirmiştir. Bu nedenle titanyum piklerinin şiddeti Şekil 77 (b)'de görüldüğü gibi oldukça azalmıştır. Yani meydana gelen PdO ve CoO yapıları titanyum piklerini perdelemiştir. Gerçekleştirilen kaplamadan sonra malzeme üzerinde farklı 2θ açılarında PdO ve CoO yapılarına ait düzlemler belirlenmiştir. Farklı 2θ açılarında PdO yapısını gösteren düzlemler sırası ile 35.22° (112), 40.28° (110), 53.08° (112) ve 70.68° (202 ve 211) dir. Farklı 2θ açılarında CoO yapısını gösteren düzlemler ise sırası ile 38.48° (311), 63.04° (440), 76.26° (222) ve 77.4° (533) ve 82.22° (224) olarak belirlenmiştir. Bunlara ilaveten ayrıca 40.28° (111) düzleminde Pd elementi 86.74° (202) düzleminde ise TiO_2 olduğu belirlenmiştir. Kaplamadan sonra oluşan bu piklerin varlığı titanyum malzemenin PdO ve CoO ile kaplandığını göstermektedir.

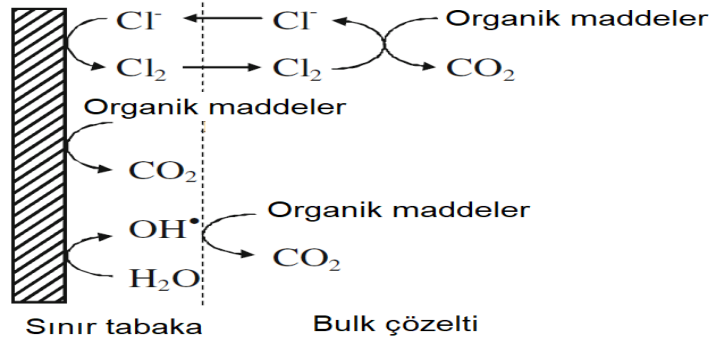


Şekil 78. (a ve b) Titanyum malzemenin PdO-CoO ile kaplanmadan önce (a, b) ve sonra (c, d) SEM ve EDX görüntüleri

Kaplanan malzemenin karakteristiği, fiziksel özellikleri ve kimyasal elementel yapısının değişip değişmediğini anlamak için malzemenin kaplamadan önce ve sonra Scanning Electron Microscope-Energy-Dispersive X-ray Spectroscopy (SEM-EDX) analizleri gerçekleştirilip Şekil 78 (a, b, c ve d)' de verilmiştir. Titanyum malzemenin kaplamadan önceki yüzeyi bir çarşaf şeklinde, düzgün kristalli, kısmen de olsa dalgalı olup tam bir laminar yapıya sahip olmadığını görülmektedir. Kaplamadan sonra malzeme yüzeyinde büyüyen ve çökelen PdO ve CoO yapılarının yüzeyde birikip topaklaşmasıyla farklı büyüklükte porların meydana gelmesi ve malzeme yüzeyinin heterojen bir yapıya sahip olmasına neden olmuştur.

Gerçekleştirilen EDX analizi sonucu Titanyum malzemesi ağırlıkça (W%) %82 Ti, %16.3 O, %1.4 C, %0.2 Fe ve %0.2 Al içerdiği belirlenmiştir. Gerçekleştirilen kaplamadan sonra kaplanan malzeme %76.7 Ti, %18.9 O, %2.5 Pd, %0.1 Co ve diğer elementleri içerdiği belirlenmiştir. Pd ve Co elementlerinin ağırlıkça yüzde değerlerinin düşük çıkmasının nedeni bu elementlerin malzeme yüzeyinde element halinde değil de PdO ve CoO halinde yüzeyde bulunmasından kaynaklandığı söylenebilir ki gerçekleştirilen XRD analizleri bunu doğrulamaktadır.

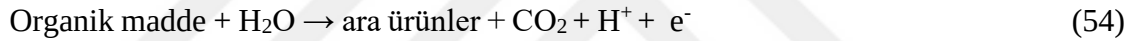
Şekil 79'da gösterildiği gibi oksijen oluşumu için yüksek aşırı potansiyel sergileyen Ti/PdO-CoO elektrotu anot olarak kullanıldığında katı atık düzenli depolama sahası sızıntı suyunda bulunan organik kirleticiler birçok reaksiyonla aşağıdaki gibi oksitlenmektedirler (Panizza *et al.* 2010).



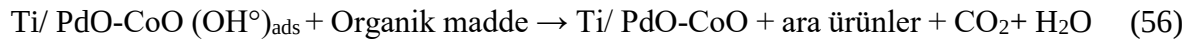
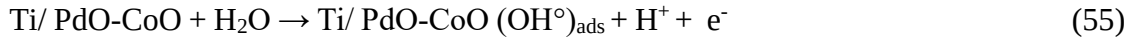
Şekil 79. Ti/ PdO-CoO anot kullanılarak düzenli deponi sızıntı suyunun elektrokimyasal oksidasyonunda yer alan reaksiyonları ve prosesleri gösteren şema

Bunlar:

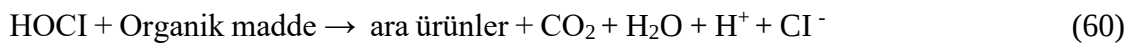
(i) Organik kirleticiler ile Ti/ PdO-CoO yüzeyi arasında doğrudan elektron transferi:



(ii) Suyun anot yüzeyine deşarjından sonra elektrokimyasal olarak oluşan anot yüzeyine adsorbe olmuş hidroksil radikalleri ile organik maddelerin reaksiyonu:



(iii) Arıtılmış atıksuda bulunan klorür iyonlarının oksidasyonu sonucu elektrokimyasal olarak oluşan aktif klor (gaz halindeki klor, hipokloröz asit veya hipoklorit) ile kirleticilerin dolaylı oksidasyon aşağıdaki gibi gerçekleşmektedir:



Ti/ PdO-CoO elektrot anodunda organik maddelerin doğrudan oksidasyonu teorik olarak elektrolitin stabil olduğu bölgede oluşmaktadır; ancak böyle bir reaksiyonun hızı oldukça yavaş bir kinetik göstermektedir. Elektroliz esnasında anotun katalitik aktivitesinde genellikle 'zehirlenme etkisi' olarak bilinen anot yüzeyini bloke eden polimer bir tabakanın/filmin meydana gelmesi ile bir azalma oluşmaktadır. Organik bileşiklerin etkili oksidasyonu, örneğin hidroksil radikalleri (Reaksiyon 55) gibi suyun kendisinden veya aktif klor oksitlenen klorür iyonları gibi suda çözünen türlerden (Reaksiyonlar 57-59) ileri gelen oksitleyici maddelerin üretimi sayesinde elektrolitin bozulması yüksek anodik potansiyellerde elde edilir (Panizza *et al.* 2010). Bu nedenle sızıntı suyundaki organik bileşenlerinin oksidasyonuna doğrudan elektron transferinin katkısı ihmal edilebilir.

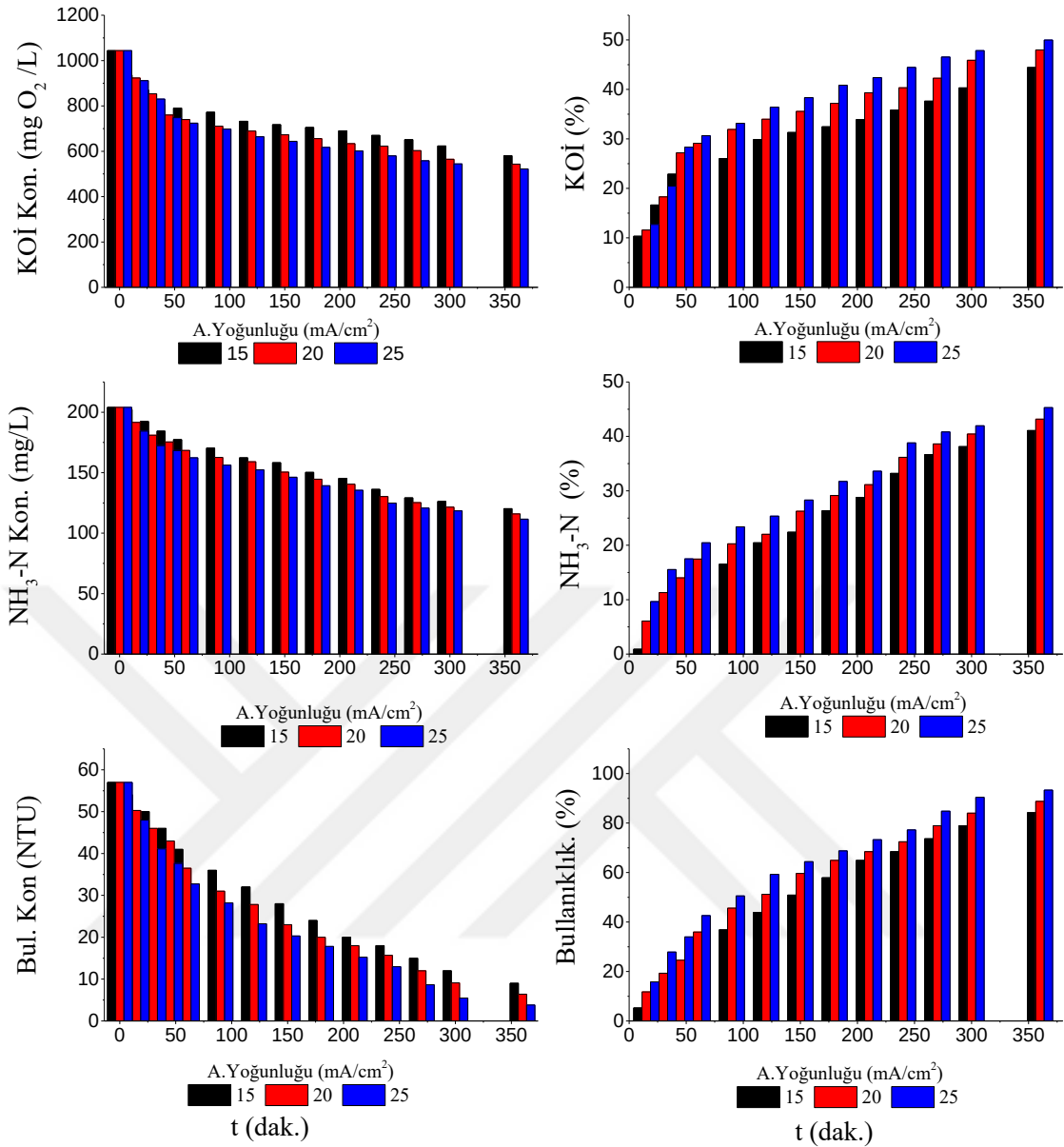
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine akım yoğunluğunun etkisi

Elektrolitik bir ortamda yük transferinin gücü bir dış devre yoluyla anottan katoda elektron transferi (akım akışı) yoluyla üretilen elektrokimyasal itici güç ile yüksek derecede ilişkilidir. Elektrotun birim kesit alanı başına olan elektrik akımı akım yoğunluğunu ifade etmektedir (G. Chen, 2004). Akım yoğunluğu, elektrolitik hücredeki kimyasal değişikliklerle yüksek oranda ilişkilidir. Bu çalışmada akım yoğunluğunun anodik oksidasyon nedeniyle kirleticilerin giderilmesi üzerindeki etkisi gerçek deponi sızıntı sularında araştırılmıştır.

15, 20 ve 25 mA/cm² 'lik akım yoğunluklarının sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 80'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar doğal pH 8.35, başlangıç sıcaklığı 20°C, elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Ayrıca yapılan analiz sonucu sızıntı suyunun yapısında 718 mg/L Cl⁻ iyonu belirlenmiştir. 360 dakikalık reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 15, 20 ve 25 mA/cm² akım yoğunluğu değerleri için 40 dakikalık bir elektrooksidasyon (EO) sonucu çıkış suyu pH değerleri sırası ile 8.97, 9.36 ve 9.83 olarak belirlenmiştir. 15, 20 ve 25 mA/cm² 'lik akım yoğunlukları için 360 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%44.4, %47.9 ve %49.9), (%41.1, %43.2 ve %45.3) ve (%84.4, %88.7 ve %93.3) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 25 mA/cm²'lik akım yoğunluğu için sırası ile %49.9, %45.3 ve %93.3 olarak belirlenmiştir. Şekil 80'ten görüldüğü gibi akım yoğunluğunun artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.

Şekil 80'den görüldüğü gibi elektrooksidasyonda akım yoğunluğunun artması ile sızıntı sularından KOİ giderim verimi artmıştır. Bunun nedeni aşağıdaki gibi açıklanabilir:

H₂O molekülleri yüksek potansiyellerde anot yüzeyinde deşarj olduktan sonra OH° radikalleri anot yüzeyinde adsorbe olmaktadır. Ti/ PdO-CoO elektrotu yüzeyine zayıf bir şekilde adsorbe olan ve aşırı yüksek reaktivitesi nedeniyle oksidatif bozulmaya neden olan OH° radikalleri dolaylı olarak organik maddenin oksidasyonuna ve mineralizasyonuna aracılık etmektedirler. OH° radikallerinin elektrokimyasal üretimi ve tespiti birçok araştırmacı tarafından onaylanmıştır (Martínez-Huitle *et al.* 2004; Michaud, 2003; G. Zhao, n.d.). Başlangıç pH değeri 8.35 olan sızıntı suyundan EO ile KOİ gideriminde diğer dolaylı oksidasyon mekanizması Cl⁻ iyonlarının anotta Cl₂ gazına yükseltgenip bulk çözeltide alkali ortamda OH⁻ iyonları ile verdiği reaksiyon sonucu OCl⁻ (pH >7.5) iyonunu oluşup pH 8.5 değerinde stabil halde bulunmasıdır (Meng *et al.* 2020; Zou *et al.* 2017). pH > 7.5'te ClO⁻, Cl içeren türlerin baskın bileşenidir. Oluşan OCl⁻ iyonu ise organik madde ile reaksiyona girerek CO₂ ve H₂O oluşumu ile birlikte oksidasyon yan ürünlerini de oluşturmaktadır. Akım yoğunluğunun artması ile OH° ve ClO⁻ iyonu oluşum hızı artacağından dolayı KOİ giderim verimleri artmıştır.



Şekil 80. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak farklı akım yoğunluklarında sızıntı suundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Ek olarak daha yüksek akım yoğunluklarında organik maddelerin mineralizasyonu için elektron oluşumunu artıran katodik moleküler O₂'nin Eşitlik (63) ile indirgemesi ve Eşitlik (64) ile artan miktarda hücre içerisinde H₂O₂ üretimi de KOİ giderimine katkıda bulunduğu söylenebilir (Lak *et al.* 2012).



15, 20 ve 25 mA/cm² 'lik akım yoğunlukları için NH₃-N giderim verimleri sırası ile %41.1, %43.2 ve %45.3 olarak belirlenmiştir. En yüksek giderim verimi 25 mA/cm² değeri için

%45.3 olarak elde edilmiştir. Bunun nedeni şu şekilde açıklanabilir: Sızıntı suyunda pH 8.35 değerinde bulk ortamda klor türü OCI^- şeklinde olup stabil haldedir. OCI^- 'nin $\text{NH}_3\text{-N}$ ile reaksiyonu sonucu N_2 , Cl^- ve H_2O ürünleri oluşmaktadır. Böylece ortamda bulunan $\text{NH}_3\text{-N}$ 'u N_2 'ye dönüştürerek ortamdan uzaklaştığı düşünülmektedir. Akım yoğunluğunun artması ile ortamda bulunan Cl^- iyonları anotta daha fazla ve hızlı reaksiyona girerek ortamdan daha fazla $\text{NH}_3\text{-N}$ 'nin uzaklaşmasına neden olmuştur.

15, 20 ve 25 mA/cm^2 'lik akım yoğunlukları için bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%84.4, %88.7 ve %93.3) olarak belirlenmiştir. En yüksek bulanıklık giderim verimi 25 mA/cm^2 değeri için %93.3 olarak belirlenmiştir. Sızıntı suyunun bulanıklığı elektrooksidasyon süresi ile oldukça azalmış ve arıtım sonunda çıkış suyu tamamen berrak hale gelmiştir. Bunun nedeni şu şekilde açıklanabilir: Sızıntı suyunda bulunan bulanıklığa neden olan kolloidal ve partiküller maddelerin anot elektrotlara doğru hareketleri akım yoğunluğunun artması ile güçlü elektriksel alan içerisinde hızlanmıştır. Anot elektrot üzerinde makro moleküler kolloidal maddelerin zincir yapısındaki bozulma ile organik maddelerin parçalanması veya CO_2 'e tam mineralizasyon dışında kromoforik grupların bozulması sonucu kaynaklandığı söylenebilir (Espinoza-Quiñones *et al.* 2009; Gonzalez-Olmos *et al.* 2018; Xinyang Li *et al.* 2013). Bundan dolayı akım yoğunluğunun artması ile sızıntı suyundan bulanıklık giderim verimleri artmıştır.

Akım yoğunluğuna bağlı olarak sızıntı suyundan EO ile KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerinde literatürde yapılan diğer çalışmalarda benzer açıklamalarla KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim mekanizmaları açıklanmıştır (Abdelhay *et al.* 2017; Caregnato *et al.* 2007; Ken & Sinha, 2021; Meng *et al.* 2020; Panizza *et al.* 2010; Park *et al.* 2013; Singh & Lo, 2016; Xiao *et al.* 2013; Zou *et al.* 2017).

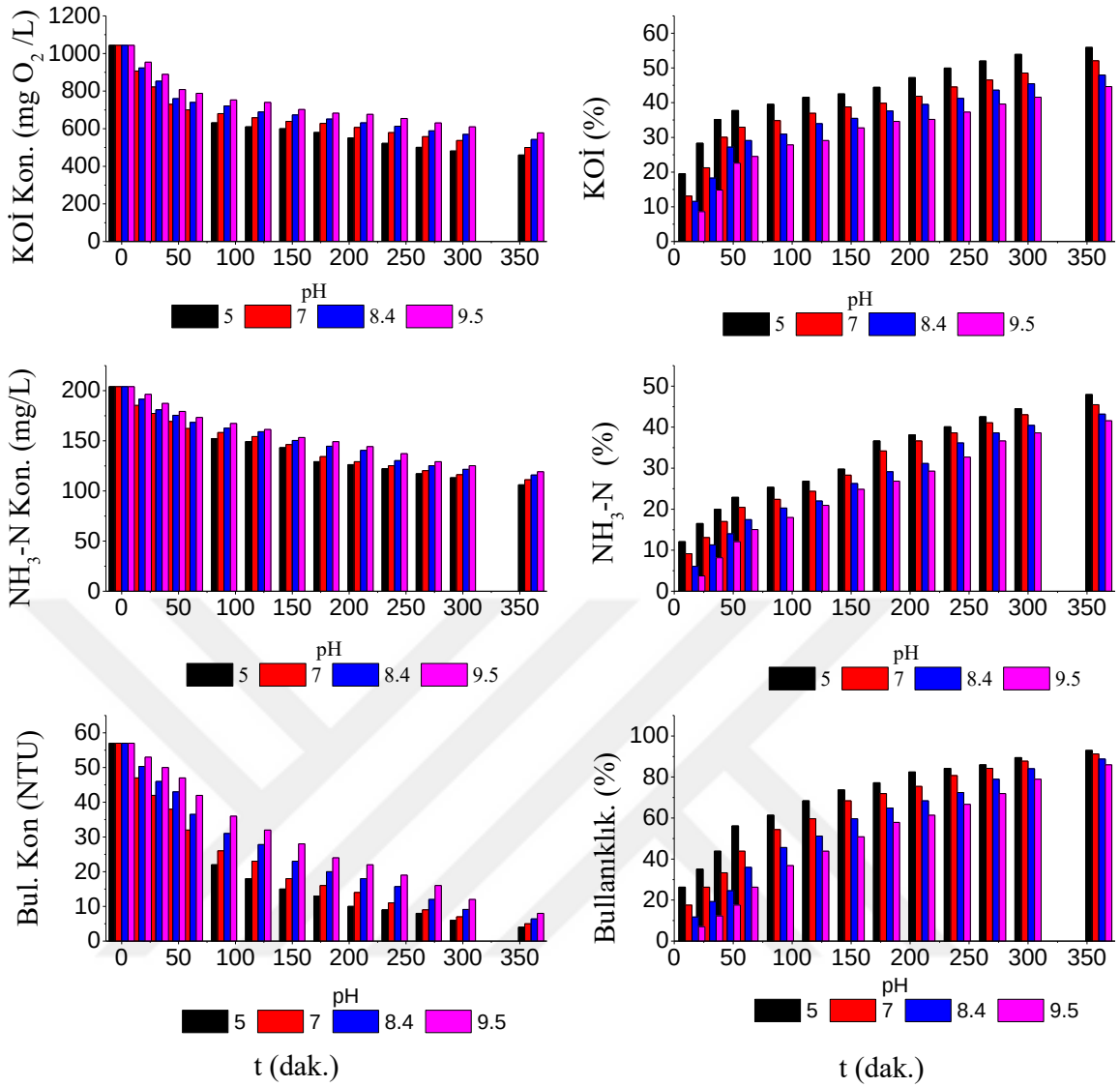
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklığın giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi

Çözeltinin pH değeri, elektrooksidasyon prosesinin performansını etkileyen önemli bir parametre olarak dikkate alınmaktadır. EO'da organik maddelerin çözelti ortamından uzaklaştırılması OH° radikallerinin anot üzerinde adsorpsiyonundan başka bulk çözeltide bulunan Cl^- türlerinin baskınlığı ile gerçekleştirilmektedir.

5, 7, 8.35 ve 9.5'lik başlangıç pH değerlerinin sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 81'de gösterilmiş. Deneysel çalışmalar 25 mA/cm^2 akım yoğunlu, başlangıç sıcaklığı 20°C , elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Ayrıca yapılan analiz sonucu sızıntı suyunun yapısında 718 mg/L Cl^- iyonu bulunduğu belirlenmiştir. 360 dakikalık bir reaksiyondan sonra reaktörden alınan numuneler 45 μm 'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ ,

NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Başlangıç çözelti pH değerleri 5, 7, 8.35 ve 9.5 olan sızıntı suyu için 360 dakikalık elektrooksidasyon sonucu çıkış suyu pH değerleri sırası ile 4.6, 6.3, 7.5 ve 8.7 olarak belirlenmiştir. Çıkış suyu pH değerlerinde meydana gelen bu azalmanın Cl₂ hidrolizi, amonyak oksidasyonu ve oksijen yayılım reaksiyonları sonucu H⁺ iyonlarının çözelti içerisinde birikmesine yol açmasından kaynaklandığı söylenebilir (Gendel & Lahav, 2012; Kapałka *et al.* 2010; Changyong Zhang *et al.* 2018). 5, 7, 8.35 ve 9.5'lik pH değerleri için 360 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%55.9, %52.1, %47.8 ve %46.2), (%47.9, %45.5, %43.2 ve %41.5) ve (%92.9, %91.2, %88.7 ve %85.9) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 başlangıç değerinde elde edilmiştir. Şekil 81'ten görüldüğü gibi başlangıç pH değerlerinin azalması ile KOİ, bulanıklık ve NH₃-N giderim verimleri artmıştır.

Şekil 81, 25 mA/cm² ve 360 dakikalık bir reaksiyon süresi koşulları altında Ti/PdO-CoO anodu için EO işlemi kullanılarak sızıntı suyundan KOİ giderimine pH değerlerinin etkisini göstermektedir. Şekil 81'te gösterildiği gibi pH değerinin azalmasıyla KOİ gideriminde bir artış olmuştur. EO'da asidik koşullar altında anot elektrot üzerinde OH[•] radikallerinin oluşumu ve bulk çözelti ortamında bulunan klorür türlerinin varlığı KOİ gideriminin artmasına neden olmuştur. Sonuçlar elektriksel hücrede kullanılan Ti/ PdO-CoO anodu için asidik koşullarda organik kirleticinin bozulduğunu göstermektedir. Bu sonuçlar, anot elektrot üzerinde suyun deşarjı sonucu adsorbe olan OH[•] radikallerinin yanı sıra çözelti pH değerine doğrudan bağlı olan çözeltilerdeki klor türleri teorisi ile açıklanabilir.



Şekil 81. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak farklı pH değerlerinde sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, akım yoğunluğu 25 mA/cm², karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit kon. 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Dolaylı EO mekanizmasında, Cl₂, ClO⁻ ve HOCl içeren klor türleri, organik kirleticilerin bozulmasında ana ajanlardır (Solano *et al.* 2013). Bunlar arasında HOCl (E₀=1.49 V), Cl₂ ve ClO⁻ (E₀=0.89 V) kıyasla daha yüksek redoks potansiyeline sahiptir. HOCl, pH=3.0-7.5'te baskın tür iken, pH>8 olduğunda OCl⁻ türü baskındır (Anglada *et al.* 2009). Yüksek pH değerlerinde ise çözeltide aşırı miktarda OH⁻ iyonu bulunmaktadır. OH⁻ iyonları ise OH[•] radikalleri ile reaksiyona girerek zayıf oksidatif potansiyele sahip O[•] radikallerini oluşturmaktadırlar (da Silva *et al.* 2019). Çözeltideki yüksek pH değerlerinde çözelti ortamında bulunan O[•] radikalleri ve OCl⁻ iyonları ile asidik koşullara göre daha az KOİ giderimine neden olmuştur. Yukarıda yapılan açıklamalar doğrultusunda klor aracılı elektrooksidasyon için asidik ortam KOİ giderimi için uygun bulunmuştur.

pH 5, 7, 8.35 ve 9.5 değerleri için $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim verimleri sırası ile %47.9, %45.5, %43.2 ve %41.5 olarak belirlenmiş olup en yüksek $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim verimi asidik şartlarda pH 5 değerinde %47.9 olarak belirlenmiştir. Bunun nedeni şu şekilde açıklanabilir: Sızıntı suyunda pH 8.35 değerinde bulk ortamda klor türü OCI^- şeklinde olup stabil haldedir. OCI^- iyonunun $\text{NH}_3\text{-N}$ ile reaksiyonu sonucu N_2 , Cl^- ve H_2O ürünleri meydana gelmektedir. Böylece ortamda bulunan $\text{NH}_3\text{-N}$ 'u N_2 'a dönüştürerek ortamdan uzaklaştığı düşünülmektedir. Sızıntı suyunun pH değeri çözeltide bulunan birincil serbest klor türlerini (Cl_2 , HOCl veya OCI^-) belirlemesinden dolayı serbest klor ve amonyak arasındaki reaksiyonu etkilemektedir. $\text{pH} < 3.3$ 'te başlıca serbest klor türü Cl_2 iken, $3.3 < \text{pH} < 7.5$ aralığında Cl_2 hidrolize olarak HOCl ve $\text{pH} > 7.5$ 'te ise OCI^- iyonuna dönüşmektedir (Anglada *et al.* 2009; Karlsson & Cornell, 2016). Bunlar arasında Cl_2 en güçlü oksidan olarak kabul edilir ve bunu HOCl takip etmektedir; bu nedenle, amonyak giderimi, asidik koşullar altında optimal olarak gerçekleştirilmiştir (Anglada *et al.* 2009). Bununla birlikte, elektrokimyasal hücrede amonyak oksidasyonu esas olarak serbest klorun elektrokimyasal olarak üretildiği anot yüzeyine yakın gerçekleştiği düşünülmektedir.

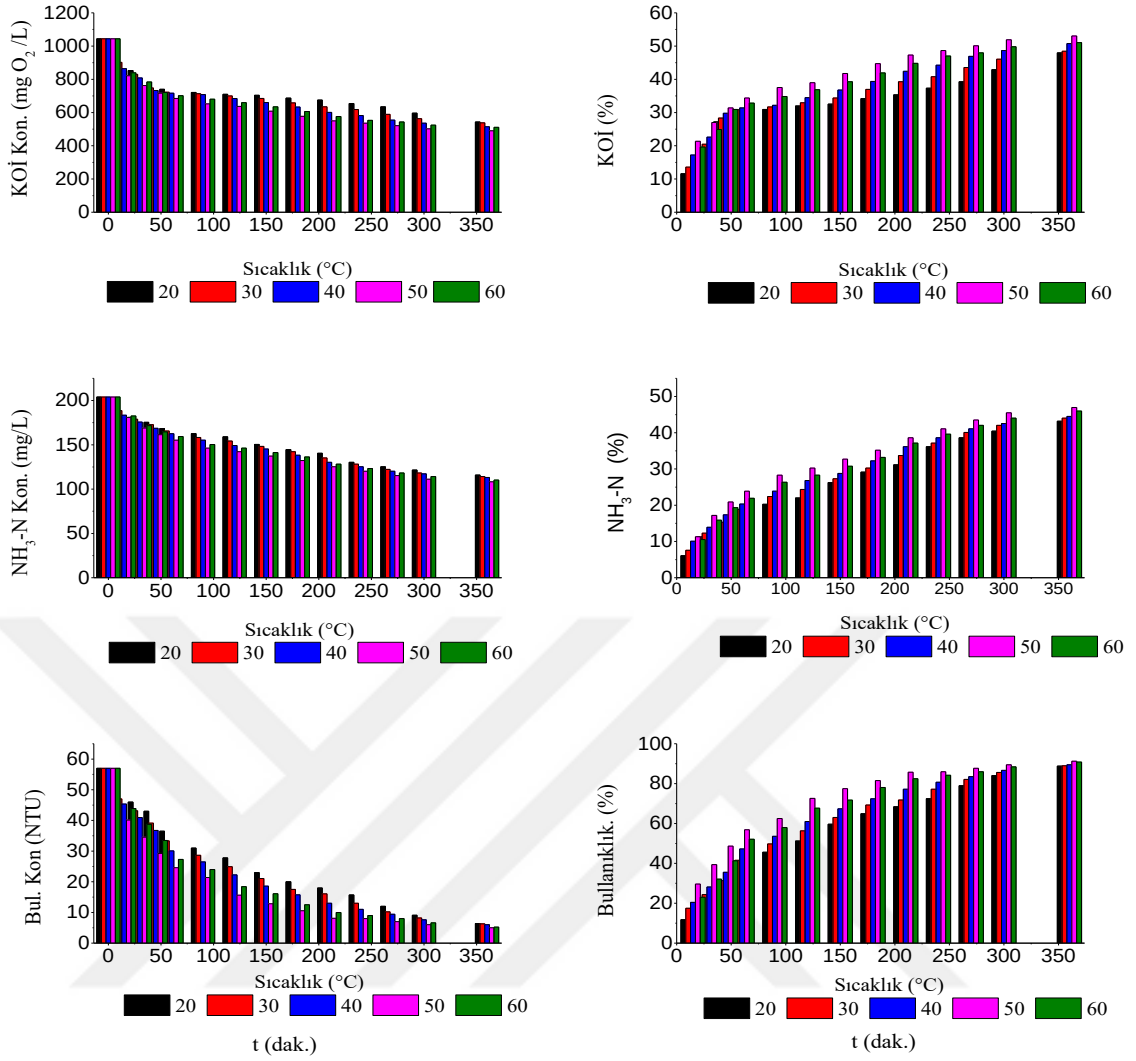
5, 7, 8.35 ve 9.5 gibi başlangıç pH değerleri için bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%92.9, 91.9, %88.7 ve %85.9) olarak belirlenmiştir. En yüksek bulanıklık giderim verimi başlangıç pH değeri 5'te %92.9 olarak belirlenmiştir. Çalışmalarda mekanizma açısından bulanıklık giderimleri KOI giderimleri ile paralellik göstermektedir. Sızıntı suyunun bulanıklığı elektrooksidasyon süresi ile güçlü bir şekilde azalmış arıtımın sonunda çıkış suyu tamamen berrak hale gelmiştir. Bunun nedeni şu şekilde açıklanabilir:

EO'da asidik koşullarda anot elektrot üzerinde OH° radikalleri oluşumu ve bulk çözelti ortamında bulunan klorür türlerinin varlığı bulanıklık giderim veriminin artmasına neden olmuştur. Sonuçlar elektriksel hücrede kullanılan Ti/PdO-CoO anotu asidik koşullarda makro moleküler kolloidal maddelerin bozulduğunu göstermektedir. Bu sonuçlar, anot elektrot yüzeyinde suyun deşarjı sonucu adsorbe olan OH° radikallerinin yanı sıra çözelti pH değerine doğrudan bağlı olan çözeltideki klor türleri teorisi ile açıklanmaktadır. Dolaylı EO mekanizmasında, Cl_2 , ClO^- ve HOCl içeren klor türleri sızıntı suyunda bulunan bulanıklığa neden olan kolloidal ve partiküller kirletici maddelerin bozulmasının başlıca ana ajanları olduğu söylenebilir (Solano *et al.* 2013). Anot elektrot üzerinde makro moleküler kolloidal maddelerin zincir yapısındaki bozulma ile organik maddelerin parçalanması veya CO_2 'e tam mineralizasyon dışında kromorforik grupların bozulması sonucu kaynaklandığı söylenebilir (Gonzalez-Olmos *et al.* 2018; Xinyang Li *et al.* 2013). Bundan dolayı pH değerinin azalması ile sızıntı suyundan bulanıklık giderim verimleri de artmıştır.

Akım yoğunluđuna bađlı olarak sızıntı suyundan EO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimleri literatürde yapılan diđer çalıřmalarda benzer ifadelerle KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim mekanizmaları açıklanmıřtır (Ghanbari *et al.* 2020; Meng *et al.* 2020; Qing *et al.* 2021; Zhou *et al.* 2017).

Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine bařlangıç sıcaklık deđerlerinin etkisi

20, 30, 40 ve 50 ve 60°C'lik sızıntı suyu bařlangıç sıcaklık deđerleri için sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine EO prosesinin etkisi arařtırılmıř ve řekil 82'de gösterilmiřtir. DeneySEL çalıřmalar dođal pH 8.35, akım yoğunluđu 25 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıřtırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekteřtirilmiřtir. Ayrıca yapılan analiz sonucu sızıntı suyunun yapısında 718 mg/L Cl⁻ iyonu bulunduđu belirlenmiřtir. 360 dakikalık bir reaksiyondan sonra reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiřtir. 20, 30, 40 ve 50°C'lik' sızıntı suyu bařlangıç sıcaklık deđerleri için 360 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%47.9, %48.5, %50.7, %53.1 ve %51), (%43.2, %44.1, %44.5, %46.9 ve %46) ve (%88.7, %88.9, %89.5, %91.2 ve %90.8) olarak belirlenmiřtir. řekil 82' den görüldüđu 20-50° aralıđındaki sıcaklık artıřları ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde kısmı bir artıř olduđu gözlemlenmiřtir. Ancak, 50-60°C arasında ise giderim verimlerinde kısmı bir azalma meydana gelmiřtir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 50°C için sırası ile %53.1, %46.9 ve %91.2 olarak belirlenmiřtir. řekil 82'de görüldüđu gibi 20-50°C aralıđında sıcaklıđın artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde kısmen bir artıř olmuř 60°C'te ise kısmen de olsa bir azalma meydana gelmiřtir.



Şekil 82. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Şekil 82, 25 mA/cm² ve 360 dakikalık bir reaksiyon süresi sonucu Ti/PdO-CoO anodu için EO prosesi kullanılarak sızıntı suyundan KOİ giderimine başlangıç sıcaklıklarının etkisini göstermektedir. Sızıntı suyunun başlangıç pH değeri 8.5'te çözeltide mevcut aktif klor türleri az miktarda HOCl ile çok miktarda OCl⁻ türlerinden oluşmaktadır. Şekil 84'da gösterildiği gibi başlangıç sıcaklıklarının (20-50°) artması ile elektrokimyasal olarak oluşan aktif klor türleri ile çözünmüş organik maddelerin kimyasal oksidasyon hızında meydana gelen artıştan dolayı KOİ giderim veriminde kısmi bir artış olmuştur (J. Zhao *et al.* 2015). 60°C'te KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde aktif klorun kendi kendine ayrışması nedeniyle KOİ gideriminde hafif bir azalma meydana gelmiştir. Reaksiyon sıcaklığının arttırılması klorür iyonunun anodik oksidasyon hızının artmasına neden olmuştur ancak anotta üretilen hipoklorit iyonu sulu çözeltide Eşitlik (65)'deki gibi ayrılmaktadır (Czarnetzki & Janssen, 1992).



Reaksiyon sıcaklığı arttığında, OCI^- 'nin ayrışma hızının arttığı düşünülmektedir. Hipoklorit iyonu üretimi için maksimum sızıntı suyu başlangıç sıcaklığı 50 °C olarak belirlenmiştir. Bu durum ise 60°C'lik başlangıç sıcaklığında KOİ gideriminde kısmi bir azalmaya neden olmuştur

Şekil 82'de gösterildiği gibi başlangıç sıcaklıklarının (20-50°) artması ile $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim verimi artmış 60°C'de ise $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim veriminde kısmen bir azalma olmuştur. Bunun başlıca nedeni, sıcaklık arttıkça sızıntı suyundaki iyonik kuvvet ve iletkenliğin artması ve böylece elektron transfer hızının artmasıdır. Böylece oluşan aktif klor türleri (HOCl ve OCI^-) ile $\text{NH}_3\text{-N}$ azotunun Arrhenius kanunu gereği reaksiyonlarındaki artış nedeni ile $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim verimi artmıştır. Reaksiyon sıcaklığı arttırıldığında, OCI^- 'nin ayrışma hızı artmıştır. Bu durum ise 60°'lik başlangıç sıcaklığında $\text{NH}_3\text{-N}$ azotunun giderim veriminde kısmi bir azalmaya neden olmuştur. Şekil 82'den görüldüğü gibi başlangıç sıcaklıklarının (20-50°) artması ile KOİ giderim mekanizmasına paralel olarak bulanıklık giderim verimleri de artmış ancak 60°C'de ise giderim verimlerinde kısmen bir azalma meydana gelmiştir. Bunun başlıca nedeni elektrokimyasal olarak oluşan aktif klor türleri ile çözünmüş organik maddelerin kimyasal oksidasyon hızında meydana gelen artıştan dolayı bulanıklık giderim veriminde kısmi bir artış olmuştur. 60°C'te bulanıklık giderim verimlerinde aktif klorun (OCI^-) kendi kendine ayrışması nedeniyle bulanıklık gideriminde kısmi bir azalma meydana gelmiştir. Reaksiyon sıcaklığının arttırılması, klorür iyonunun anodik oksidasyon hızının artmasına neden olmuştur, ancak anotta üretilen hipoklorit iyonu sulu çözeltide O_2 ve Cl^- iyonuna ayrışmasından dolayı $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim veriminde kısmi bir azalma meydana gelmiştir.

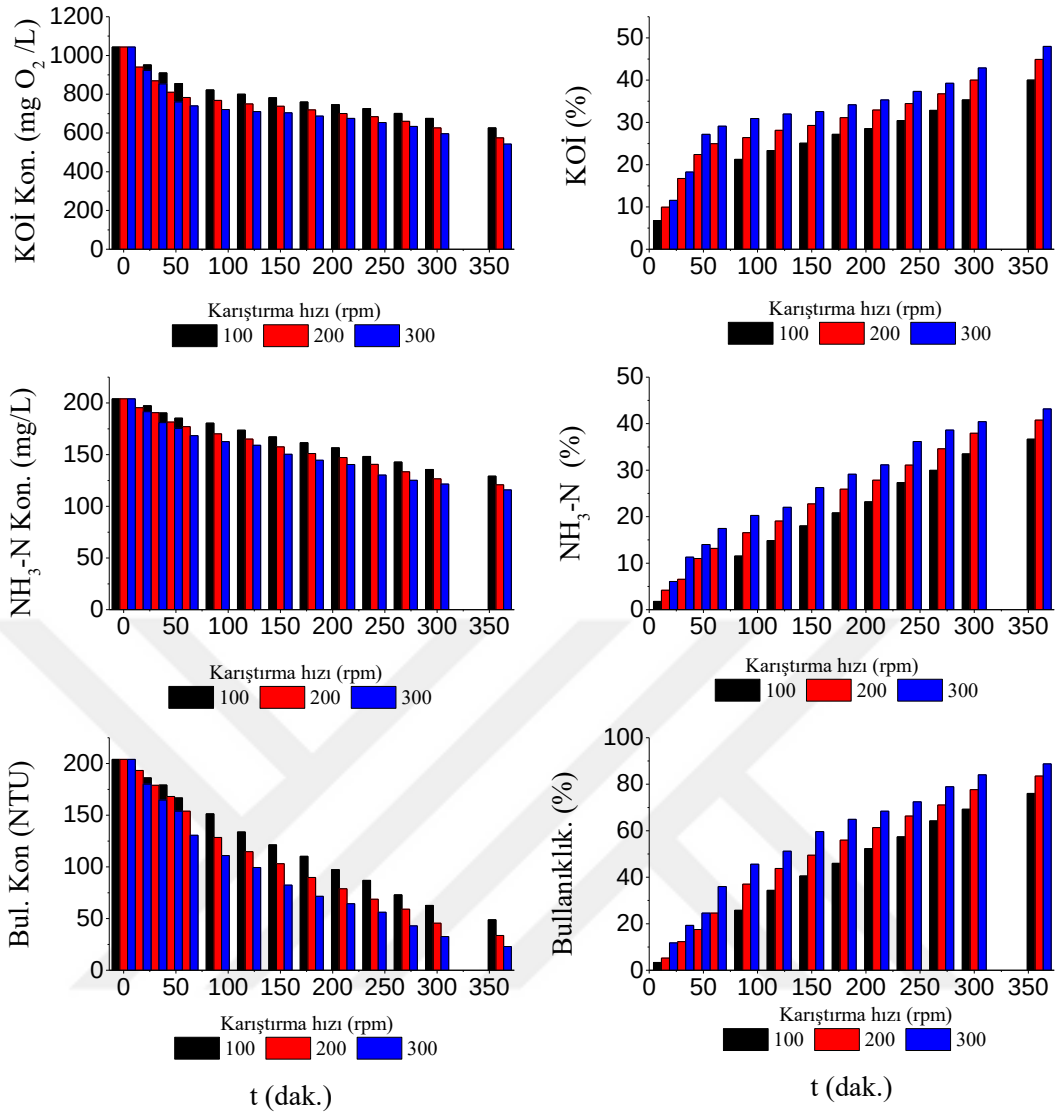
Çözelti başlangıç sıcaklıklarına bağlı olarak sızıntı suyundan EO ile KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerinden elde edilen sonuçlar literatürde yapılan diğer benzer çalışmalara uyumlu bulunmuştur ve KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim mekanizmaları benzer ifadelerle açıklanmıştır (Oturkan, 2021; Panizza & Martinez-Huitle, 2013; Rodriguez *et al.* 2009; Tsantaki *et al.* 2012; J. Zhao *et al.* 2015).

Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi

100, 200 ve 300 rpm'lik karıştırma hızları için sızıntı suyundan KOİ , $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine EO prosesinin etkisi araştırılmış ve Şekil 83'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar doğal pH 8.35, akım yoğunluğu 25 mA/cm², elektrotlar arası mesafe 1 cm, başlangıç sıcaklığı değeri 20°C ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Ayrıca yapılan analiz sonucu sızıntı suyunun yapısında 718 mg/L Cl^- iyonu bulunduğu belirlenmiştir. 360 dakikalık bir

reaksiyon sonunda reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 100, 200 ve 300 rpm'lik karıştırma hızlarını için 360 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%40, %45 ve %48), (%37, %41 ve %43) ve (%76, %84 ve %89) olarak belirlenmiştir. Şekil 83'den görüldüğü gibi karıştırma hızının 100 rpm'den 300 rpm'e çıkması ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin arttığı görülmektedir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 300 rpm için sırası ile %48, %43 ve %89 olarak belirlenmiştir.

Atık sudaki organik bileşiklerin ve kirleticilerin elektrokimyasal oksidasyonu elektrot yüzeyi ve bulk çözeltide gerçekleşmektedir. Kirleticilerin reaksiyonundan belli bir süre sonra elektrotun etrafında elektrotun çalışma yeteneğini etkileyen ikincil kirleticilerden oluşan bir film oluşmaktadır. Anot etrafında oluşan bu tabaka bariyerinin karıştırmanın etkisiyle dağıtılıp uzaklaştırılması ile çözelti ortamında homojenizasyon sağlanmaktadır. Böylece bulk ortamda bulunan kirleticilerin anot yüzeyine doğru difüze olması artıp OH[•] radikalleri ile oksidasyona uğraması ve yine anot yüzeyinde oluşan Cl₂ gazının bulk ortama difüzyonu artıp hızlıca hidrolize olması neticesinde KOİ ve bulanıklığa neden olan maddeler ile NH₃-N azotunun dolaylı oksidasyonu sağlanmıştır. Karıştırma hızının 100 rpm'den 300 rpm'e çıkması ile gerek anot elektrot etrafındaki bariyerin ortadan kalkması hızlanmış ve gerekse anot elektrot ve bulk çözeltideki dolaylı oksidasyon reaksiyonları hızlanmıştır. Açıklanan bu nedenlerden dolayı sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri karıştırma hızının artması ile artmıştır.



Şekil 83. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak karıştırma hızına bağlı olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 8.35, sızıntı suyu sıcaklığı 20°, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Çözelti karıştırma hızına bağlı olarak sızıntı suyundan EO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimleri ile yapılan mekanizma açıklamaları literatürde yapılan diğer benzer çalışmalara uyumlu bulunmuştur ve KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim mekanizmaları benzer ifadelerle açıklanmıştır (Benhelal *et al.* 2019; David *et al.* 2015; Le Luu *et al.* 2019; Yahiaoui *et al.* 2013).

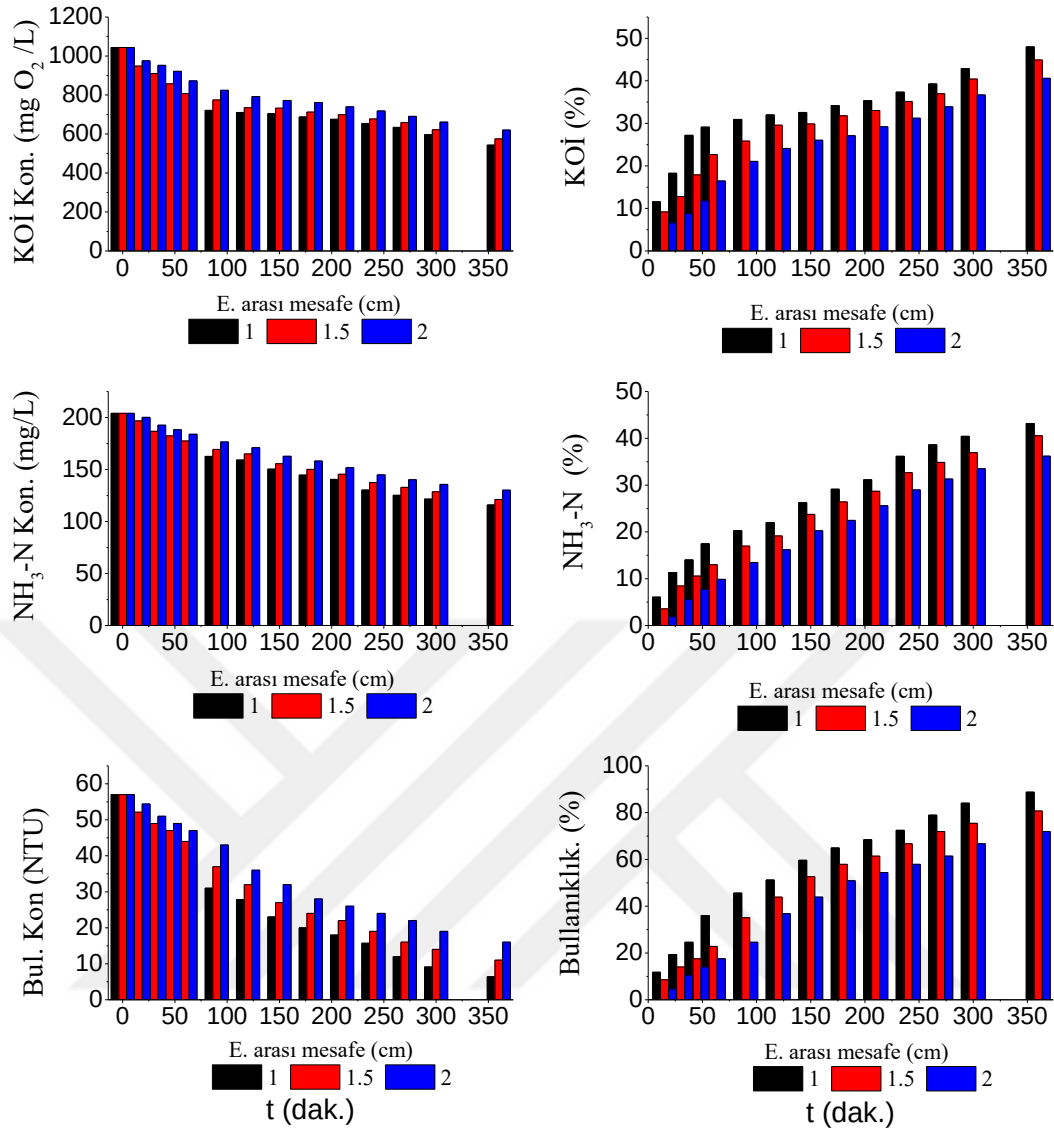
Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine elektrotlar arası mesafenin etkisi

1, 1.5 ve 2 cm'lik elektrotlar arası mesafeler için sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri araştırılmış ve Şekil 84'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar doğal pH 8.35, akım yoğunluğu 25 mA/cm², karıştırma hızı 300 rpm, başlangıç sıcaklığı değeri

20°C ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Ayrıca yapılan analiz sonucu sızıntı suyunun yapısında 718 mg/L Cl⁻ iyonu bulunduğu belirlenmiştir. 360 dakikalık bir reaksiyon sonucunda reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 2, 1.5 ve 1 cm'lik elektrotlar arası mesafeler için 360 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%40, %44.9 ve %47.9), (%36.7, %40.8 ve %43.2) ve (%72, %80.7 ve %88.7) olarak belirlenmiştir. Şekil 84'ten görüldüğü gibi elektrotlar arası mesafenin azalması ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin arttığı görülmektedir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 1 cm'lik elektrot mesafesi için sırası ile %47.9, %43.2 ve %88.7 olarak belirlenmiştir.

Elektrotlar arası mesafesinin 1 cm'den 2 cm'ye yükselmesi ile EO ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde sırası ile %7.3, %7 ve %16.9'luk azalmalara neden olmuştur. Deneysel sonuçlar, 1 cm plaka aralığı ile elektro katalitik performansın 2 cm plaka aralığına göre daha yüksek olduğunu göstermiştir. Bunun nedeni: elektrot plakaları arasındaki mesafe 2 cm olduğunda iki plaka arasındaki mesafenin büyük olması ve iki plaka arasındaki iyon iletim mesafesinin daha uzun olması kütle transfer direncini arttırdığı ve kütle transfer etkisini zayıflattığı düşünülmektedir (Lv *et al.* 2009; Tijani *et al.* 2014). Elektrot mesafesinin arttırılması sabit bir akım yoğunluğunu korumak için akü voltajı çıkışının artırılmasını gerektirir.

Yüksek voltajda sadece enerji tüketimi artmaz, aynı zamanda anot ve katot yüzeyinde hidrojen ve oksijen salınımı gibi yan reaksiyonlar meydana gelir ve bu da organik bozulma verimini azaltmaktadır (Raschitor *et al.* 2017; Chao Zhang *et al.* 2013). Bu durum elektrooksidasyon ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin azalmasına neden olmuştur.



Şekil 84. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak elektrotlar arası mesafeye bağlı olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 8.35, sızıntı suyu sıcaklığı 20°, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

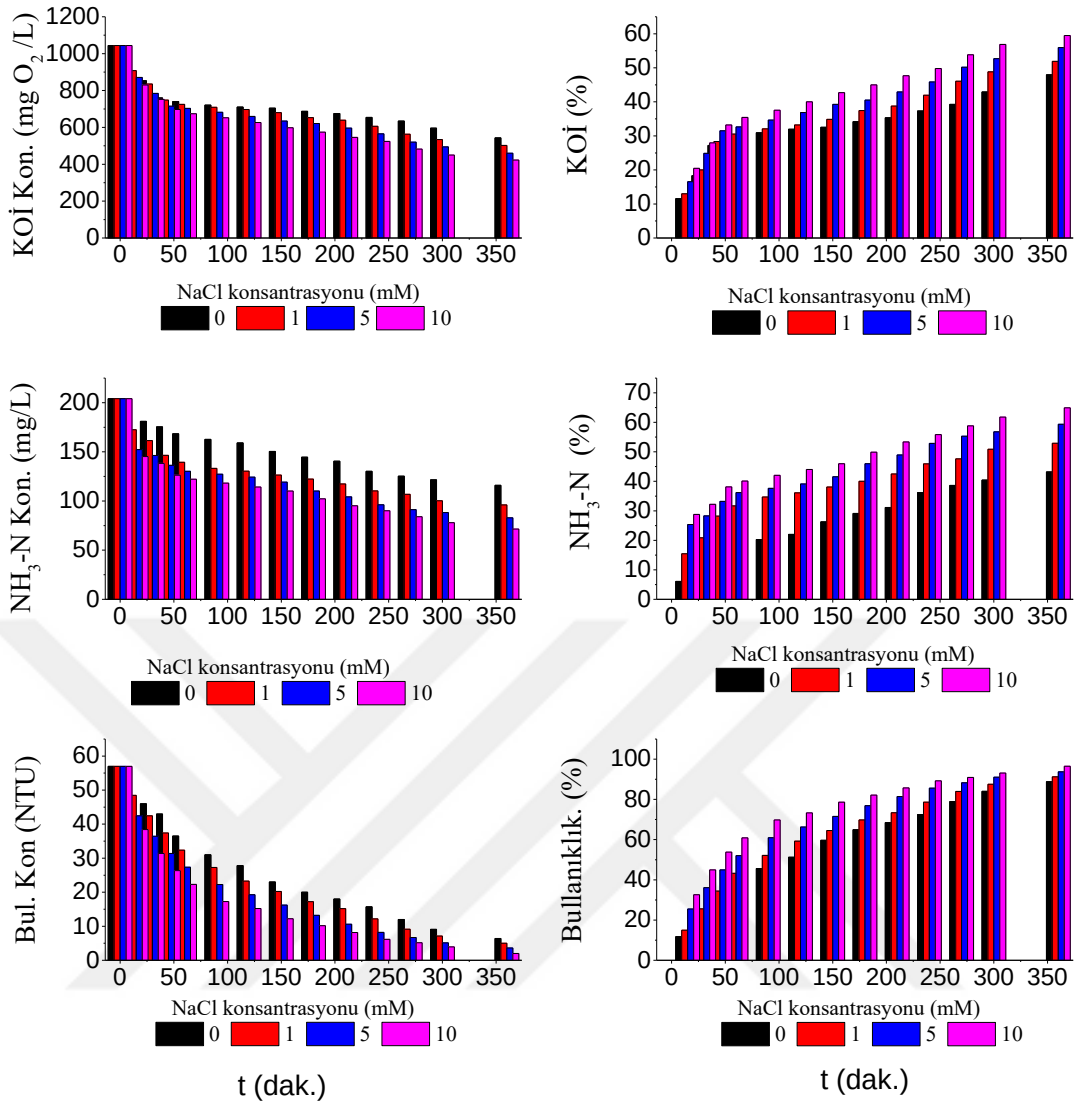
Elektrotlar arası mesafeye bağlı olarak sızıntı suyundan EO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimlerinden elde edilen sonuçlar literatürde yapılan diğer benzer çalışmalarla desteklenip KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim mekanizmaları benzer ifadelerle açıklanmıştır (Ashok & Sharma, 2013; Srilatha *et al.* 2019; G. Zhang *et al.* 2020).

Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine NaCl destek elktrolitinin etkisi

EO ile anodik arıtımın ucuz olması ve içerdiği çözeltinin yüksek iletkenliğe sahip olması nedeniyle destekleyici elektrolit olarak NaCl kullanılmıştır. Bu nedenle düşük akım yoğunluğu gerektirdiğinden büyük ölçekte ekonomiktir.

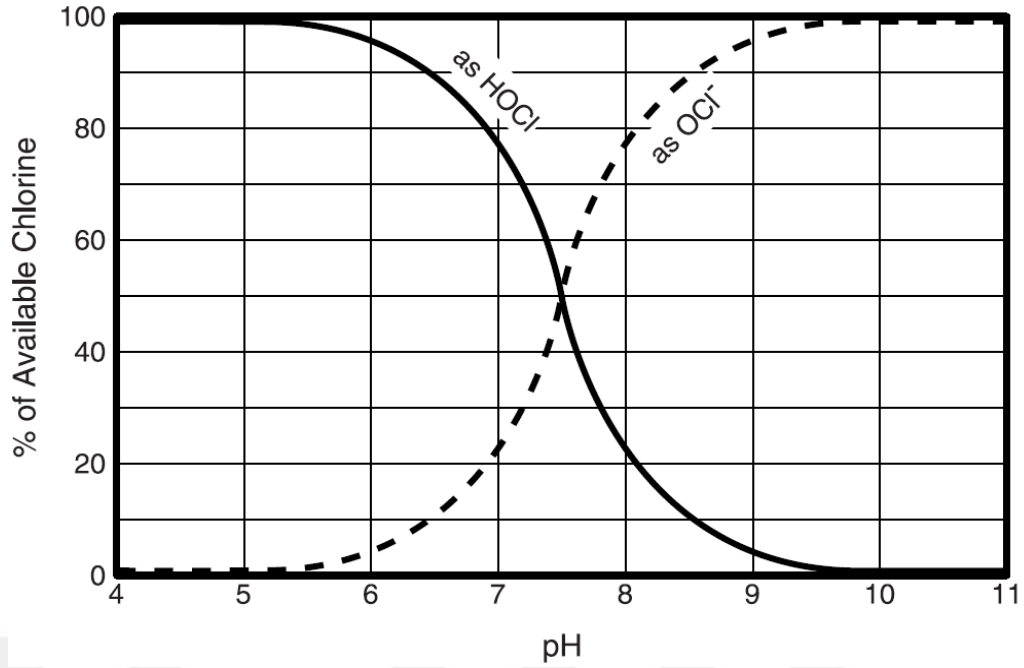
0, 1, 5 ve 10 mM’lık NaCl konsantrasyonları için sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine EO prosesinin etkisi araştırılmış ve Şekil 85’de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar doğal pH 8.35, akım yoğunluğu 25 mA/cm², karıştırma hızı 300 rpm, başlangıç sıcaklığı değeri 20°C ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Ayrıca yapılan analiz sonucu sızıntı suyunun yapısında 718 mg/L Cl⁻ iyonu bulunduğ u belirlenmiştir. 360 dakikalık bir reaksiyon sonunda reaktörden alınan numuneler 45 µm’lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Çözelti başlangıç pH değeri 8.35 olan sızıntı suyu için 360 dakikalık bir elektrooksidasyon süresi sonucu çıkış suyu pH değeri 7.5 olarak belirlenmiştir. Çıkış suyu pH değerlerinde meydana gelen bu azalmanın pH parametresinin KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisinin incelendiğ i bölümde belirtildiğ i gibi Cl₂ hidrolizi, amonyak oksidasyonu ve oksijen yayılım reaksiyonları sonucu H⁺ iyonlarının çözelti içerisinde birikmesine yol açmasından kaynaklandığ ı söylenebilir. 0, 1, 5 ve 10 mM’lık NaCl konsantrasyonları için 360 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%47.9, 51.9, %55.9 ve %59.5), (%43.2, %52.9, %59.4 ve %64.9) ve (%88.8, %91.2, %93.7 ve %96.5) olarak belirlenmiştir. Şekil 85’ten görüldüğ ü gibi NaCl konsantrasyonunun 0 mM’dan 10 mM NaCl konsantrasyonuna yükselmesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin arttığ ı görölmektedir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 10 mM NaCl için sırası ile %59.5, %64.9 ve %96.5 olarak belirlenmiştir.

NaCl konsantrasyonunun 0mM’dan 10 mM’a yükselmesi ile EO ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde sırası ile %11.6, %21.7 ve %7.8’lik artışlara neden olmuştur.



Şekil 85. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak NaCl destek elektrotuna bağlı olarak sızıntı suyundaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 8.35, sızıntı suyu sıcaklığı 20°, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Suyun pH değeri hipokloröz asit ve hipoklorit iyonlarının değişen oranlarına göre önemlidir. pH değeri 6'nın üzerinde olan bir çözeltide hipokloröz asit oranı pH 9 değerinde %100'den neredeyse %0 değerine düşmektedir. Bir bakterisit olarak hipokloröz asidin aktivitesi hipokloritten çok daha yüksektir ve neredeyse 80 kat daha güçlüdür. Serbest kalıntı klorlamada pH değeri ne kadar yüksekse hipokloröz asit oranının daha düşük olması nedeniyle kalıntının o kadar az aktif olduğu sonucuna varılabilir. Şekil 86 klor türleri dengesinin pH ile nasıl değiştiğini göstermektedir.



Şekil 86. Farklı pH değerlerinde HOCl ve OCl⁻ arasındaki ilişki.

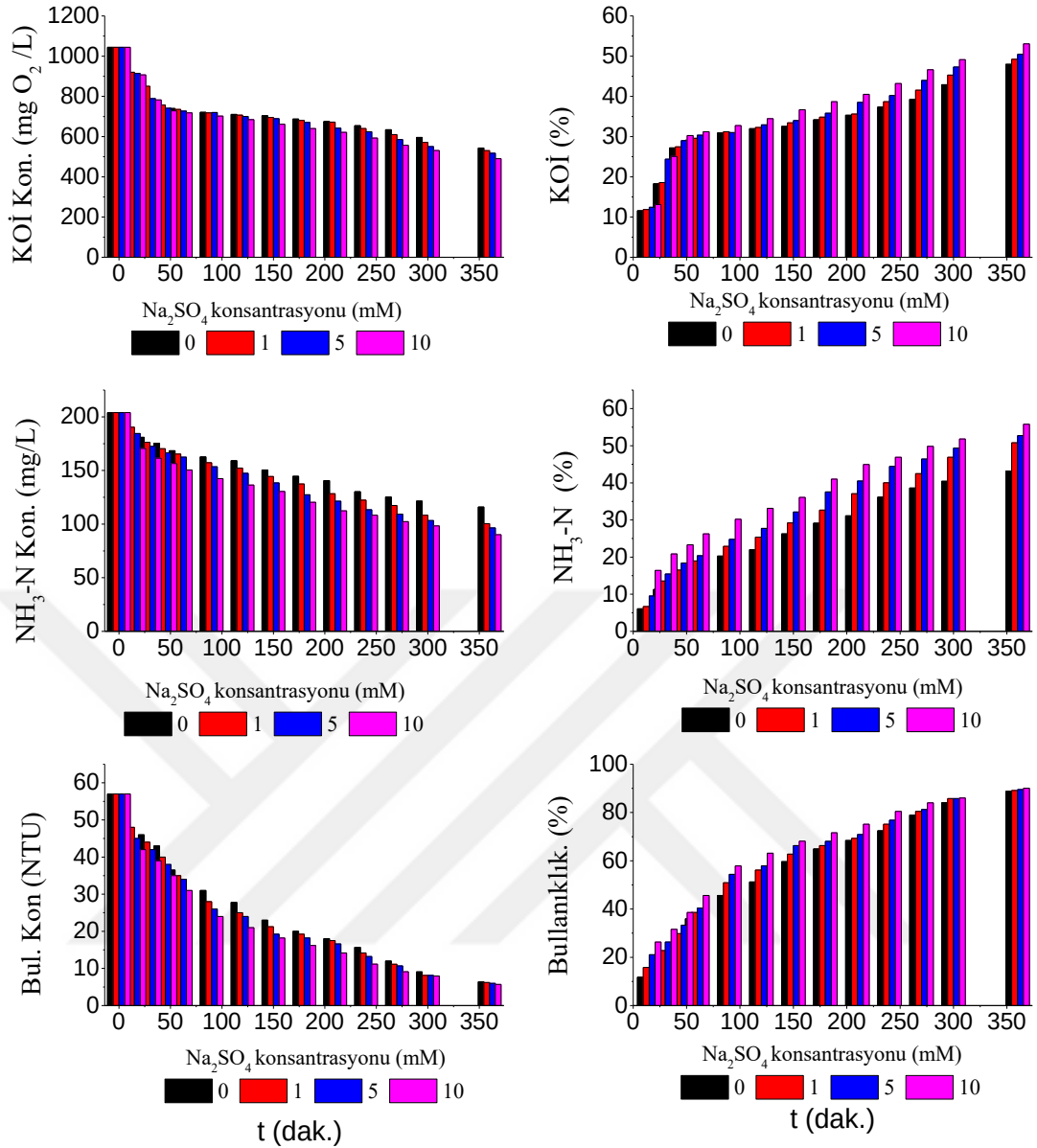
Sızıntı suyuna ilave edilen NaCl konsantrasyonunun artması ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri Şekil 85’den görüldüğü gibi artmıştır. Bu durum aktif klor üretimi için dolaylı oksidasyonun katkısı ve ayrıca OH° radikallerinin aracılık ettiği dolaylı oksidasyon ile açıklanabilir (Bassyouni *et al.* 2017; Deborde & Von Gunten, 2008; Rodrigo *et al.* 2014). pH 8.3-7.5 arasında etkin klorür türleri HOCl ve OCl⁻ dir.

Sızıntı suyunda KOİ ve bulanıklığa neden olan organik maddelerin anot üzerinde oluşan OH° radikalleri ve bulk ortamda Cl₂’nin hidrolizi ile oluşan HOCl ve OCl⁻ klor türleri ile reaksiyonu sonucu KOİ ve bulanıklık giderim verimleri NaCl konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sızıntı suyunda bulunan NH₃-N’nin aktif klor türleri ile reaksiyonu sonucu oluşan klor aminler ve N₂ gazına dönüşümü sonucu NH₃-N giderim verimleri artmıştır.

Sızıntı suyunda NaCl destek elektrolitine bağlı olarak sızıntı suyundan EO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimlerine yönelik yapılan açıklamalar literatürde gerçekleştirilen diğer çalışmalarla ortaya konulan mekanizmalarla benzerlik göstermektedir (Ghimire *et al.* 2019; Gonçalves *et al.* 2012; K.-L. Huang *et al.* 2019; Klidi *et al.* 2018; Nidheesh *et al.* 2020).

Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine Na₂SO₄ destek elktrolitinin etkisi

0, 1, 5 ve 10 mM’lık Na₂SO₄ konsantrasyonlarının EO ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkisi araştırılmış ve Şekil 87’de gösterilmiştir.



Şekil 87. Elektrooksidasyon prosesi kullanılarak Na_2SO_4 destek elektrotuna bağlı olarak sızıntı suundaki KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık konsantrasyonlarının zamana bağlı olarak değişimi ve giderim verimleri (KOİ 1044 mg- O_2 /L, $\text{NH}_3\text{-N}$ 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 8.35, sızıntı suyu sıcaklığı 20°, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Deneysel çalışmalar doğal pH 8.35, akım yoğunluğu 25 mA/cm², karıştırma hızı 300 rpm, başlangıç sıcaklık değeri 20°C’lik ortamda gerçekleştirilmiştir. Ayrıca yapılan analiz sonucu sızıntı suyunun yapısında 718 mg/L Cl^- iyonu bulunduğu belirlenmiştir.

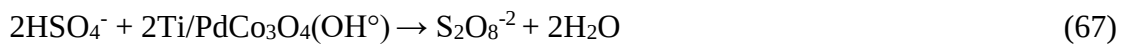
360 dakikalık bir reaksiyon sonunda reaktörden alınan numuneler 45 μm ’lık filtreden geçirildikten sonra KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 0, 1, 5 ve 10 mM’lık Na_2SO_4 konsantrasyonları için 360 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%47.9, %49.2, %50.5 ve %53), (%43.2, %50.8, %52.7 ve %55.8) ve (%88.8, %89.2, %89.5 ve %90) olarak belirlenmiştir. Şekil 89’den görüldüğü gibi

Na₂SO₄ konsantrasyonunun 0 mM'dan 10 mM konsantrasyonuna yükselmesi ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin arttığı görülmektedir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 10 mM NaCl için sırası ile %53, %55.8 ve %90 olarak bulunmuştur.

Na₂SO₄ konsantrasyonunun 0 mM'dan 10 mM'a yükselmesi ile EO ile sızıntı sularından KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde sırası ile %5.1, %12.6 ve %1.1'lik artışlara neden olmuştur.

Çözelti kütlesindeki elektrik akımı transferini iyileştirmek için destekleyici bir elektrolitin kullanılması organik bileşiklerin elektrokimyasal oksidasyon süreçlerinde vazgeçilmez bir faktördür. Bu çalışmada, Na₂SO₄ destek elektrolitinin farklı konsantrasyonlarının sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimine etkisi 0-10 mM aralığında araştırılmıştır. Şekil 87'de görüldüğü gibi Na₂SO₄ konsantrasyonunun artması ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri kısmen artmıştır.

Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması, elektron transferini kolaylaştırıp anot yüzeyinde OH° radikallerinin üretim hızını artırarak çözeltinin iletkenliğini iyileştirmektedir. Önceki çalışmalara dayanarak, in aktif elektrot ile elektrooksidasyon sırasında iki ana reaktif sülfat türü üretilmektedir. Bunlar: (i) peroksidi sülfat (S₂O₈⁻²) ve (ii) sülfat radikalleri (SO₄^{°-}) dir. S₂O₈⁻²'nin SO₄⁻²'tan elektrokimyasal üretimi için üç mekanizma önerilmektedir. Bunlar: anotta SO₄⁻²'in S₂O₈⁻²'ye doğrudan oksidasyonu eşitlik 66 (Serrano & Michaud, n.d.)), üretilen Ti/PdO-CoO (OH°) tarafından SO₄⁻²'in dolaylı oksidasyonu Eşi. (68) (Murugananthan *et al.* 2007; Serrano & Michaud, n.d.) ve elektrokimyasal olarak üretilen SO₄^{°-} radikallerinin kombinasyonudur (Eşi. (69))(Ganiyu, n.d.; Serrano & Michaud, n.d.).



Arıtım prosesinin verimliliğini artırabilen ikincil oksidanlar olarak reaktif sülfat türlerinin oluşumu söz konusudur. Elektrokimyasal olarak oluşan SO₄^{°-} ve S₂O₈⁻²-reaktif sülfat türleri, oksidanların oluşumunda ara türlerdir. Birçok çalışma bu reaktif sülfat türlerinin organik kirleticilerin elektrooksidasyonuna katılımlarını kanıtlamıştır (Cai *et al.* 2018; L. Chen *et al.* 2018; Song *et al.* 2018). Bu nedenle sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri Na₂SO₄ destek elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır.

Sızıntı suyunda Na_2SO_4 destek elektrolitine bağılı olarak EO ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine yönelik önerilen mekanizmalar literatürde gerçekleştirilen diğer çalışmalarla ortaya konulan mekanizmalarla desteklenip KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim mekanizmaları benzer şekilde açıklanmıştır (Ganiyu, n.d.; Hoang *et al.* 2021; Jum'h *et al.* 2017; Mandal *et al.* 2020; Nava *et al.* 2008; Samarghandi *et al.* 2020).

Bununla birlikte, yüksek Na_2SO_4 konsantrasyonlarında, aşırı sülfat iyonlar (SO_4^{2-}) anoda göç edip yüzeyinde birirmektedir. Anot yüzeyindeki aktif bölgelerin SO_4^{2-} iyonları ile işgal edilmesi, anodun elektrokatalitik özelliğinin inaktivasyonu ile sonuçlanmakta ve bunun sonucunda da organik kirletici uzaklaştırma veriminin azalmasına yol açmaktadır (Dai *et al.* 2016).

Elektrooksidasyon prosesi ile Sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık giderimine ait pseudo-ikinci mertebe reaksiyon kinetikleri ve reaksiyon hız sabitleri

Atıksu arıtımında kullanılan herhangi bir reaktörde gerekli kirletici maddeleri istenilen seviyede uzaklaştırmak için reaksiyona ait kinetik çalışmalarının gerçekleştirilmesi reaktördeki hidrolik alıkonma zamanını belirlemek için oldukça önemlidir (Dash & Chaudhari, 2005). Bundan dolayı elektrooksidasyon prosesi ile düzenli deponi sızıntı suyundan kirletici parametrelerin uzaklaştırılması ve optimizasyonunda reaksiyon hız sabitinin belirlenmesi oldukça önemlidir.

Reaksiyon hızı birim zamanda reaksiyona giren maddenin konsantrasyonundaki değişim olarak tanımlanmaktadır. Çözelti pH'sı, sıcaklık, akım yoğunluğu, elektrotlar arası mesafe, karıştırma hızı, NaCl ve Na_2SO_4 elektrolit konsantrasyonunun fonksiyonu olarak sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık gideriminde yüksek korelasyon katsayılarından ($R^2 > 0.95$) dolayı reaksiyon kinetikleri pseudo-ikinci mertebe reaksiyon kinetiğine uyduğu belirlenmiştir. Pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız kinetiği $V = k'[\text{C}]^2$ eşitliği ile ifade edilmektedir. Bu reaksiyonun $t=t_0$ ve $t=t$ ve $C=C_0$ ve $C=C$ değerlerinde integrali alındığında eşitlik $(1/C) = (1/C_0) + k't$ lineer formuna dönüşmektedir. Burada C_0 , C , t ve k' değerleri sırası ile sızıntı suyunun mg L^{-1} olarak başlangıçtaki KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık konsantrasyonları, reaksiyon süresi sonunda mg L^{-1} olarak KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık konsantrasyonları, dakika cinsinden zaman ve $\text{L mg}^{-1} \text{dak}^{-1}$ pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti değerleridir. Reaksiyon kinetikleri ve farklı deneysel şartlarda belirlenen pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabitlerine ait grafikler sırası ile Şekil (88-94) ve Şekil (95-101)'te gösterilmiştir.

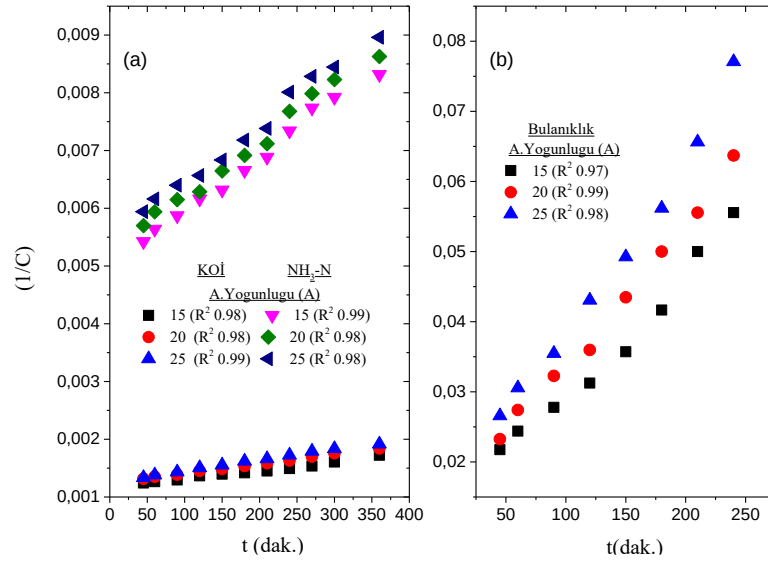
KOİ giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabiti değeri akım yoğunluğu ve karıştırma hızının artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na_2SO_4 elektrolit

konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e artması ile reaksiyon hız sabiti değeri artmış ve çözelti sıcaklığının 50°'den 60°C'ye yükselmesi azalmıştır. Sızıntı suyundan KOİ gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değerleri 10 mM NaCl konsantrasyonu ve pH 5 değerinde sırası ile $2.98 \cdot 10^{-6} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ ve $2.24 \cdot 10^{-6} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir.

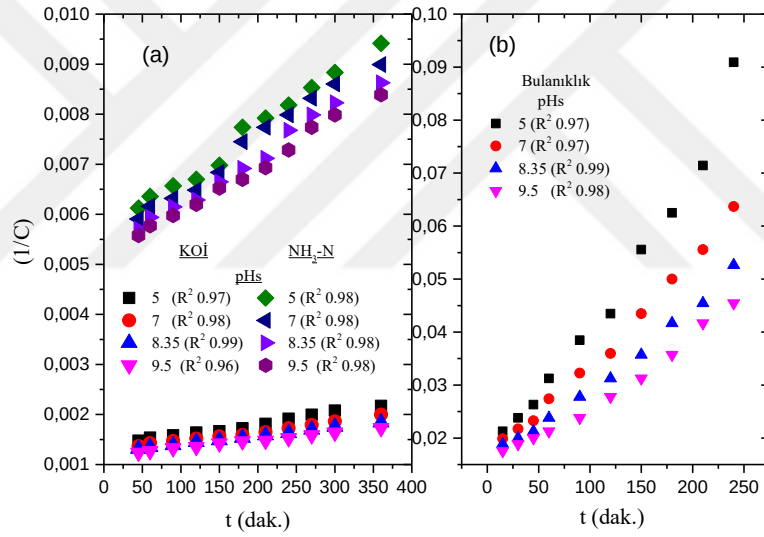
Elektrooksidasyon prosesi ile NH₃-N giderimine ait pseudo-ikinci mertebe hız sabiti değerleri çözelti pH değeri ve elektrotlar arası mesafenin azalması ile artmış akım yoğunluğu, çözelti sıcaklığı, karıştırma hızı NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonlarının artması ile artmıştır. Sızıntı suyundan NH₃-N gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri 10 mM'lık NaCl konsantrasyonu için $1.95 \cdot 10^{-5} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Şekil (88-94)'ten de görüldüğü gibi pH ve elektrotlar arası mesafe değerlerinin artması hariç tüm deneysel parametrelere ait seviye değerlerinin artması ile pseudo-ikinci mertebe hız sabiti değerleri de artmıştır.

Bulanıklık giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabiti değerinin elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ile artmış akım yoğunluğu, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonlarının artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e yükselmesi ile hız sabiti değeri artmış ancak sıcaklık değerinin 50°'den 60°C'ye yükselmesi ile hız sabiti değeri de azalmıştır. Sızıntı suyundan bulanıklık gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri NaCl konsantrasyonun 10 mM olduğu zaman $5.33 \cdot 10^{-4} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Bulanıklık giderimine ait reaksiyon hız sabiti değerleri Şekil (95-101)'den de görüldüğü gibi KOİ ve NH₃-N giderim hız sabiti değerlerinden oldukça daha büyük değerlere sahip olduğu görülmektedir.

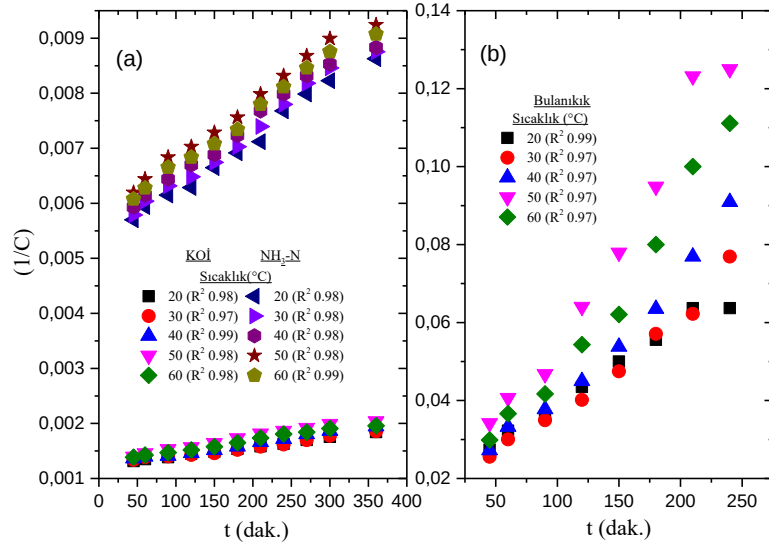
Farklı deneysel şartlarda sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine yönelik reaksiyon kinetikleri Şekil (88-94)'de olduğu gibi aşağıda gösterilmiştir.



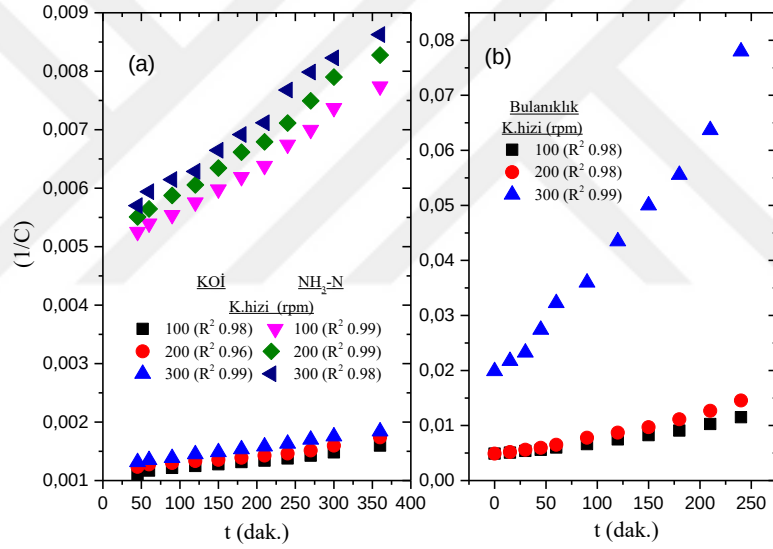
Şekil 88. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri



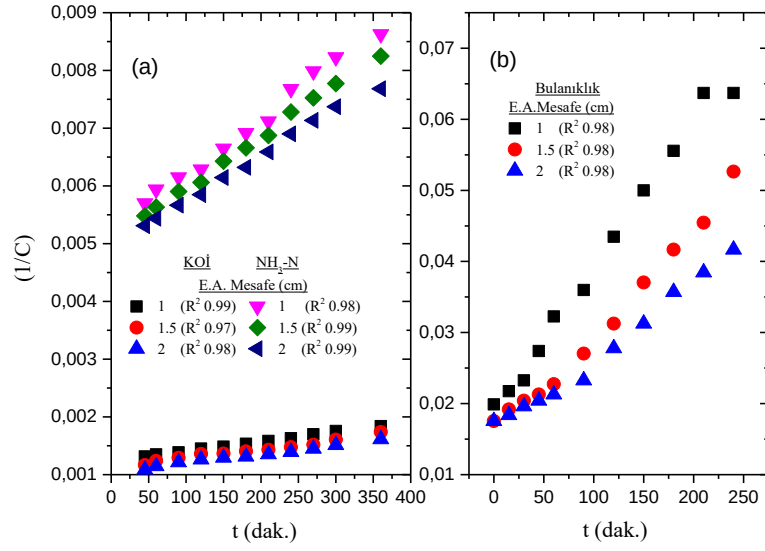
Şekil 89. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerinin fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri



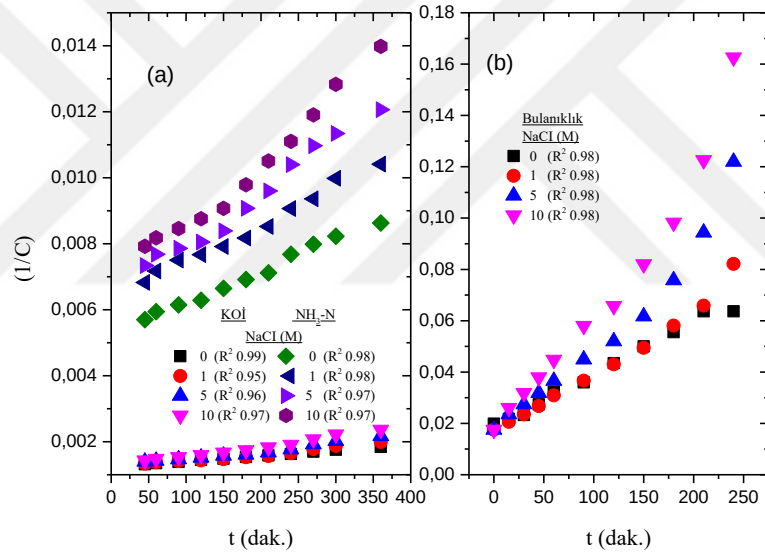
Şekil 90. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklığının fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri



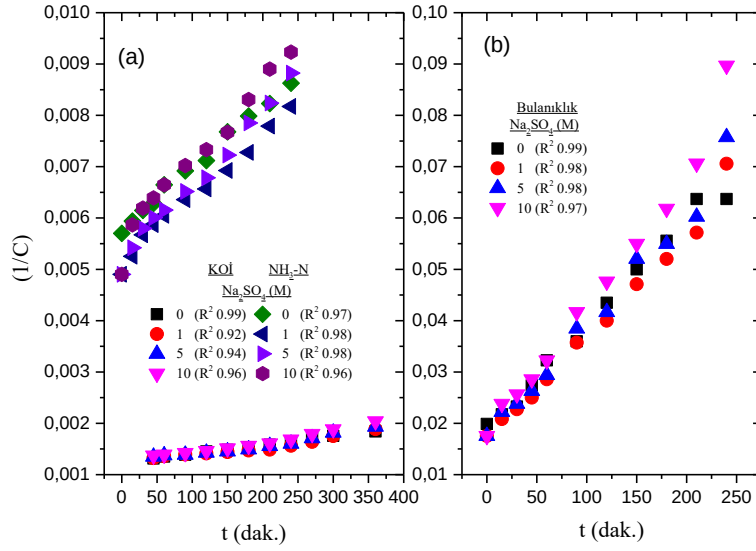
Şekil 91. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızının fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri



Şekil 92. Sızıntı suyunda bulunan KOI , NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafenin fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri

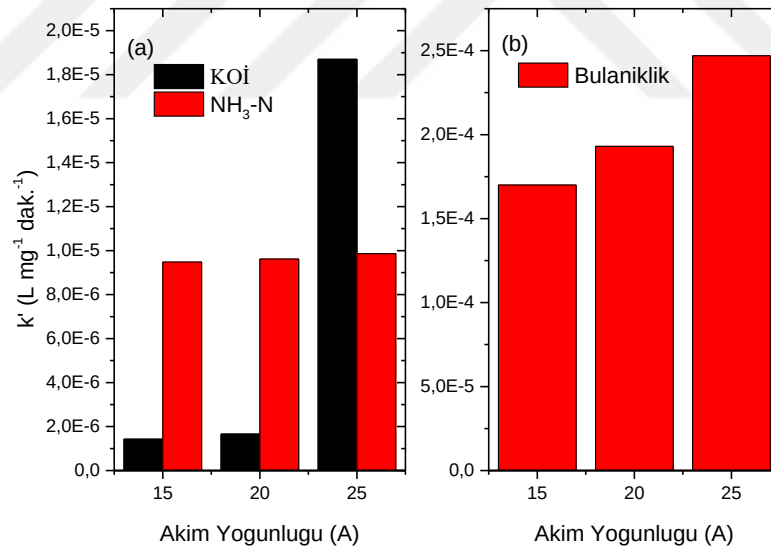


Şekil 93. Sızıntı suyunda bulunan KOI , NH_3-N ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl konsantrasyonunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri

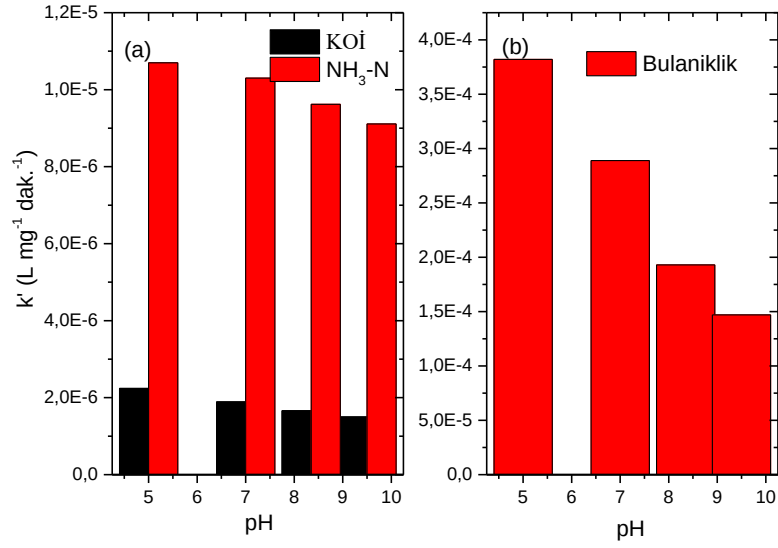


Şekil 94. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait Na_2SO_4 konsantrasyonunun fonksiyonu olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri

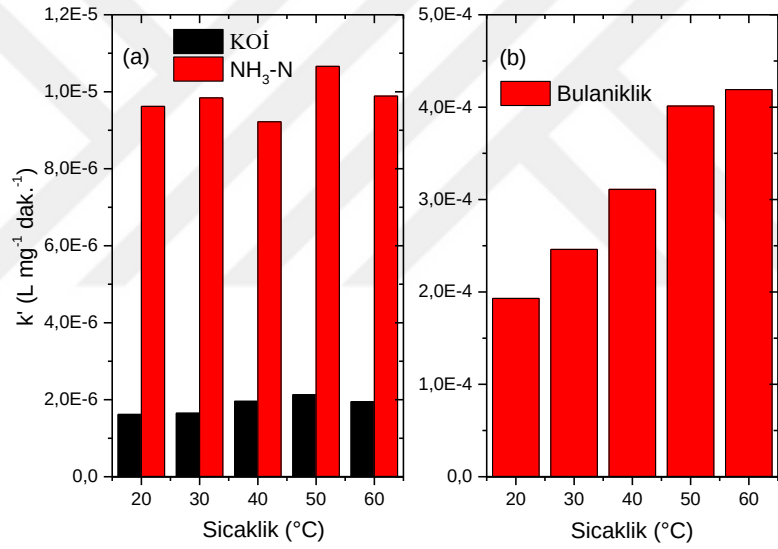
Farklı deneysel şartlarda sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine yönelik pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri Şekil (95-101)'te aşağıdaki gibi gösterilmiştir.



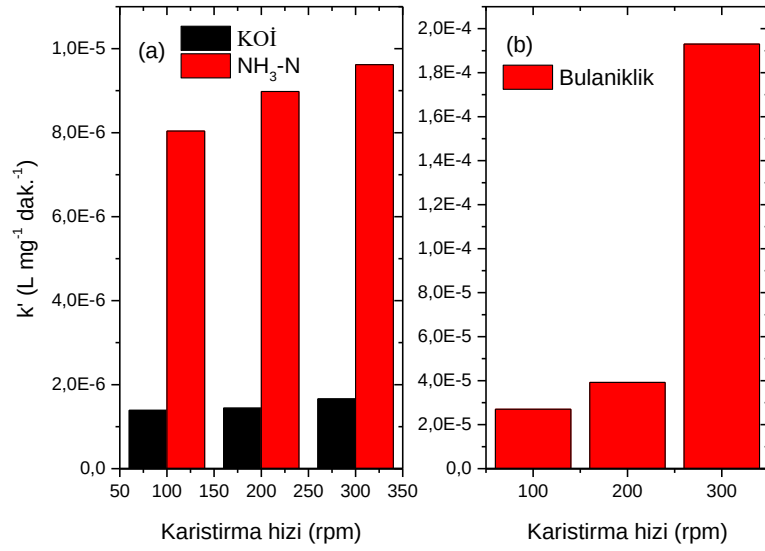
Şekil 95. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait akım yoğunluğu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



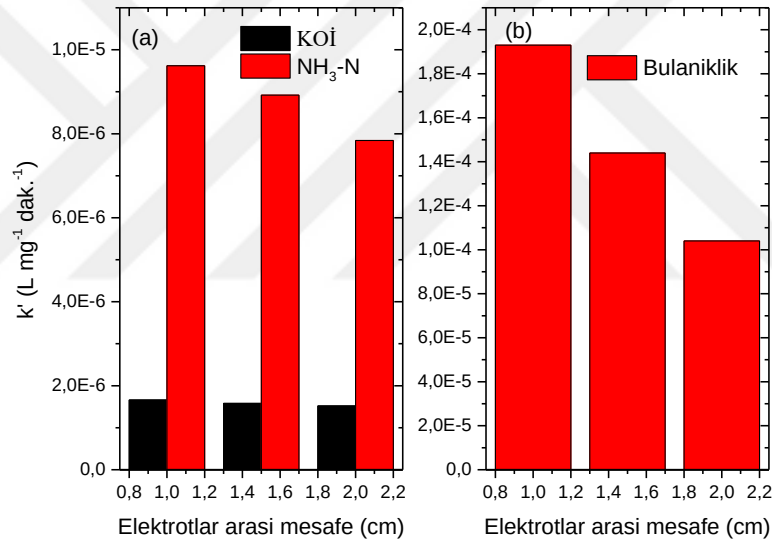
Şekil 96. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç pH değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



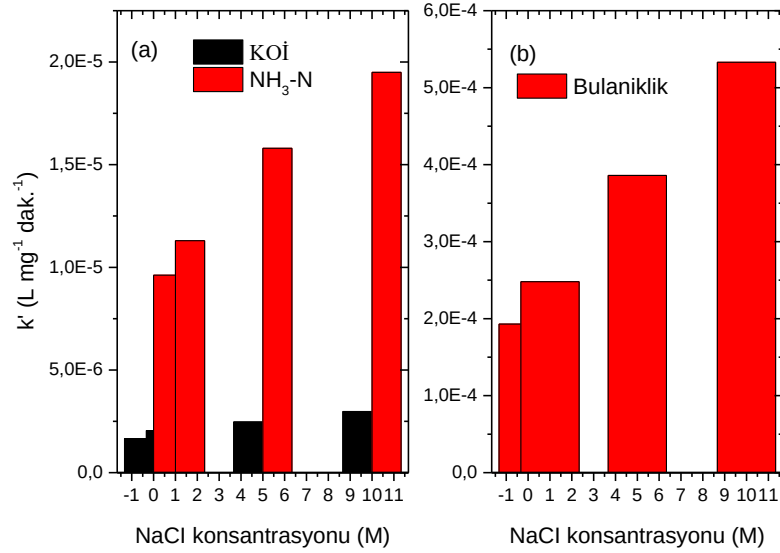
Şekil 97. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait başlangıç sıcaklık değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



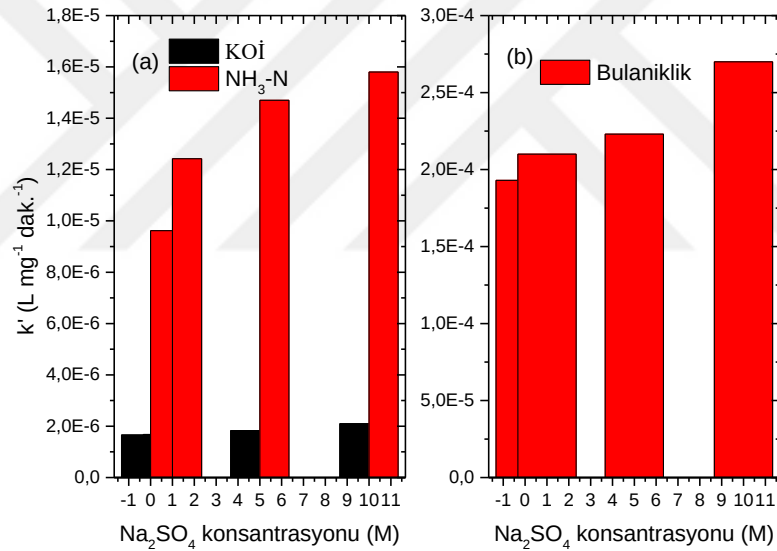
Şekil 98. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait karıştırma hızı değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 99. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait elektrotlar arası mesafe değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 100. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait NaCl elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 101. Sızıntı suyunda bulunan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık parametrelerine ait Na_2SO_4 elektrolit konsantrasyonu değerlerine bağlı olarak pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri

Elektrooksidasyon prosesi ile sızıntı suyundan KOİ gideriminde işletme maliyetinin hesaplanması

Elektrooksidasyon prosesinde önemli aşamalardan biri de işletme maliyetinin hesaplanmasıdır. Bu tez çalışması kapsamında sızıntı suyunun uygulanan akım yoğunluğu ve proses süresine göre KOİ kirlilik parametresinin gideriminde işletme maliyetlerinin hesaplanmasında enerji tüketimi kWh/m^3 , birim enerji tüketimi kWh/kg KOİ , birim elektrot tüketim maliyeti $\$/\text{kg KOİ}$ ve toplam tüketim maliyeti $\$/\text{kg KOİ}$ hesaplanmıştır. Maliyet analizleri, sızıntı suyunun pH'sı 8.35, 20°C sıcaklık, 300 rpm karıştırma hızı, elektrotlara arası

mesafe 1 cm, elektrolitsiz ortam, reaksiyon süresi 360 dakika ve numune hacmi 400 mL olan koşullarda hesaplanmıştır.

Bu koşullara göre elektrokoagülasyon proseslerinin uygulanan akım yoğunluklarına göre elektrik sarfiyatı, birim enerji sarfiyatı ve toplam elektrot maliyeti hesaplamaları Tablo 14’de verilmiştir.

Tablo 14. Elektrooksidasyonda Farklı Akım Yoğunlukları İçin Maliyet Analizleri

Elektrooksidasyon Prosesi				
Akım Yoğunluğu (mA/cm ²)	Enerji Tüketimi (kWh/m ³)	Birim Enerji Tüketimi (kWh/kg.KOİ)	Elektrot Maliyeti (\$/kg.KOİ)	Toplam Tüketim Maliyeti (\$/kg.KOİ)
15	28,125	122,28	1,45	12,452
20	43,031	159,38	1,88	16,224
25	56,25	200,89	2,37	20,450

Tablo 14’e göre, Elektrooksidasyon prosesinde 360 dakikalık bir reaksiyon sonucunda Ti/PdO-CoO anot ve çelik katot elektrotlar kullanılarak yapılan çalışmalarda akım yoğunluğu 15 mA/cm²’den 25 mA/cm²’ye yükselmesiyle enerji tüketimi 28.125 kWh/m³’ten 56.25 kWh/m³’e, birim enerji tüketimi 122.28 kWh/kg.KOİ’den 200.89 kWh/kg.KOİ’ye, toplam tüketim maliyeti ise 12.452 \$/kg.KOİ’den 20.450 \$/kg.KOİ’ye yükselmiştir.

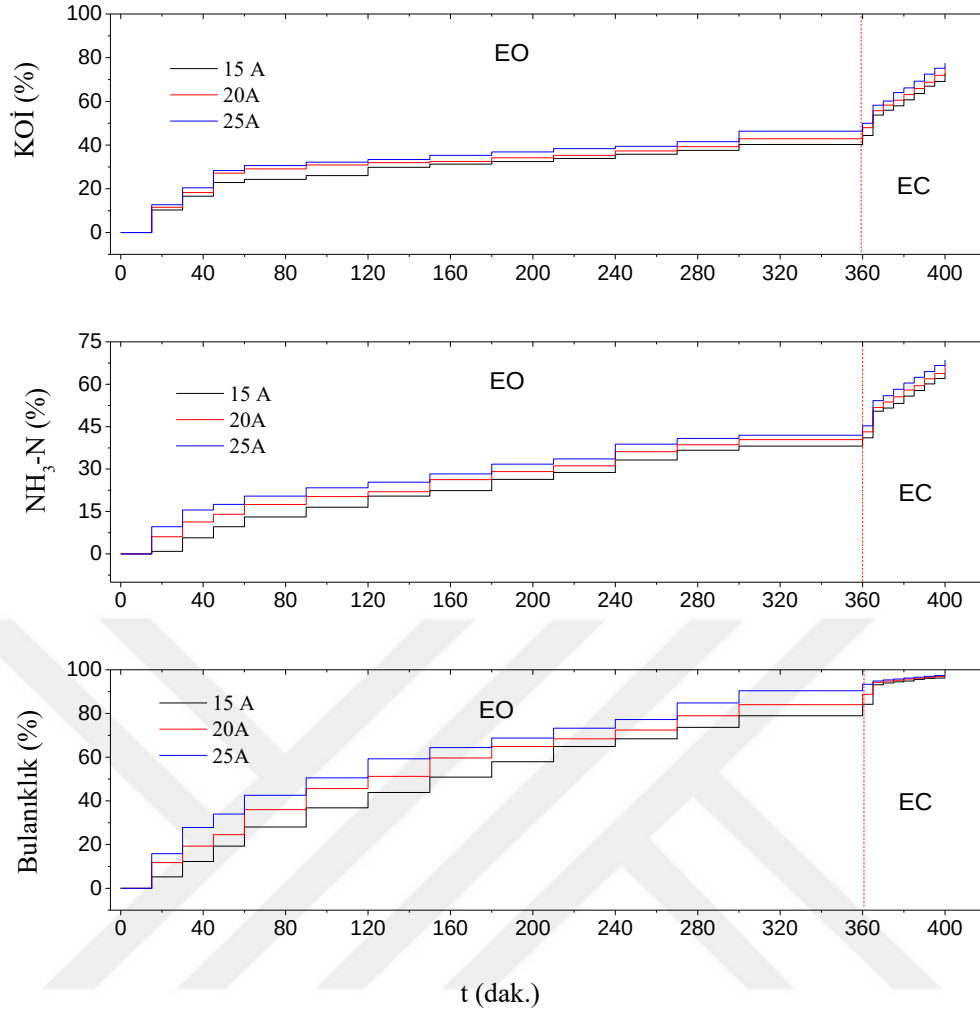
Ti/PdO-CoO Anot ile Elektrookside Olmuş Sızıntı Suyundan Elektrokoagülasyon Prosesi ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimi

Başlangıç KOİ, NH₃-N ve bulanıklık değerleri sırası ile 1044 mg O₂/L, 204 mg/L ve 57 NTU olan sızıntı suyu yeni üretilen Ti/PdO-CoO anot ve çelik katot ile 360 dakika boyunca elektro oksidasyona tabi tutuldu. Deneysel çalışmalar 25 mA/cm² akım yoğunluğu, 300 rpm karıştırma hızı, 1 cm elektrot mesafesi, 20°C çözelti sıcaklığı ve başlangıç doğal pH değeri 8.35 olan deneysel şartlarda gerçekleştirildi. 360 dakikalık bir elektrooksidasyon süresi sonunda elektro okside olmuş çıkış suları 45 µm’lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlendi. 360 dakikalık bir reaksiyon sonunda geriye kalan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonları ve giderim verimleri sırası ile (523 mg O₂/L, 111 mg/L ve 3.9 NTU) ve (%49.9, % 45.3 ve %93.3) olarak belirlendi. Elektrooksidasyondan sonra mineralize ve polarize olmuş çözünmüş organik maddeler ve destabilize olmuş geriye kalan kolloidal maddeleri içeren çıkış suyu 40 dakikalık bir Elektrokoagülasyon prosesine tabi tutuldu. EO çıkış sularına EK prosesinin uygulanmasının temel amacı çıkış suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık değerlerinin EK prosesi ile daha fazla artırılıp artırılamayacağını

belirlemektir. Bu amaçla EO'dan sonra çıkış suyuna farklı deneysel şartlarda EK prosesi uygulanarak elde edilen sonuçlar değerlendirilmiştir.

Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderim verimine akım yoğunluğunun etkisi

Elektro okside olmuş çıkış sularının elektrokoagülasyon ile giderim çalışmalarında alüminyum anot ve çelik bir katot kullanılmıştır. 15, 20 ve 25 mA/cm² 'lik akım yoğunluklarının elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 102'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar pH 7.4 (elektro okside olmuş çıkış suyunun başlangıç pH değeri), başlangıç sıcaklığı 20°C, elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrokoksasyon çalışmaları 360 dakikalık bir reaksiyondan sonra tamamlanmış hemen akabinde 365-400 dakika arasında ise EK çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Yani EK prosesi süresi toplam 40 dakika olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 15, 20 ve 25 mA/cm² akım yoğunluğu değerleri için 40 dakikalık bir elektrokoagülasyon prosesi sonucu çıkış suyu pH değerleri sırası ile 8.72, 9.01 ve 9.38 olarak belirlenmiştir. 15, 20 ve 25 mA/cm² 'lik akım yoğunlukları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%72.8, %75.3 ve %77.5), (%63.7, %66.6 ve %68.6) ve (%96.6, %97.2 ve %97.7) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 25 mA/cm²lik akım yoğunluğu için sırası ile %77.5, %68.6 ve %97.7 olarak belirlenmiştir. Şekil 102'den görüldüğü gibi akım yoğunluğunun artması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.



Şekil 102. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine akım yoğunluklarının etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

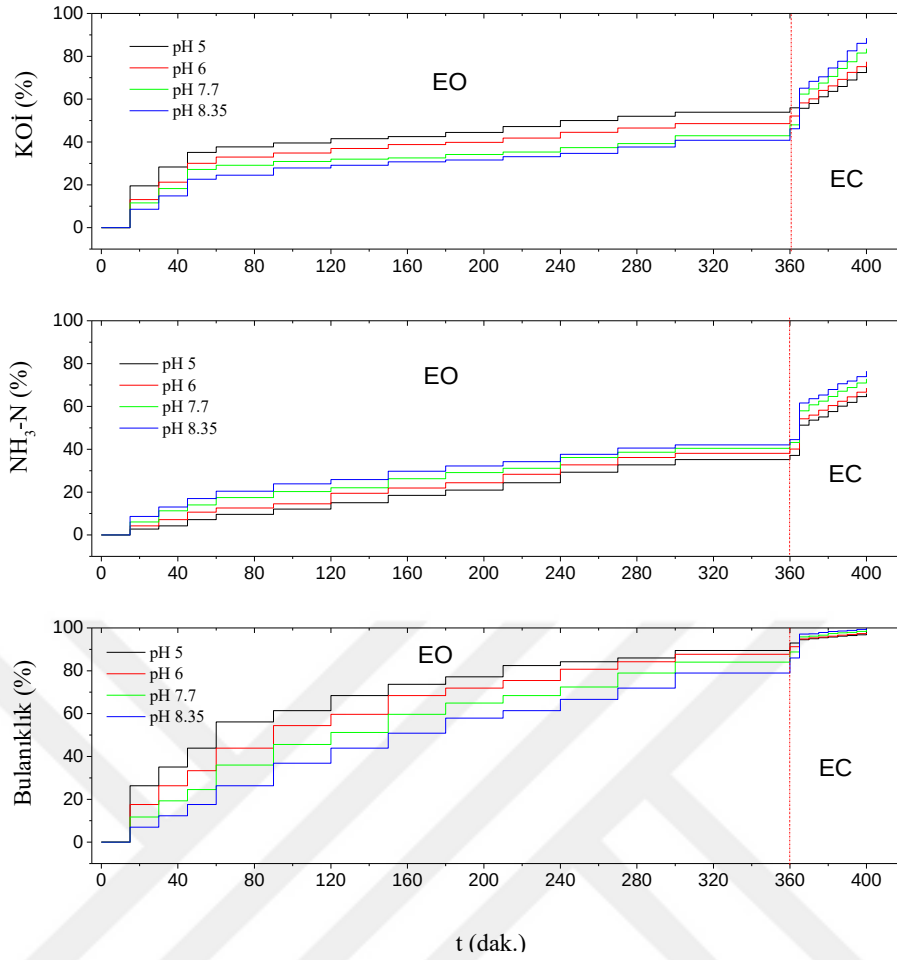
Şekil 102’den görüldüğü gibi EO prosesinden sonra çıkış sularının EK prosesi işlemine tabi tutulması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO prosesinden sonra %27.6 , %23.3 ve %4.4 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrooksidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözülmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların elektrokoagüle edilerek ortamdan uzaklaştırılması ile açıklanabilir.

Elektrokoagülasyon prosesi sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artması, koagülant ve kabarcık oluşum hızının artmasıyla kolayca açıklanabilir. Bu nedenle akım yoğunluğunun artması ile daha verimli ve daha hızlı bir kirletici giderimi gerçekleşmiştir. Akım yoğunluğunun artması ile anottaki alüminyumun çözünme eğilimi artarak çözelti ortamında Al(OH)₃ katısının daha hızlı ve daha fazla miktarda oluşumuna neden olduğu düşünülmektedir. Oluşan Al(OH)₃ katısının çözelti ortamında bulunan çözülmüş maddelerle

etkileşimi ve kolloidal yapıları bir ağ şeklinde sararak çözelti ortamından uzaklaştırdığı düşünülmektedir. Ayrıca, artan akım yoğunluğu ile H_2 gazı kabarcık oluşum hızı artmış ancak kabarcık oluşum boyutu akım yoğunluğunun artması ile azalmıştır. Bu iki parametrenin kirleticilerin H_2 gazı ile flotasyonuna katkıda bulunarak $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artmasına neden olmuştur. Ayrıca sızıntı suyundan NH_3-N gideriminde akım yoğunluğunun artması çözeltideki pH değerlerinin artmasına katkıda bulunmuştur. Arıtım prosesinde pH değerlerinin yükselmesi NH_3-N 'nin oluşan H_2 gazı kabarcıkları ve ortamdaki karıştırma yardımıyla çözeltiye transfer olan hava vasıtası ile birlikte ortamdan sıyrıldığı düşünülmektedir.

Ti/PdO-CoO anot ile elektrooksitle olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile $KOİ$, NH_3-N ve Bulanıklık giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi

5, 6, 7.7 ve 8.5 değerine sahip başlangıç pH değerlerinin elektro okside olmuş çıkış suyundan $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 103'te gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar 25 mA/cm^2 akım yoğunluğu, başlangıç sıcaklığı 20°C , elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları 360 dakikalık bir reaksiyondan sonra tamamlanmış hemen akabinde 36-400 dakika arasında ise EK çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Yani EK prosesi süresi toplam 40 dakika olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler $45 \mu\text{m}$ 'lik filtreden geçirildikten sonra $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 5, 6, 7.7 ve 8.5'lik başlangıç pH değerleri için 40 dakikalık bir elektrokoagülasyon prosesi sonucu çıkış suyu pH değerleri sırası ile 6.4, 8.3, 9.4 ve 10.3 olarak belirlenmiştir. 5, 6, 7.7 ve 8.5'lik başlangıç pH değerleri için $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%88.5, %83.5, %77.5 ve % 75.4), (%66.1, %68.6, %72.3 ve %76.5) ve (%99.8, %99.1, %97.7 ve %97.2) olarak belirlenmiştir. En yüksek $KOİ$ ve bulanıklık giderim verimi pH 5 değerinde en yüksek NH_3-N giderim verimi ise 8.5 değerinde sırası ile %88.5, %76.5 ve %99.8 olarak belirlenmiştir. Şekil 103'den görüldüğü gibi pH değerinin azalması ile $KOİ$ ve bulanıklık giderim verimleri artmış pH değerinin artması ile ise NH_3-N giderim verimi artmıştır.



Şekil 103. Elektrokoksde olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç pH değerlerinin etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

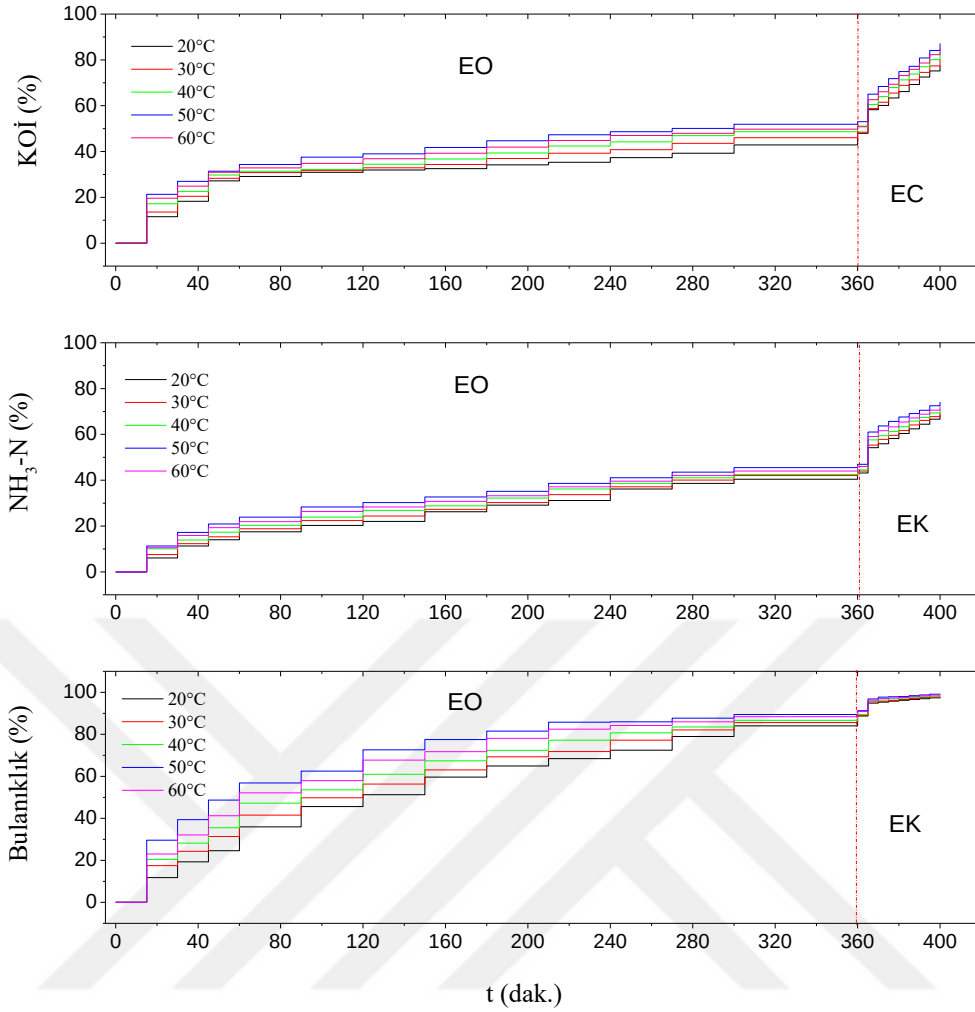
Şekil 103'ten görüldüğü gibi EO prosesinden sonra çıkış sularına EK prosesinin uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO'na kıyasla %27.6, %23.3 ve %4.4 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrokoksdayon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözülmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların elektrokoagüle edilerek ortamdan uzaklaştırılması ile açıklanabilir.

Bilindiği gibi pH 4-7 değerlerinde alüminyum hidrolize olarak yüzeyindeki kolloidal yapıları adsorplamada etkili olan Al³⁺, Al(OH)²⁺ ve Al(OH)₂⁺ iyonlarını oluşturma ve çoğunlukla katı çamur Al(OH)₃ formunda bulunarak destabilize olmuş kolloidal maddeleri ağ şeklinde sararak çöktürme eğilimindedir. Bu nedenle KOİ ve bulanıklık giderim verimleri pH 5, pH 6 ve pH 7.7 değerinde artmıştır. pH 8.5 değerinde ise hidrolize olan alum katı çamur Al(OH)₃ ve Al(OH)₄⁻ iyonları formundadır. Negatif yüklü Al(OH)₄⁻ monopolimerinin yüksek pH değerlerinde oluşması KOİ ve bulanıklık giderim verimlerini azaltmıştır.

Sızıntı suyundan $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim verimlerine en yüksek pH 8.35 değerinde elde edilmiştir. Arıtım sürecinde hidroliz sonucunda oluşan $\text{Al}(\text{OH})_3$ katısının $\text{NH}_3\text{-N}$ ile etkileşimi ve katotta oluşan H_2 gazı kabarcıkları ve ortamdaki çözeltiyi karıştırma yardımıyla çözeltiye transfer olan hava $\text{NH}_3\text{-N}$ 'nin alkali ortamdan uzaklaşmasına neden olduğu düşünülmektedir. pH 5, 6 ve 7.7 değerlerinde çözelti ortamında bulunan Al^{3+} , $\text{Al}(\text{OH})^{2+}$, ve $\text{Al}(\text{OH})_2^+$ iyonları ve $\text{Al}(\text{OH})_3$ katısı $\text{NH}_3\text{-N}$ 'nin adsorpsiyonla ortamdan uzaklaştırılmasına neden olduğu düşünülmektedir. Adsorpsiyonla ise $\text{NH}_3\text{-N}$ 'nin giderim verimleri Şekil 105'den de görüldüğü gibi azalmıştır.

Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklık değerlerinin etkisi

20, 30, 40, 50 ve 60°C değerine sahip başlangıç sıcaklık değerlerinin elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 104'te gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar 25 mA/cm² akım yoğunluğu, 7.4 olan başlangıç pH'sı, elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları 360 dakikalık bir reaksiyondan sonra tamamlanmış hemen akabinde 360-400 dakika arasında ise EK çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Yani EK prosesi süresi toplam 40 dakika olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 20, 30, 40, 50 ve 60°C'lik başlangıç sıcaklık değerleri için KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%77.5, %80.2, %83.5, %87.2 ve %84.8), (%68.6, %69.5, %71.1, %74.1 ve %72.2) ve (%97.7, %98.1, %98.6, %99.3 ve %99.1) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimi 50°C değerinde elde edilip sırası ile %87.2, %74.1 ve %99.3 olarak belirlenmiştir. 60°C sıcaklık değerinde oluşan flokların kısmen de olsa parçalanması sonucu KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır.



Şekil 104. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç sıcaklık değerlerinin etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Şekil 106'dan görüldüğü gibi EO prosesinden sonra EK prosesi nin çıkış sularına uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO'na kıyasla %37.3, %28.8 ve %5.8 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrokseidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözülmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların elektrokoagüle edilerek ortamdan uzaklaştırılması ile açıklanabilir.

Diğer kimyasal reaksiyon hızlarında olduğu gibi elektrokimyasal koagülasyon hızı da çözelti sıcaklığının artması ile artmaktadır. Sıcaklığın artması ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artması aşağıdaki gibi açıklanabilir:

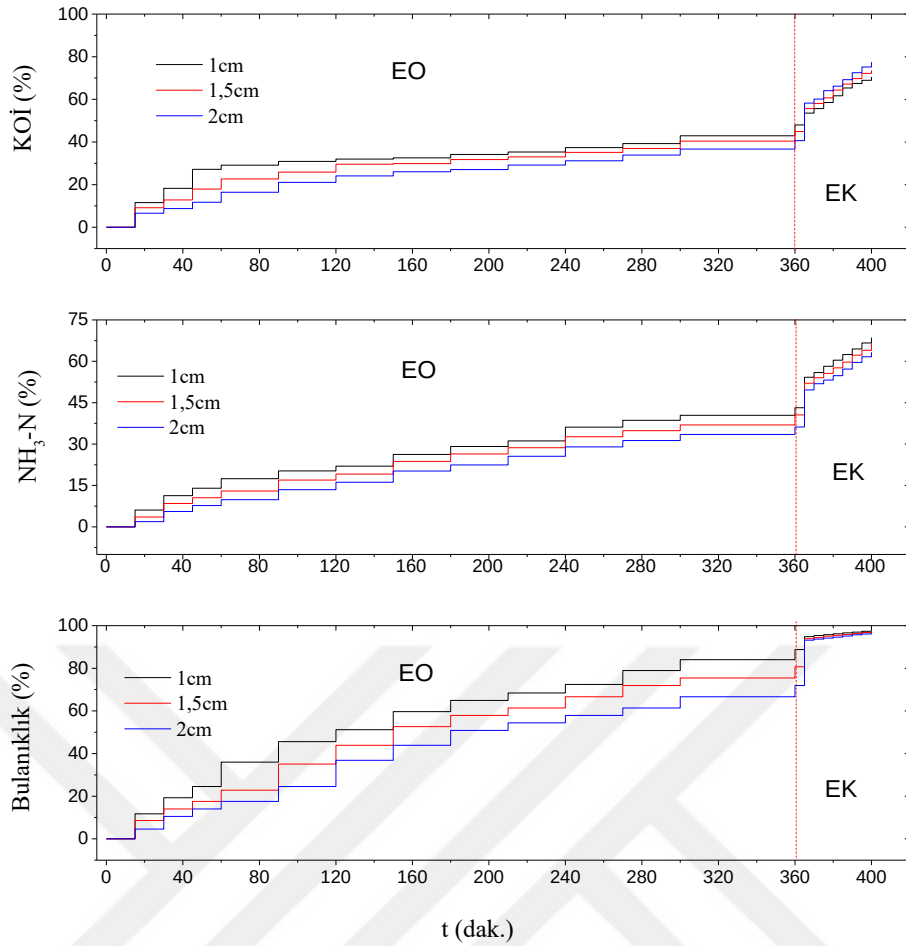
- (vii) Çözelti sıcaklığının artması alüminyum anotta çözünen Al³⁺ iyonlarının çözünmesini hızlandırıp artırmaktadır. Al³⁺ 'te monopolimerlere ve Al(OH)₃ katısına hidrolize olur.

(viii) Sıcaklığın artması, Stokes-Einstein denkleminde göre Al^{3+} 'ün bulk çözeltiye difüzyon hızını artırır ve bunun sonucunda anot yüzeyinden çözelti kütlesine Al^{3+} 'ün kütle transfer hızında bir artışa neden olur.

Yukarıdaki nedenlerin sızıntı suyundan $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderim verimlerini pozitif yönde etkilemiştir. Ayrıca sızıntı suyundan NH_3-N 'nun gideriminde başka bir neden: sızıntı suyunun başlangıç sıcaklığının artması sonucu amonyakın sıcaklıkla çözünürlüğünün azalmasından dolayı ortamdan NH_3-N giderim verimi artmıştır.

Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile $KOİ$, NH_3-N ve Bulanıklık giderimine elektrotlar arası mesafenin etkisi

1, 1.5 ve 2 cm'lik elektrotlar arası mesafe değerlerinin elektro okside olmuş çıkış suyundan $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 105'te gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar 25 mA/cm^2 akım yoğunluğu, 7.4 olan başlangıç pH'sı, 20°C 'lik başlangıç sıcaklığı, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları 360 dakikalık bir reaksiyondan sonra tamamlanmış hemen akabinde 360-400 dakika arasında ise EK çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Yani EK prosesi süresi toplam 40 dakika olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler $45 \mu\text{m}$ 'lik filtreden geçirildikten sonra $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 1, 1.5 ve 2 cm'lik elektrotlar arası mesafe değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%77.5, %73.5 ve %70.5), (%68.6, %66.6 ve %63.3) ve (%97.7, %97.2 ve %96.6) olarak belirlenmiştir. En yüksek $KOİ$, NH_3-N ve bulanıklık giderim verimi 1 cm'lik elektrot mesafesinde elde edilip sırası ile %77.5, %68.6 ve %97.7 olarak belirlenmiştir.



Şekil 105. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine elektrotlar arası mesafenin etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Şekil 105'ten görüldüğü gibi EO prosesinden sonra çıkış sularına EK prosesinin uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO'na kıyasla %27.6, %23.3 ve %4.4 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrooksidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözülmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların elektrokoagüle edilerek ortamdan uzaklaştırılması ile açıklanabilir.

Elektrotlar arası mesafenin artırılması sızıntı suyunda bulunan kolloidal maddelerin ve çözülmüş maddelerin hidroksil, iyonik haldeki alüminyum türleri ve alüminyum hidroksit katısı ile etkileşimini azaltabilir. Bundan dolayı iyonlar arasındaki elektrostatik çekim ve oluşun alüminyum türleri konsantrasyonunun çözelti ortamında azaldığı düşünülmektedir. Bu nedenlerden dolayı çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri elektrotlar arası mesafenin artması ile azalmıştır.

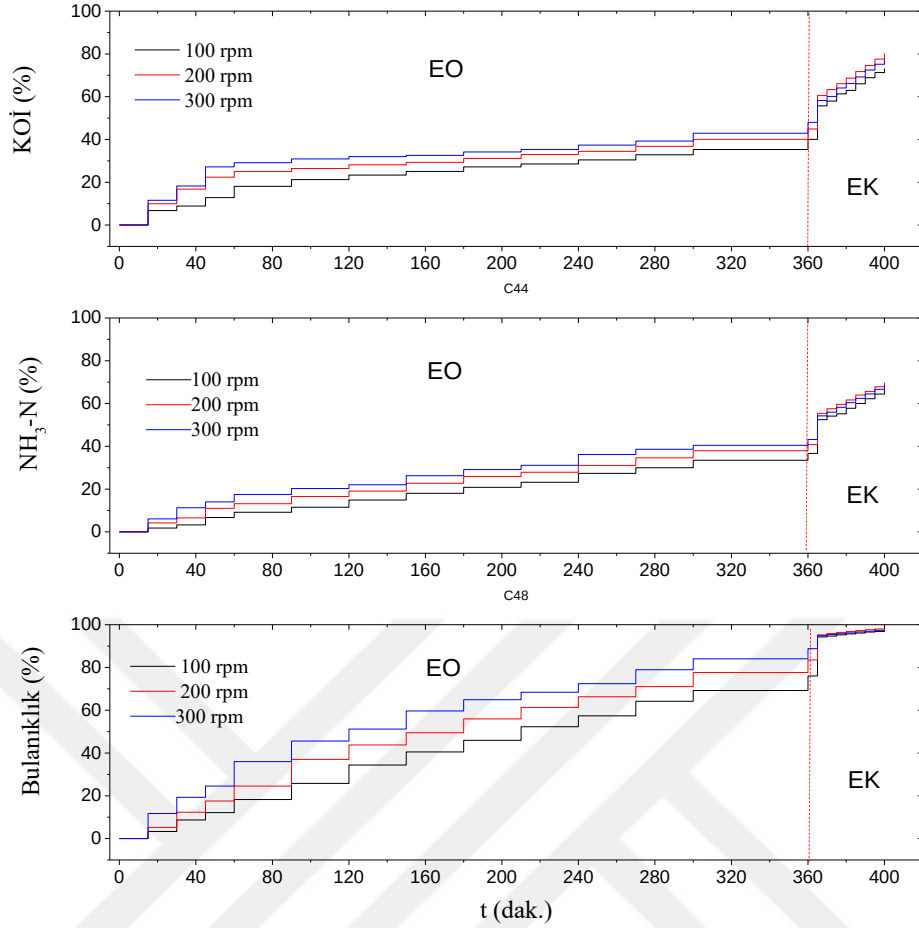
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi

100, 200 ve 300 rpm'lik karıştırma hızı değerlerinin elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 106'da gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar 25 mA/cm² akım yoğunluğu, 7.4 olan başlangıç pH'sı, 20°C'lik başlangıç sıcaklığı, elektrotlar arası mesafe 1 cm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları 360 dakikalık bir reaksiyondan sonra tamamlanmış hemen akabinde 360-400 dakika arasında ise EK çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Yani EK prosesi süresi toplam 40 dakika olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 100, 200 ve 300 rpm'lik karıştırma hızı değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%73.2, %80.3 ve %77.5), (%66.4, %69.8 ve %68.6) ve (%97.1, %98.2 ve %97.2) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimi 200 rpm'lik karıştırma hızında elde edilip sırası ile %80.3, %69.8 ve %98.2 olarak belirlenmiştir. Ancak karıştırma hızı 300 rpm olduğunda oluşan flokların parçalanması neticesinde çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde kısmen bir azalma meydana gelmiştir.

Şekil 106'dan görüldüğü gibi EO prosesinden sonra çıkış sularına EK prosesinin uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO'na kıyasla %30.4, %24.5 ve %4.9 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrooksidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözünmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların elektrokoagüle edilerek ortamdan uzaklaştırılması ile açıklanabilir.

Elektrokoagülasyon prosesinin ardışık üç aşamadan oluştuğu belirtilmektedir:

- (i) Kurban elktrotun elkektrolit oksidasyonu sonucu koagülatların oluşumu
- (ii) Kirletici ve partikül halindeki süspansiyonların destabilizasyonu
- (iii) Destabilize olmuş fazın floklar oluşturmak için topaklaşması



Şekil 106. Elektrokside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine karıştırma hızı değerlerinin etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

İkinci aşamada homojen çözelti ortamı koagülantlar ve kirletici maddeler arasında temas sağlamak için oldukça önemlidir. Karıştırma hızı anot pasifliğini azaltarak anot çözünmesini artırır ve oluşan koagülantı hareket ettirerek bulk çözeltiye taşımaktadır. Ayrıca uygun bir karıştırma hızı çözeltideki kirleticileri ve koagülantları homojenize etmektedir. Uygun karıştırma hızlarında koagülantların kolloidleri adsorplaması ve destabilize olmuş yapıların çözeltide oluşan Al(OH)₃ katısı tarafından ağ şeklinde sarılarak tutulması karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm'e çıkması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimi artırmıştır. Karıştırma hızının 200 rpm'den 300 rpm değerine çıkması ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri yüksek karıştırma hızında oluşan topakların parçalanıp daha küçük yapılara dönüşmesi nedeniyle KOİ ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır.

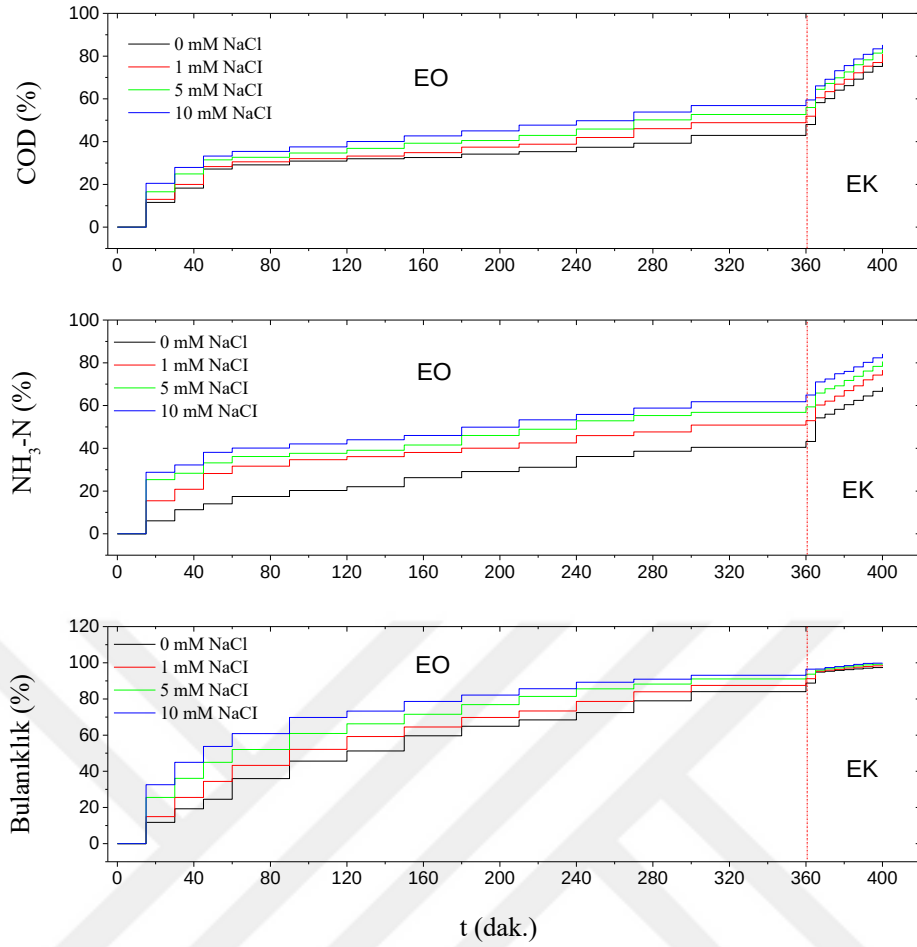
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine NaCl elektrolitinin etkisi

0, 1, 5 ve 10 mM'lık NaCl elektrolitinin elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 107'de gösterilmiştir. Deneysel

çalışmalar 25 mA/cm² akım yoğunluğu, 7.4 olan başlangıç pH'sı, 20°C'lik başlangıç sıcaklığı, karıştırma hızı 200 rpm, elektrotlar arası mesafe 1 cm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları 360 dakikalık bir reaksiyondan sonra tamamlanmış hemen akabinde 360-400 dakika arasında ise EK çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Yani EK prosesi süresi toplam 40 dakika olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 0, 1, 5 ve 10 mM'lık NaCl elektrolit konsantrasyonları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%77.5, %81.1, %83.2 ve %85.2), (%68.6, %76.6, %80.6 ve %84.2) ve (%97.7, %98.6, %99.3 ve %99.9) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimi 10 mM'lık NaCl elektrolit konsantrasyonunda elde edilip sırası ile %85.5, %84.2 ve %99.9 olarak belirlenmiştir.

Şekil 107'den görüldüğü gibi EO prosesinden sonra çıkış sularına EK prosesinin uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO'na kıyasla %35.3, %38.9 ve %6.6 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrooksidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözünmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların elektrokoagüle edilerek ortamdan uzaklaştırılması ile açıklanabilir.

Çözeltide Cl⁻ iyonu konsantrasyonu arttığı zaman anot elektrotun pasivizasyonunda azalma meydana gelip elektriği iletme yeteneği gelişmektedir. Koagülasyon işlemi sırasında Cl⁻ iyonları, Cl₂ gazı oluşturmak için anotta yükünü boşaltır ve ardından Cl₂ kimyasal olarak kirleticileri etkili bir şekilde oksitleyebilecek ClO⁻ iyonuna dönüşür. Bu nedenle çözeltide çözünmüş maddelerin oksidasyonu sonucu oluşan ara ürünler monomerlerin adsorpsiyonuna neden olmaktadır. Ayrıca Al(OH)₃ katısının stabilitesi bozulmuş kolloidleri ve oksitlenmiş ara ürünleri ağ şeklinde sararak çöktürmesine yol açmaktadır. Katotta oluşan H₂ ve Cl₂ gazları ve karıştırma ile çözelti ortamına geçen hava flotasyonu neticesinde KOİ ve bulanıklık giderim verimleri Cl⁻ iyonlarının artması ile artmıştır.



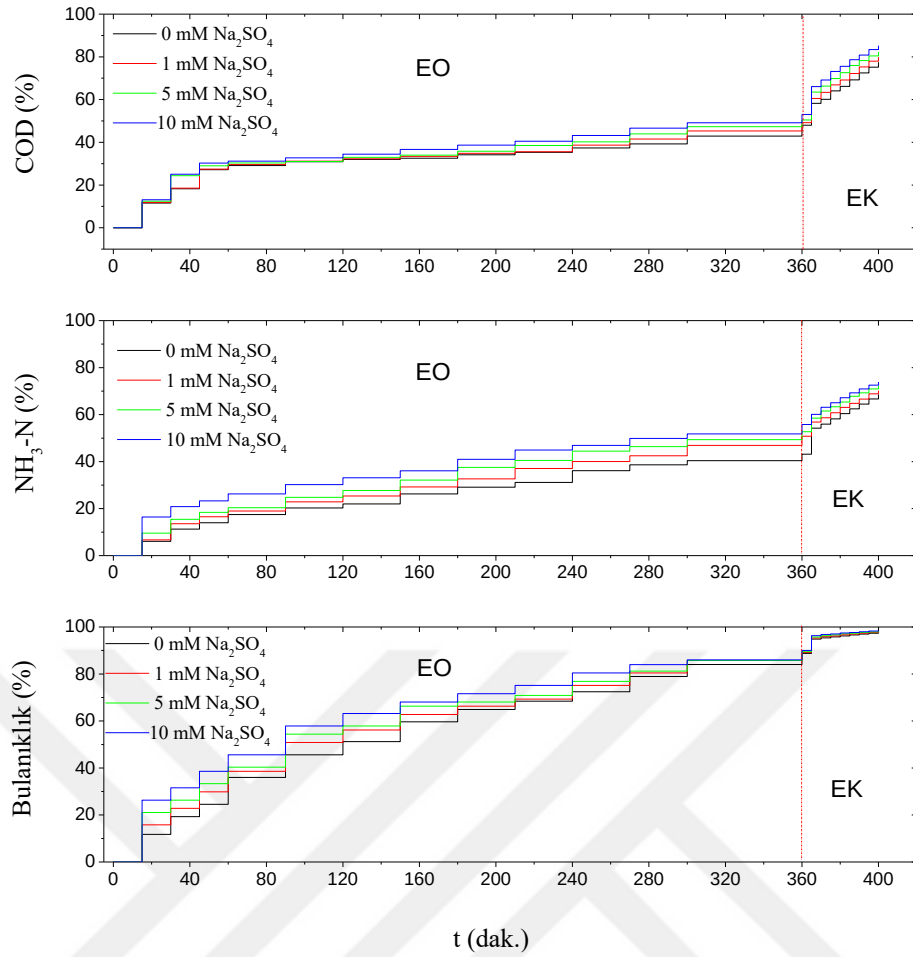
Şekil 107. Elektrookside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimlerine NaCl elektrolitinin etkisi (KOİ 1044 mg- $\text{O}_2\text{/L}$, $\text{NH}_3\text{-N}$ 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Alkali ortamda amonyak türü dominant olarak bulunmaktadır. Amonyak azota direk oksidasyonla veya elektroliz sonucu oluşan çok küçük kabarcıklar tarafından hava sıyırma prosesi ile ortamdan uzaklaştırılmıştır. Ortamda klorun bulunması indirek oksidasyon prosesi ile amonyağın parçalanmasına katkıda bulunmaktadır. İndirek mekanizma ile amonyak giderimi yüksek olarak elde edilmiştir. Anotta Cl^- iyonları reaksiyonu sonucu oluşan hipoklorit iyonu veya hipokloröz asidin oluşmasından dolayı indirek mekanizma ile amonyağın azot gazına dönüşmesinden dolayı amonyak giderim verimi artmıştır. İndirek elektrooksidasyon mekanizması ile amonyak giderme mekanizması nötral, alkali ve asidik ortamlarda farklıdır. Alkali ortamda, amonyak uzaklaştırma mekanizması adsorpsiyon/oksidasyon (doğrudan yol), klor ile oksidasyon ve hava sıyırma proseslerini içermektedir.

Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine Na₂SO₄ elektrolitinin etkisi

0, 1, 5 ve 10 mM’lık Na₂SO₄ elektrolitlerinin elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 108’de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar 25 mA/cm² akım yoğunluğu, 7.4 olan başlangıç pH’sı, 20°C’lik başlangıç sıcaklığı, karıştırma hızı 200 rpm, elektrotlar arası mesafe 1 cm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları 360 dakikalık bir reaksiyondan sonra tamamlanmış hemen akabinde 360-400 dakika arasında ise EK çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Yani EK prosesi süresi toplam 40 dakika olarak belirlenmiştir. 40 dakikalık bir reaksiyon süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm’lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 0, 1, 5 ve 10 mM’lık Na₂SO₄ elektrolit değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile (%77.5, %79.8, %82.3 ve %85.2), (%68.6, %70.2, %72.3 ve %73.9) ve (%97.7, %97.9, %98.2 ve %98.5) olarak belirlenmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimi 10 mM’lık Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunda elde edilip sırası ile %85.2, %73.9 ve %98.5 olarak belirlenmiştir.

Şekil 108’de görüldüğü gibi EO prosesinden sonra çıkış sularına EK prosesinin uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO’na kıyasla %35.3, %28.6 ve %5.2 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrooksidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözülmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların elektrokoagüle edilerek ortamdan uzaklaştırılması ile açıklanabilir.



Şekil 108. Elektrokoksde olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine Na₂SO₄ elektrolitinin etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 8.35, karıştırma hızı 300 rpm, elektrolit konsantrasyonu 0 mg/L, elektrotlar arası mesafe 1 cm)

Elektrokoksde olmuş sızıntı çıkış suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait reaksiyon kinetikleri ve reaksiyon hız sabitleri

Reaksiyon hızı birim zamanda reaksiyona giren maddenin konsantrasyonundaki değişim olarak tanımlanmaktadır. Çözelti pH'sı, sıcaklık, akım yoğunluğu, elektrotlar arası mesafe, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun fonksiyonu olarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde yüksek korelasyon katsayılarından ($R^2 > 0.95$) dolayı reaksiyon kinetikleri pseudo-ikinci merteye reaksiyon kinetiği gösterdiği belirlenmiştir. Pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetiği $V = k'[C]^2$ eşitliği ile ifade edilmektedir. Bu reaksiyonun $t = t_0$ ve $t = t$ ve $C = C_0$ ve $C = C$ değerlerinde integrali alındığında $(1/C) = (1/C_0) + k't$ lineer formuna dönüşmektedir. Burada C_0 , C , t ve k' değerleri sırası ile sızıntı suyunun mg L⁻¹ olarak başlangıçtaki KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonları, reaksiyon süresi sonunda mg L⁻¹ olarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonları, dakika cinsinden zaman ve L mg⁻¹ dak⁻¹ pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabitleridir. Reaksiyon kinetikleri

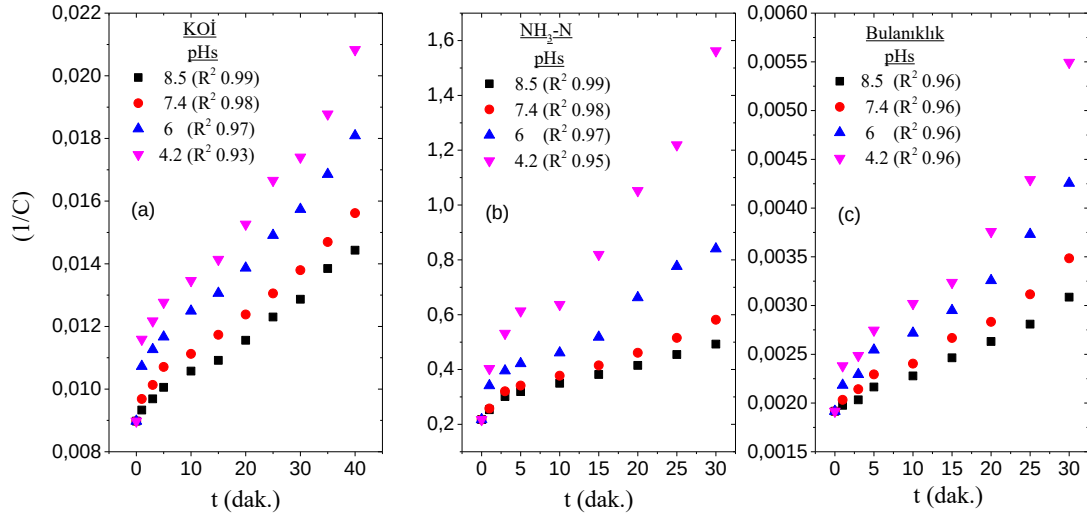
ve farklı deneysel şartlarda belirlenen pseudo-ikinci mertbe reaksiyon hız sabitlerine ait değerler sırası ile Şekil (109-115) ve Şekil (116-122)'de verilmiştir.

KOİ giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertbe hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e çıkması ile reaksiyon hız sabiti değeri artmış ve çözelti sıcaklığının 50°'den 60°C'ye yükselmesi azalmıştır. Ayrıca KOİ giderimi için pseudo-ikinci mertbe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm' çıkması ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır. Sızıntı suyundan KOİ gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri 10 mM'lık NaCl konsantrasyonu değerinde 0.0001 L mg⁻¹ dak⁻¹ olarak belirlenmiştir.

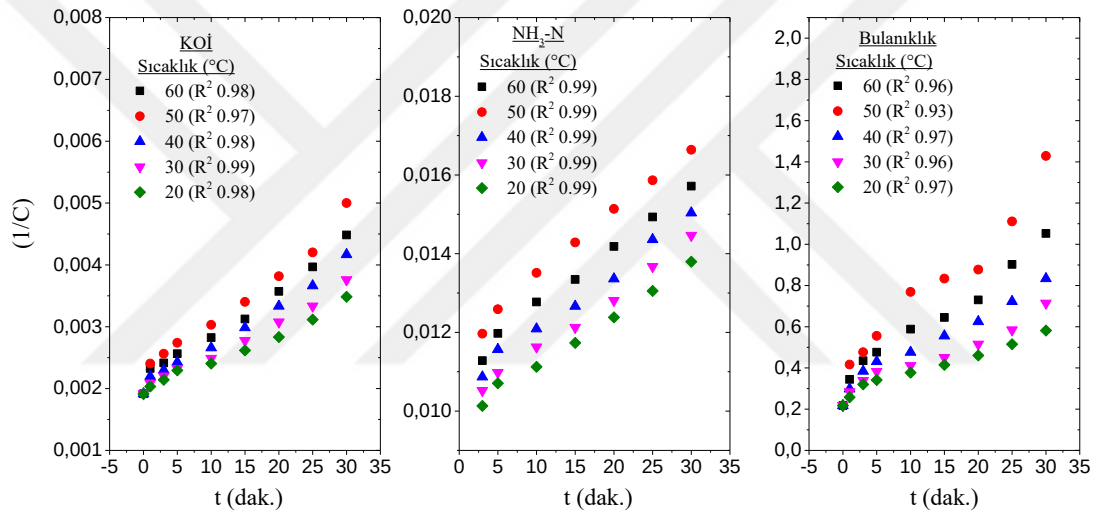
NH₃-N giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertbe hız sabitinin pH, sıcaklık, akım yoğunluğu, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ve elektrotlar arası mesafenin azalması ile artmıştır. Sızıntı suyundan NH₃-N gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri 10 mM'lık NaCl konsantrasyonu için 3.9.10⁻⁴ L mg⁻¹ dak⁻¹ olarak belirlenmiştir. Şekil (116-122)'ten de görüldüğü gibi tüm deneysel parametrelere ait seviyelerin artması ile pseudo-ikinci mertbe hız sabiti değerleri artmıştır.

Bulanıklık giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertbe hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafenin ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e yükselmesi ile hız sabiti değeri artmış ancak sıcaklık değerinin 50°'den 60°C'ye yükselmesi ile hız sabiti değeri azalmıştır. Ayrıca bulanıklık giderimi için pseudo-ikinci mertbe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm değerine yükselmesi ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır. Sızıntı suyundan bulanıklık gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri NaCl konsantrasyonunun 10 mM olduğunda 0.057 L mg⁻¹ dak⁻¹ olarak belirlenmiştir. Bulanıklık giderimine ait reaksiyon hız sabiti değerleri Şekil 116-122'den görüldüğü gibi KOİ ve NH₃-N giderim hız sabiti değerlerinden oldukça daha büyük çıkmıştır.

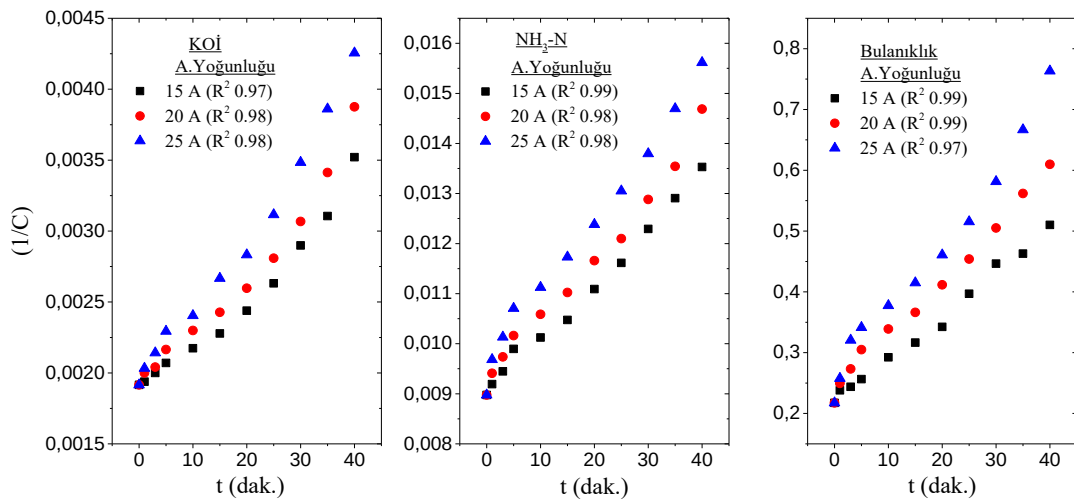
Farklı deneysel şartlarda sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine yönelik reaksiyon kinetikleri aşağıdaki gösterilmiştir.



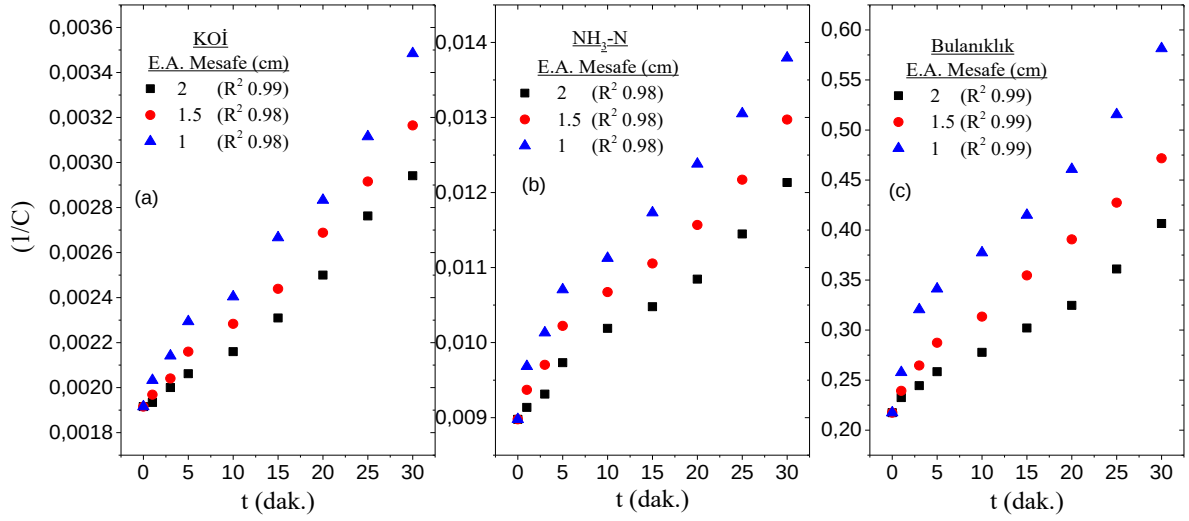
Şekil 109. Elektrooksidede olmuş çıkış suyundan EK prosesi ile farklı pH değerlerinde KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri



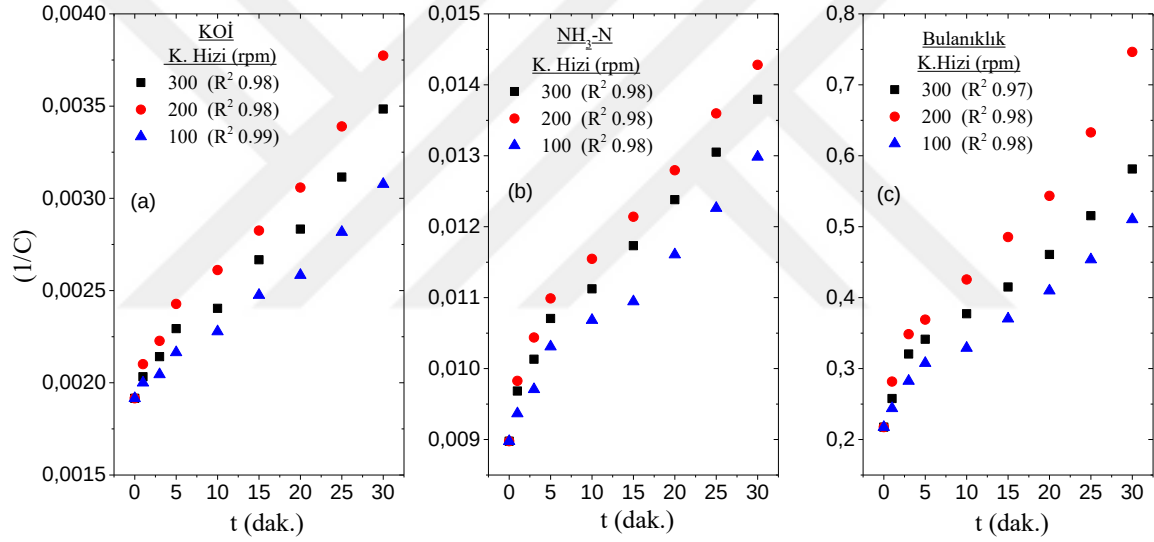
Şekil 110. Elektrooksidede olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı sıcaklık değerlerinde KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri



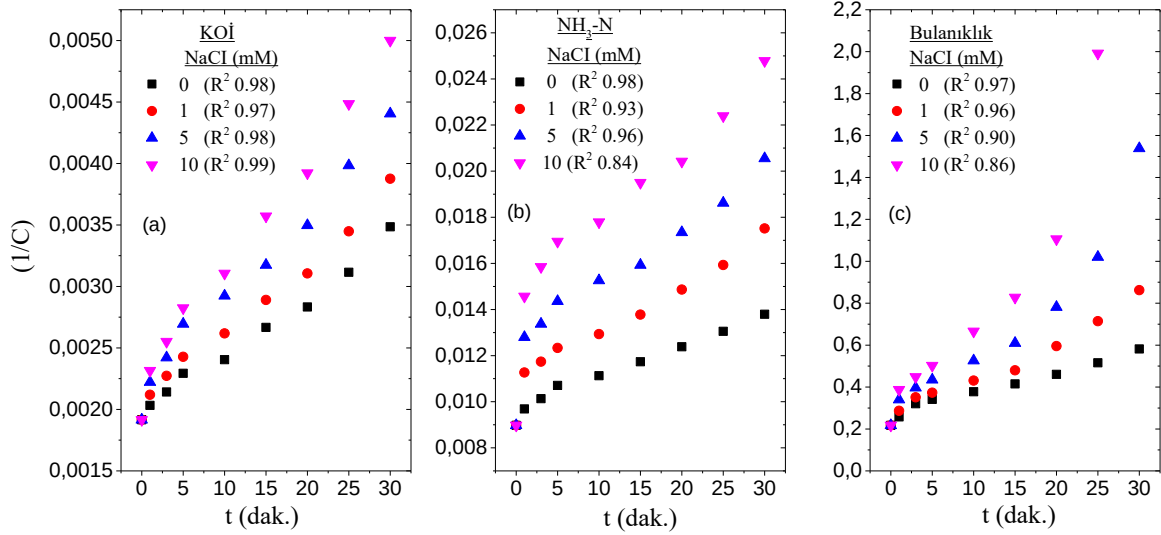
Şekil 111. Elektrooksidede olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı akım yoğunluğu değerlerinde KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri



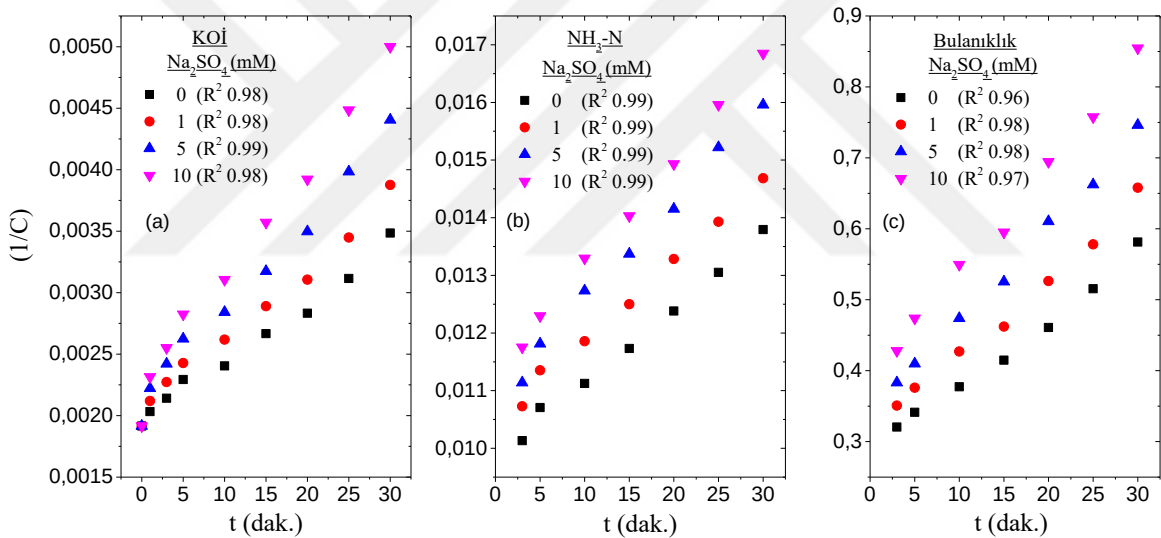
Şekil 112. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı elektrotlar arası mesafe değerlerinde KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri



Şekil 113. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı karıştırma hızı değerlerinde KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hızı kinetikleri

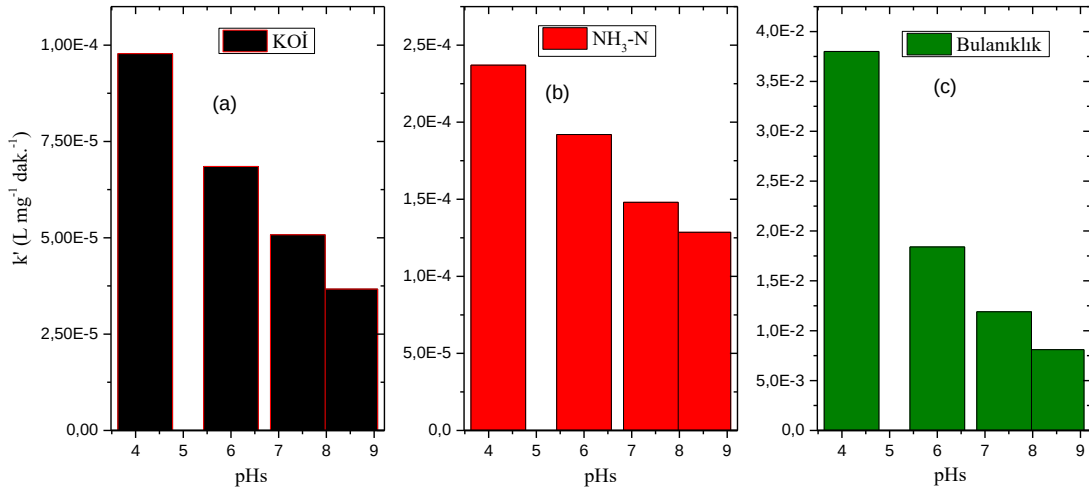


Şekil 114. Elektrooksidede olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı NaCl konsantrasyon değerlerinde KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri

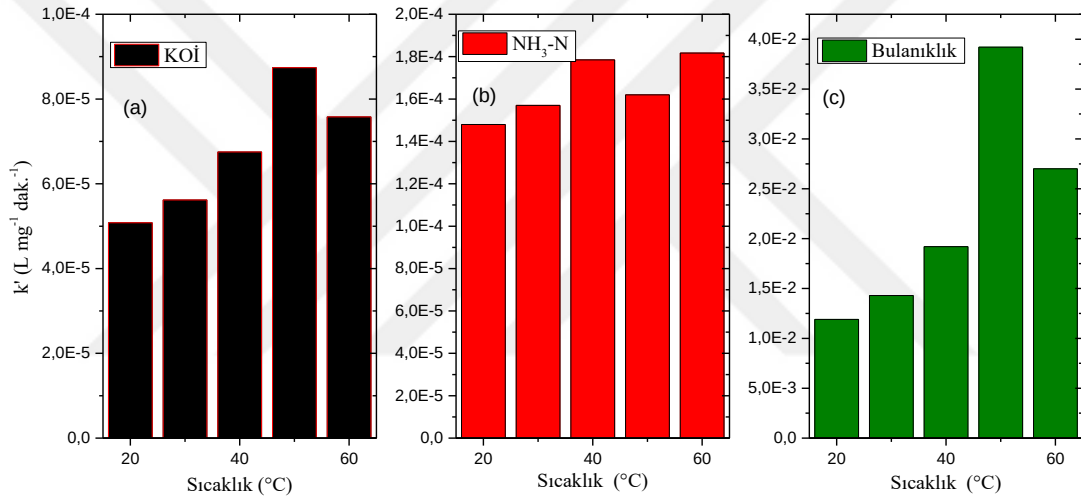


Şekil 115. Elektrooksidede olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı Na_2SO_4 konsantrasyonu değerlerinde KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız kinetikleri

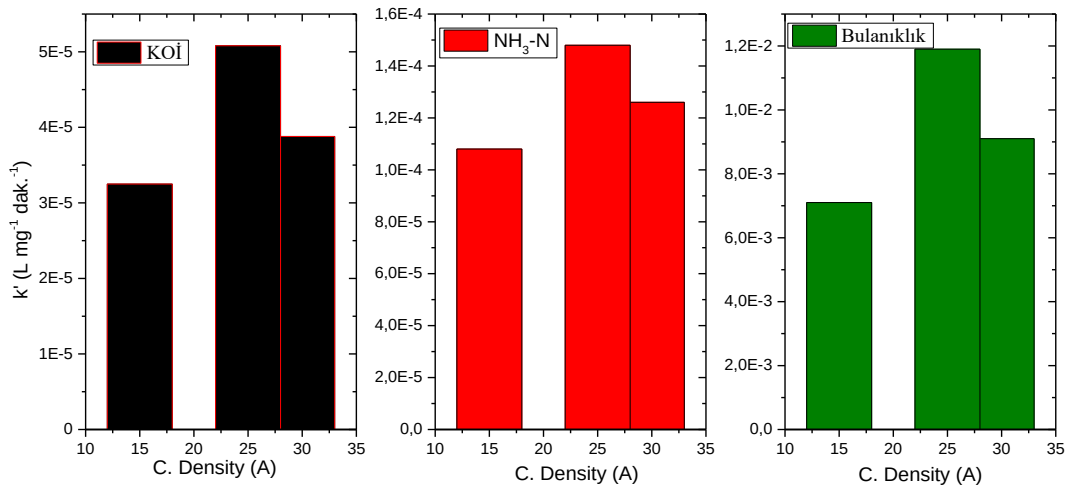
Farklı deneysel şartlarda elektro okside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine yönelik pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri Şekil (116-122)'de aşağıdaki gibi gösterilmiştir.



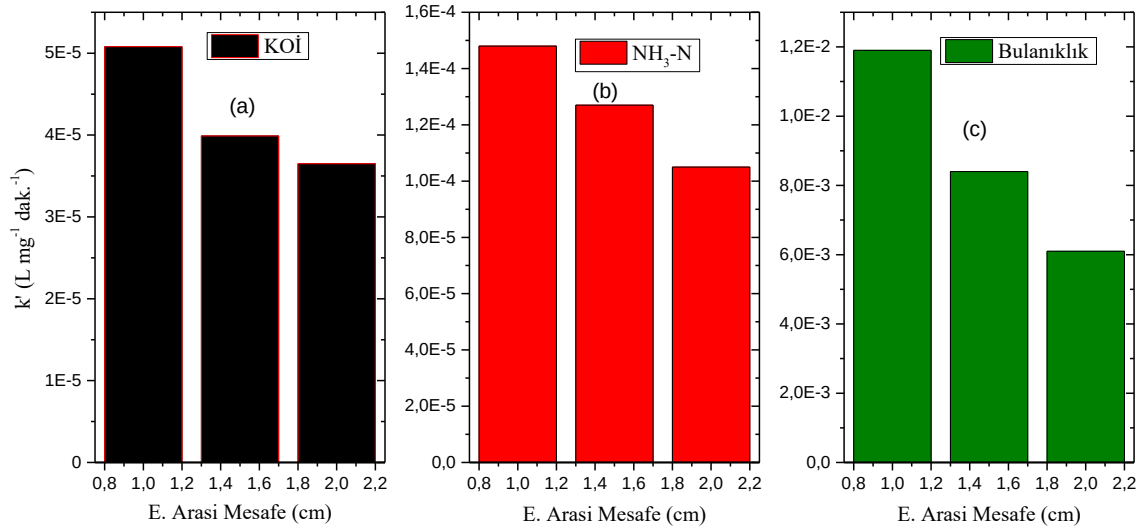
Şekil 116. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı pH değerlerinde KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



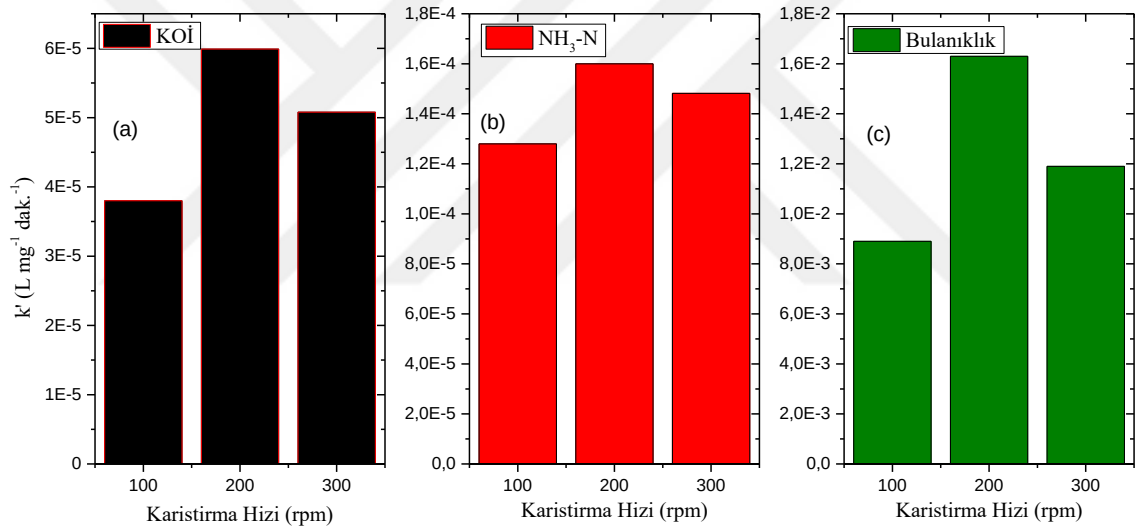
Şekil 117. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı sıcaklık değerlerinde KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



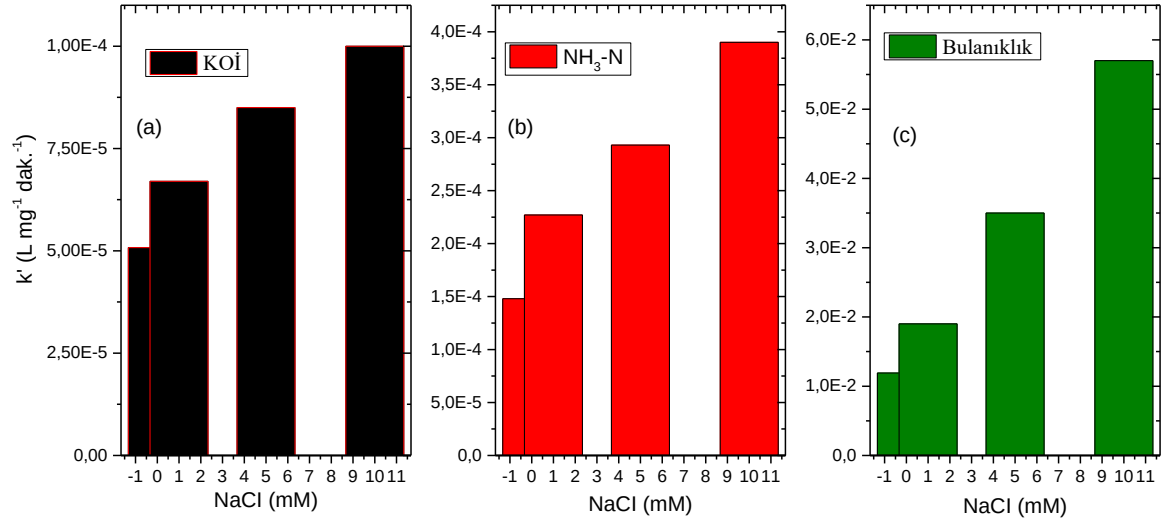
Şekil 118. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı akım yoğunluğu değerlerinde KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



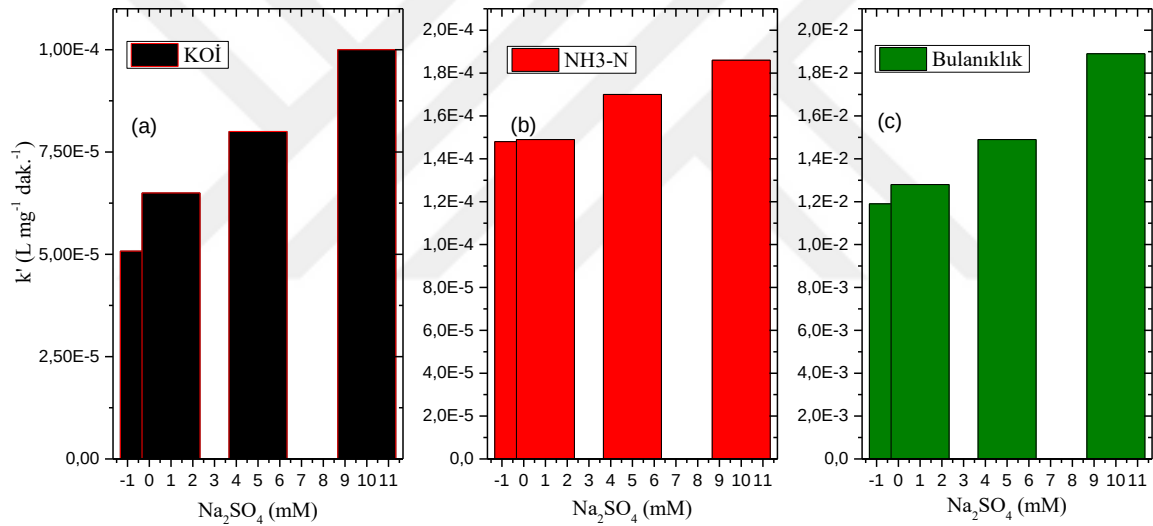
Şekil 119. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı elektrotlar arası mesafe değerlerinde KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 120. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı karıştırma hızı değerlerinde KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



Şekil 121. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı NaCl konsantrasyonu değerlerinde KOİ, NH_3-N ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri



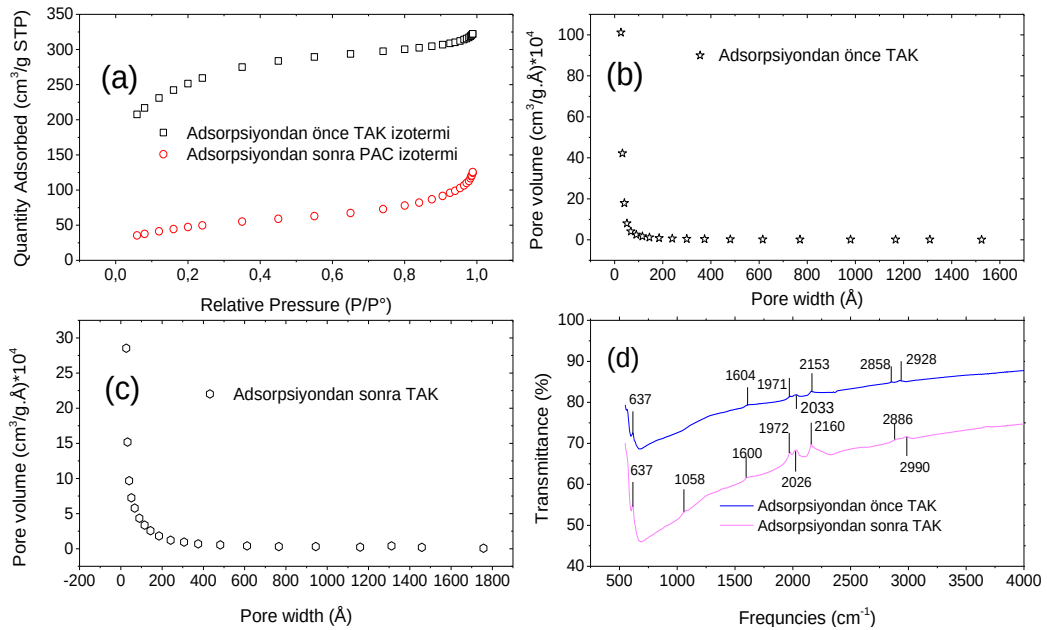
Şekil 122. Elektrookside olmuş çıkış sularından EK prosesi ile farklı Na_2SO_4 konsantrasyonu değerlerinde KOİ, NH_3-N ve bulanıklık giderimlerine ait pseudo-ikinci merteye reaksiyon hız sabiti değerleri

Ti/PdO-CoO Anot ile Elektro Okside Olmuş Sızıntı Çıkış Suyundan TAK Adsorpsiyonu Prosesi ile KOİ, NH_3-N ve Bulanıklık Giderimi

TAK partiküllerinin BET yüzey alanı, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM-EDX görüntüleri

TAK partiküllerinin elektro okside olmuş sızıntı çıkış suyundan önce ve sonra adsorpsiyon izotermelerini gösteren eğriler Şekil 123 (a) gösterilmiştir. Şekil 123 (a) incelendiğinde rölatif (bağıl) basıncın artması ile adsorplanan gaz hacmi artmış ve rölatif basınç değeri 0.99 olduğu zaman adsorplanan gaz hacmi maksimum değere ulaşmıştır. Rölatif basınç ekseninin sağına doğru gittikçe adsorplanan N_2 gazı hacminin basıncın veya konsantrasyondaki

artış miktarının bir fonksiyonu olarak nasıl değiştiği görülmektedir. Daha sonra rölatif basıncın 1'e yaklaşmasından dolayı gaz basıncı ne kadar artırılırsa artırılсын adsorplanan gaz hacmi değişmeyip sabit kalmıştır. Şekil 123 (a) TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önceki izoterm eğrisi Tip I adsorpsiyon izoterminde uymuştur. Tip I izoterminde adsorpsiyon çoğunlukla mikroporlarda kemisorpsiyon olarak meydana gelmiştir. Bu durumda adsorplanan madde adsorbentteki mikroporların ve çok az sayıda mezoporların yüzeyine güçlü bir şekilde bağlanıp adsorbent yüzeyinde adsorbatı barındıracak mikroporlar kalmadığından adsorpsiyon mezoporlarda meydana gelmiştir (Z. Chen *et al.* 2021; Koyuncu & Kul, 2020; F. Liu *et al.* 2021). TAK partikülleri ile Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderildikten sonra kirleticilerle tükenmiş TAK partiküllerinin adsorpsiyon izoterminin Şekil 123 (a)'da verilmiştir. Bu şekil incelendiğinde rölatif basınç değerinin artması ile adsorplanan gaz hacmi artmış ancak adsorpsiyondan sonra adsorbent yüzeyindeki adsorplanan gaz hacmi oldukça azalmıştır. Şekil 123 (a) incelendiğinde TAK partiküllerinin adsorpsiyondan sonraki adsorpsiyon izoterminin Tip II adsorpsiyona uyduğu belirlenmiştir (Gong *et al.* 2022; Koyuncu & Kul, 2020; D. Liu *et al.* 2021). Bu tür adsorpsiyonda adsorpsiyon eğrisi sigmoidal olup oluşacak izoterm eğrileri hem gözeneksiz hem de makro gözenekli adsorbentlerde fiziksel soğurma şeklinde meydana gelmektedir. Adsorpsiyon prosesinden sonra kirletici parametrelerin TAK partikülleri yüzeyine adsorplandıktan sonra adsorbentte mikroporların tamamen ve mezaporların kısmen tükendiği Şekil 123 (b, c)'den görülmektedir. Arta kalan mezoporlar ve makroporlarda ise por genişliğinden dolayı Şekil 123 (b, c)'de görüldüğü gibi gaz adsorpsiyonu gerçekleşmemiştir.



Şekil 123. 373 K sıcaklığında adsorpsiyondan önce ve sonra TAK partiküllerine ait N₂ adsorption izotermi (a), adsorbent por boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (b, c) ve TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra FTIR spektrumları

Tip I izotermi adsorbent tarafından adsorbe edilen partiküllerinin adsorbent maddenin yüzeyinde tek bir tabaka oluşturduğu anlamına gelmektedir. Tek tabaka adsorbatlar tarafından soğurulduktan sonra diğer partikül maddeler önceki partiküllerin yüzeyine tutunur ve bu durum çoklu katmanların oluşmasına neden olur. Şekil 123 (a) incelendiğinde, TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderildikten sonra adsorpsiyonun devam edebilmesi için tükenmiş TAK yüzeyinde her hangi bir mikropor kalmamıştır.

TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra partiküllerin yüzey alanı ve por hacimlerini belirlemek için Brunauer-Emmett-Teller (BET) yüzey alanı analizleri gerçekleştirilmiştir. Adsorpsiyondan önce ve sonra TAK partiküllerinin BET yüzey alanı ve por hacmi sırasıyla (887 m² g⁻¹ ve 0.494 cm³ g⁻¹) ve (0.76 m² g⁻¹ ve 0.00065 cm³ g⁻¹) olarak belirlenmiştir. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra ortalama por çapı ise sırasıyla 2.2 ve 6.4 nm olarak hesaplanmıştır. Adsorpsiyondan sonra partiküllerin yüzey alanı ve hacimlerinde meydana gelen azalma ve ortalama por çapındaki artış KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin adsorpsiyonla uzaklaştırıldığını göstermektedir.

Kesikli adsorpsiyon çalışmalarında kullanılan TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra por boyutu dağılımlarını belirlemek için Barrett, Joyner and Halenda (BJH) yöntemi uygulanıp Şekil 123 (b, c)'de gösterilmiştir. Şekil 123 (b, c), TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonraki por çapları ile partiküllerin gram başına cm³ olarak hacimleri arasındaki ilişkiyi göstermektedir. Şekil 123(b) incelendiğinde adsorpsiyondan önce TAK partiküllerinin por çapları 26-1524 Å arasında değiştiği görülmektedir. Şekil 123 (b) incelendiğinde gram başına en yüksek hacme sahip partikül boyutları ile por hacimleri sırası ile (26 Å, 101.1.10⁻³ cm³), (32.6 Å, 42.2.10⁻³ mm³) ve (40 Å, 17.9. 10⁻³ cm³) dir. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önceki ortalama por çapı 22.3 Å olarak belirlenmiştir. TAK partikülleri ile elektro okside edilmiş çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin bir kısmı adsorpsiyonla uzaklaştırıldıktan sonra partiküllerin gram başına cm³ olarak hacimleri arasındaki ilişki Şekil 123 (c) 'verilmiştir. Adsorpsiyondan sonra partiküllerin por çapı ile gram başına sahip oldukları hacimleri sırası ile (40-1823 Å) ve (0.0193-0.0027)*10⁻⁴ (cm³/g Å) olarak belirlenmiştir. Adsorpsiyondan sonra TAK partiküllerinin ortalama çapı 64 Å olarak belirlenmiştir. TAK partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra mikroporların tamamı ve mezoporların bir kısmı kaybolmuş ve adsorpsiyondan sonra por çapı artmıştır. Bu durum kirleticilerin sızıntı suyundan uzaklaştırıldığı anlamına gelmektedir.

Bu çalışmada TAK partikülleri ile elektro okside edilmiş çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde adsorpsiyona katılan aktif grupları belirlemek için FTIR

spektrumları adsorpsiyondan önce ve sonra analiz edilmiştir. 500-4000 cm^{-1} dalga boyu aralığında TAK partiküllerine ait FTIR spektrumları Şekil 123 (d)'de gösterilmiştir.

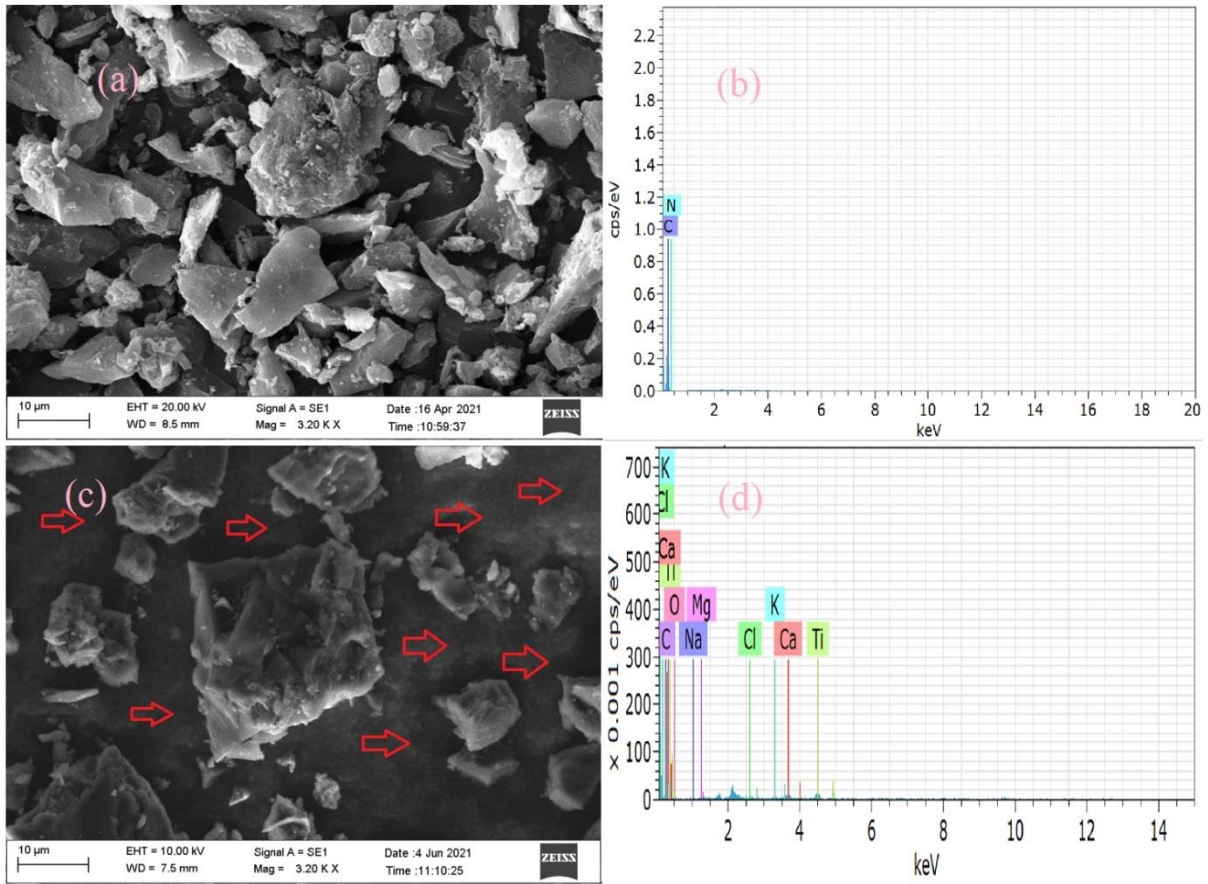
Şekil 123 (d)'de fonksiyonel gruplara ait titreşim grupları şu şekilde belirlenmiştir; 637 cm^{-1} deki bantta $\text{RHC}=\text{CH}_2$ vinil yapısında CH_2 salınımı, 1604 cm^{-1} deki bantta imin titreşim grubunda konjüge halkalı yapılarda $\text{C}=\text{N}$ gerilmesi, 1971 cm^{-1} frekansında, $>\text{C}=\text{C}=\text{C}<$ allen titreşim grubunda elektron çeken gruplara bağlı faz dışı gerilme titreşimi, 2033 cm^{-1} frekansında titreşen $\text{R}_1\text{R}_2\text{C}=\text{N}=\text{N}$ (R alkil ya da hidrojen grubu) grubu diazo bileşikler olup faz dışı gerilme, 2153 cm^{-1} frekansında titreşen grup ketenler $>\text{C}=\text{C}=\text{O}$ olup faz dışı gerilme, 2850 cm^{-1} frekansında aril bileşiklerinde titreşen grup $-\text{CH}_3$ ve 2928 cm^{-1} frekansında titreşen grup $-\text{CH}_2-$ olarak belirlenmiştir (Colthup, 2012).

Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan KOİ , NH_3 ve bulanıklık gideriminden sonra adsorbent yüzeyinde adsorpsiyondan önce bulunan titreşim yapan grupların geçirimsizlik yüzde değerleri azalmış ve bazı titreşim yapan gruplarda ise farklı frekanslara yönelik kaymalar gözlemlenmiş ve yeni pikler oluşmuştur Şekil 123 (d).

Adsorpsiyondan sonra adsorbentin FTIR spektrumundaki değişimler şu şekilde belirlenmiştir; adsorpsiyondan sonra 637 cm^{-1} ($\text{RHC}=\text{CH}_2$) vinil yapısında CH_2 salınımı, 1058 cm^{-1} (birincil alifatik alkoller $\text{C}-\text{C}-\text{O}$) frekansında faz dışı gerilme, 1600 cm^{-1} frekansında alifatik titreşim grubunda ($\text{R}-\text{CR}_2-\text{NH}_2$) NH_2 gerilmesi, 1972 cm^{-1} frekansında allenil titreşim grubunda ($>\text{C}=\text{C}=\text{C}<$) çift bağ gerilmesi, 2026 cm^{-1} frekans değerinde keten imiller titreşim grubunda ($>\text{C}=\text{C}=\text{N}-$) $\text{Y}_2\text{C}=\text{C}=\text{N}$ gerilmesi (Y alkil veya aril grubu gerilmesi), 2160 cm^{-1} frekans değerinde izosiyanatlar ($-\text{N}=\text{C}=\text{S}$) titreşim grubunda faz dışı gerilme, 2886 cm^{-1} frekans değerinde siklo hekzan titreşim grubu gerilmesi ve 2990 cm^{-1} frekans değerinde ise 1,1-Dialkil $\text{R}_2\text{C}=\text{CH}_2$ titreşim grubu gerilmesi meydana gelip yeni pikler oluşmuştur. Şekil 123 (d)'den görüldüğü gibi adsorpsiyondan sonra bazı piklerin geçirimsizliklerinde önemli ölçüde bir azalma bazı yeni piklerin oluşumu ve bazı piklerin diğer piklere kaymaları KOİ , NH_3 ve bulanıklığa neden olan çözünmüş organik maddelerin ve negatif yüklü kolloidlerin adsorbent yüzeyinde adsorplandığını göstermektedir.

TAK'ın morfolojik yapısını incelemek amacı ile SEM analizi gerçekleştirilmiştir. TAK'nin adsorpsiyondan önce ve sonra elde edilen görüntüleri Şekil 124 (a, c)'de gösterilmiştir. Sızıntı suyunda KOİ , NH_3-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin gideriminden önce TAK partiküllerinin fiziksel morfolojisi aglomera olmuş partiküllerden oluştuğu ve bu partiküller üzerinde sırası ile makro, mezo ve mikro partiküllerin bulunduğu yapılan por boyutu analizlerinden bilinmektedir. TAK partiküllerinin yüzeyinde çatlakların, yarıkların, büyük ve küçük deliklerin bulunduğu Şekil 124 (a)'dan görülmektedir. Şekil 124

(a), TAK partiküllerinin yüzey yapısının heterojen, amorf bir yapı ve değişik por çaplarına sahip olduğunu göstermektedir. Adsorpsiyon, mikroporlarda büyük düzeyde mezoporlarda ise oldukça düşük düzeyde gerçekleşmiştir. Dolayısı ile TAK partiküllerinin yüzeyinde bulunan makroporların kirletici parametrelerin mezo ve mikroporlara taşınmasında geçiş görevi sağladığı anlaşılmaktadır. Adsorpsiyondan sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan çözünmüş organik maddelerin TAK yüzeyinde adsorplanmasından sonra TAK yüzeyinin bu kirleticiler tarafından bir örtü şeklinde kaplandıktan sonra mikroporların tamamen kaybolduğu ve mezoporların ise kısmen kaybolduğunu yapılan por boyutu analizleri desteklemiştir.



Şekil 124. TAK partiküllerinin adsorpsiyondan önce (a, b) ve adsorpsiyondan sonra (c, d) SEM-EDX görüntüleri

Elektro okside olmuş sızıntı çıkış suyunun adsorpsiyon prosesinden önce ve sonra TAK partiküllerinin yapısında hangi elementlerin bulunduğunu belirlemek ve adsorpsiyon prosesini aydınlatmak amacı ile partiküllerin EDX analizleri yapılmış ve Şekil 124 (b, d)'de gösterilmiştir. TAK partikülleri adsorpsiyondan önce ağırlıkça %100 C ve %0 oranında N atomu içerdiği belirlenmiştir. Adsorpsiyon prosesinden sonra TAK partikülleri ağırlıkça %10.92 C, %4.6 O, %2.76 Ti, %1.32 Ca, %0.4 Cl, %0.37 Na, %0.31K ve %0.29 Mg atomu içerdiği belirlenmiştir. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyunun TAK ile adsorpsiyonundan sonra TAK partiküllerinin bileşiminde meydana gelen azalma ve TAK partiküllerinin bileşiminde

meydana gelen deęişim sızıntı suyunda bulunan kirletici maddelerin TAK partikülleri yüzeyinde adsorplanarak uzaklaştırıldığını göstermektedir.

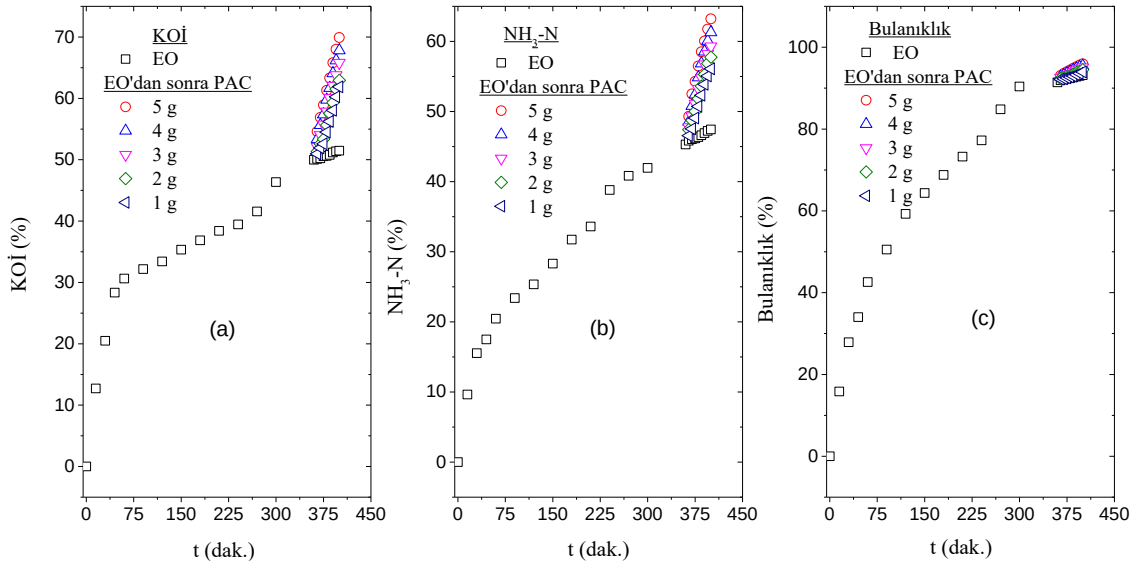
Ti/PdO-CoO anot ile elektrookside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine adsorbent miktarının etkisi

Başlangıç KOİ, NH₃-N ve bulanıklık deęerleri sırası ile 1044 mg O₂/L, 204 mg/L ve 57 NTU olan sızıntı suyu yeni üretilen Ti/PdO-CoO anot ve çelik katot ile 400 dakika boyunca elektro oksidasyona tabi tutuldu. Deneysel çalışmalar 25 mA/cm² akım yoğunluğu, 300 rpm karıştırma hızı, 1 cm elektrot mesafesi, 20°C çözelti sıcaklığı ve başlangıç pH deęeri 8.35 olan deneysel şartlarda gerçekleştirildi. 400 dakikalık bir elektrooksidasyon süresi sonunda elektro okside olmuş çıkış suları 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlendi. 360 ve 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda geriye kalan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonları ve giderim verimleri sırası ile [(522.2 mg O₂/L, 111.6 mg/L ve 4.9 NTU) ve (%49.9, % 45.3 ve %91.4)] ve [(506.6 mg O₂/L, 107.2 mg/L ve 3.9 NTU) ve (%51.5, % 47.4 ve %93.1)] olarak belirlendi. 360 dakikalık bir elektrooksidasyon prosesinden sonra mineralize ve polarize olmuş çözünmüş organik maddeler ve destabilize olmuş geriye kalan kolloidal maddeleri içeren çıkış suyu 40 dakikalık bir TAK adsorpsiyon prosesine tabi tutuldu. EO olmuş çıkış sızıntı suyuna TAK adsorpsiyon prosesinin uygulanmasının temel amacı çıkış suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin TAK adsorpsiyonu prosesi ile daha fazla artırılıp artırılmayacağını belirlemektir. Bu amaçla EO'dan sonra çıkış sızıntı suyuna farklı deneysel şartlarda TAK adsorpsiyonu prosesi uygulanarak elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri yalnızca EO prosesi ile kıyaslanarak deęerlendirilmiştir. 360 dakikalık bir oksidasyon süresinden hemen sonra okside olmuş çıkış sızıntı suyu 40 dakikalık bir adsorpsiyon prosesine tabi tutulmuştur. Adsorpsiyon prosesinde beşer (5'er) dakikalık örnekler alınarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Deneysel çalışmalar sonucu elde edilen grafikler 400. dakikaya kadar EO ile ilgili KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerini 360. dakikadan sonra ise adsorpsiyonla KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerini göstermektedir. EO'olmuş sızıntı suyundan adsorpsiyonla KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 360. dakikadan itibaren başlayıp 400 dakikanın bitiminde adsorpsiyon çalışmaları sonlandırılmıştır. Yani adsorpsiyon çalışmalarında 40 dakikalık bir adsorpsiyon süresi sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Daha sonra 400. dakika sonucu sıralı prosesle elde edilen giderim verimleri EO ile elde edilen giderim verimleri ile mukayese edilmiştir. Böylece ardışık prosesle (EO-TAK adsorpsiyonu) sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artırılması amaçlanmıştır.

1, 2, 3, 4, 5 g/L'lik adsorbent miktarlarının elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 125'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar pH 7.4 (elektro okside olmuş çıkış suyunun başlangıç pH değeri), başlangıç sıcaklığı 20°C, elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyuna 360 dakika sonunda 40 dakikalık bir süre TAK adsorpsiyonu uygulanmıştır. Yani elektro okside olmuş çıkış sızıntı suları ardışık prosesle (EO/TAK) toplam 400 dakika arıtıma tabi tutulmuştur. Daha sonra ardışık prosesle çıkış suyundan elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO ile elde edilen verimlerle karşılaştırılmıştır. 40 dakikalık bir TAK adsorpsiyonu süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 7.4, T 20°C ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dakika olan deneysel şartlarda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyonla 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %51.5, %47.4 ve %93.2 olarak belirlenmiştir.

1, 2, 3, 4, 5 g/L'lik adsorbent miktarları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ise sırası ile (%61.9, 662.9, %65.8, %69.9, %67.8 ve %69.9), (%56.1, %57.7, %59.3, %61.3 ve %63.2) ve (%93.9, %94.5, %95.1, %95.5 ve %95.9) olarak belirlenmiştir. TAK adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 5 g/L'lik adsorbent miktarı için sırası ile %69.9, %63.2 ve %95.9 olarak belirlenmiştir. Şekil 125'ten görüldüğü gibi adsorbent miktarının artması ile çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.

Şekil 125'ten görüldüğü gibi EO prosesinden sonra TAK adsorpsiyonunun çıkış sızıntı suyuna uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO'na kıyasla %18.4, %15.8 ve %2.7 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrooksidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözülmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların TAK partikülleri yüzeyinde bulunan aktif bölgelere tutunarak çıkış sızıntı suyundan uzaklaştırılması ile açıklanabilir.



Şekil 125. Elektrookside olmuş düzenli deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine adsorbent miktarının etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 7.4 ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 40 dak.)

Adsorpsiyon prosesinde TAK miktarının artması partiküllerin yüzey alanı ve aktif sit bölgelerinin önemli düzeyde artışına neden olduğu düşünülmektedir. Böylece çıkış sızıntı suyunda bulunan çözünmüş maddeler, kolloidal yapılar ve moleküler halde bulunan NH₃-N'nun TAK yüzeyinde bulunan aktif bölgelere elektrostatik ve kimyasal bağlarla adsorplanarak zamanla giderim verimleri artmıştır (Deng *et al.* 2018; Reynier *et al.* 2015).

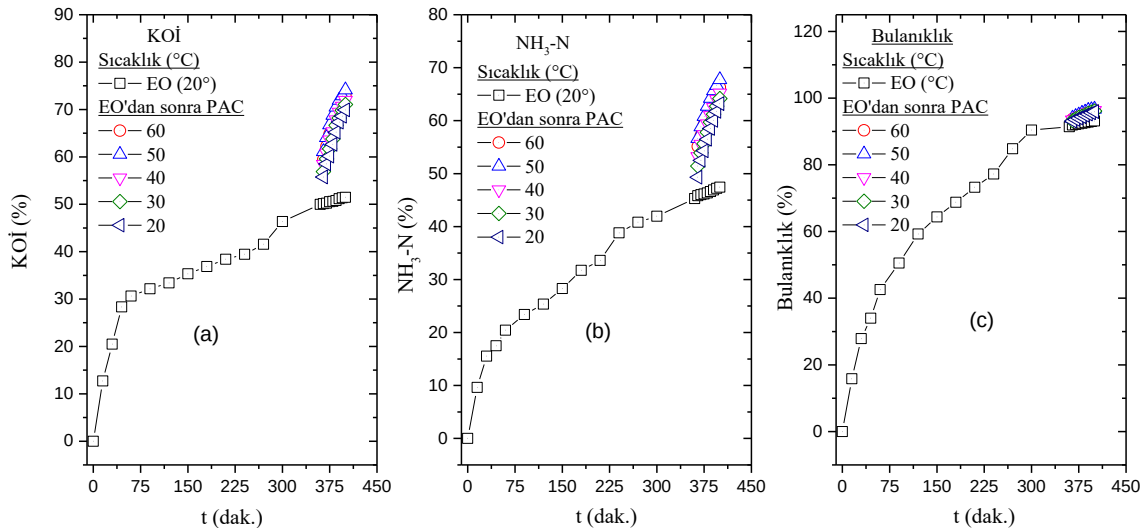
Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklığının etkisi

20, 30, 40, 50, 60°C başlangıç sıcaklık değerlerinin elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 126'da gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar pH 7.4 (elektro okside olmuş çıkış suyunun başlangıç pH değeri), adsorbent miktarı 5 g/L, karıştırma hızı 300 rpm olan çözelti ortamında gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları ile TAK adsorpsiyonu çalışmalarını mukayese edebilmek için elektrooksidasyon çalışmaları 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda tamamlanmıştır. 400 dakika sonunda elektrookside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektrookside olmuş çıkış sızıntı suyuna 360 dakika sonunda 40 dakikalık bir süre TAK adsorpsiyonu uygulanmıştır. Yani elektro okside olmuş çıkış sızıntı suları ardışık prosesle (EO/TAK) toplam 400 dakikalık bir arıtıma tabi tutulmuştur. Daha sonra ardışık prosesle çıkış suyundan elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO ile elde edilen verimlerle karşılaştırılmıştır. 40 dakikalık bir TAK adsorpsiyonu süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık

giderim verimleri belirlenmiştir. Elektrokoksiasyon çalışmaları akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 7.4, T 20°C ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dakika olan deneysel şartlarda gerçekleştirilmiştir. Elektrokoksiasyonla 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %51.5, %47.4 ve %93.2 olarak belirlenmiştir.

20, 30, 40, 50, 60°C başlangıç sıcaklık değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ise sırası ile (%69.9, %71.1, %71.9, %74.2 ve %72.9), (%63.2, %64.2, %65.2, %67.7 ve %66.3) ve (%95.9, %96.1, %96.3, %96.6 ve %96.4) olarak belirlenmiştir. TAK adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 50°C değeri için sırası ile %74.2, %67.7 ve %96.6 olarak belirlenmiştir. Şekil 126'dan görüldüğü gibi başlangıç sıcaklık değerinin 20°C'den 50°C değerine çıkması ile çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmış ancak sıcaklık değerinin 50°C'den 60°C'e çıkması ile giderim verimlerinde kısmen bir azalma meydana gelmiştir. Bu azalmaya yüksek sıcaklıklarda TAK partikülleri yüzeyine adsorplanmış kirletici maddelerin bir kısmının desorbe olarak çözelti ortamına transfer olmasının neden olduğu söylenebilir.

Şekil 126'dan görüldüğü gibi EO prosesinden sonra TAK adsorpsiyonunun çıkış sızıntı suyuna uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO'na kıyasla %22.7, %20.3 ve %3.4 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrokoksiasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözünmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların TAK partikülleri yüzeyinde bulunan aktif bölgelere adsorbe olmalarının neden olduğu söylenebilir.



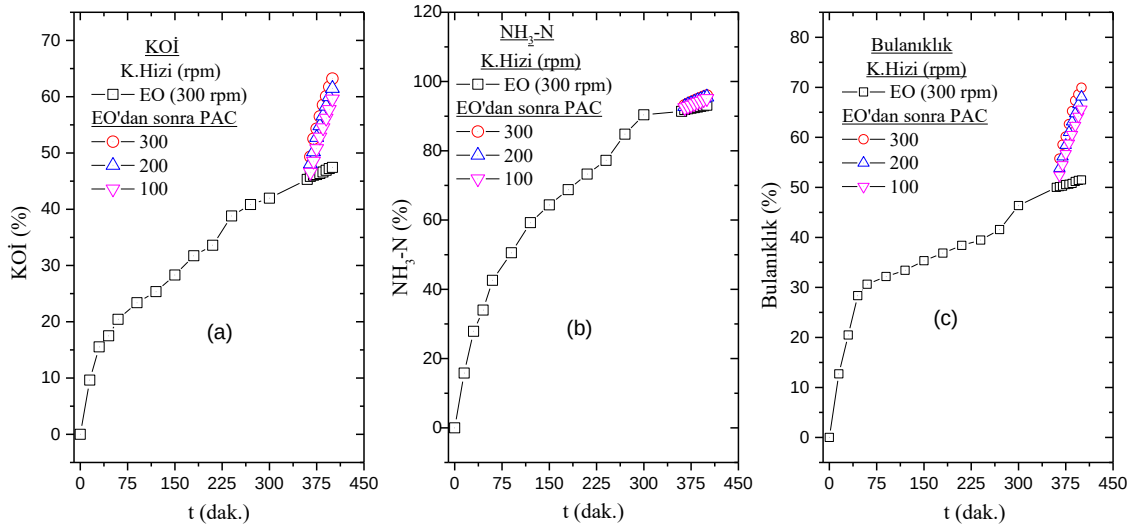
Şekil 126. Elektrokoksiasyon olmuş düzenli deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç sıcaklığının etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, adsorbent miktarı 5 g/L, pH 7.4 ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 40 dak.)

KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde ki bu artış, adsorpsiyon prosesinin endotermik yapısını göstermektedir. Bu artış, yüzeyde mevcut olan aktif bağlanma bölgelerinde ki bir artıştan veya adsorbenti çevreleyen sınır tabakanın kalınlığında meydana gelen azalmadan kaynaklandığı söylenebilir (Meena *et al.* 2008). Çözelti sıcaklığının artması sonucu KOİ ve bulanıklığa neden olan çözünmüş maddelerin kinetik enerjilerinin artmasından dolayı bu maddelerin TAK gözenekleri içerisinde gerçekleşen taşınımalarını artmıştır (Kaur *et al.* 2016).

Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi

100, 200 ve 300 rpm'lık karıştırma hızlarının elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 127'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar pH 7.4 (elektro okside olmuş çıkış suyunun başlangıç pH değeri), adsorbent miktarı 5 g/L, T 20°C olan ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları ile TAK adsorpsiyonu çalışmalarını mukayese edebilmek için elektrooksidasyon çalışmaları 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda tamamlanmıştır. 400 dakika sonunda elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyuna 360 dakika sonunda 40 dakika bir sürelik TAK adsorpsiyonu uygulanmıştır. Yani elektro okside olmuş çıkış sızıntı suları ardışık prosesle (EO/TAK) toplam 400 dakika arıtıma tabi tutulmuştur. Daha sonra ardışık prosesle çıkış suyundan elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO ile elde edilen verimlerle karşılaştırılmıştır. 40 dakikalık bir TAK adsorpsiyonu süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 7.4, T 20°C ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dakika olan deneysel şartlarda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyonla 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %51.5, %47.4 ve %93.2 olarak belirlenmiştir.

100, 200 ve 300 rpm'lık karıştırma hızı değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ise sırası ile (%65.6, %68.1 ve %69.9), (%59.6, %61.5 ve %63.2) ve (%95.1, %95.5 ve %95.7) olarak belirlenmiştir. TAK adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 300 rpm değeri için sırası ile %69.9, %63.2 ve %95.7 olarak belirlenmiştir. Şekil 127'den görüldüğü gibi başlangıç sıcaklık değerinin 100 rpm'den 300 rpm değerine çıkması ile çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.



Şekil 127. Elektrokoksde olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine karıştırma hızının etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, adsorbent miktarı 5 g/L, pH 7.4 ve T 20°C ve reaksiyon süresi 400 dak.)

Şekil 127’de görüldüğü gibi EO prosesinden sonra TAK adsorpsiyonunun çıkış sızıntı suyuna uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO’na kıyasla %18.4, %15.8 ve %2.5 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrokoksasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözünmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların TAK partikülleri yüzeyinde bulunan aktif bölgelere tutunarak çıkış sızıntı suyundan uzaklaşmasının neden olduğu söylenebilir.

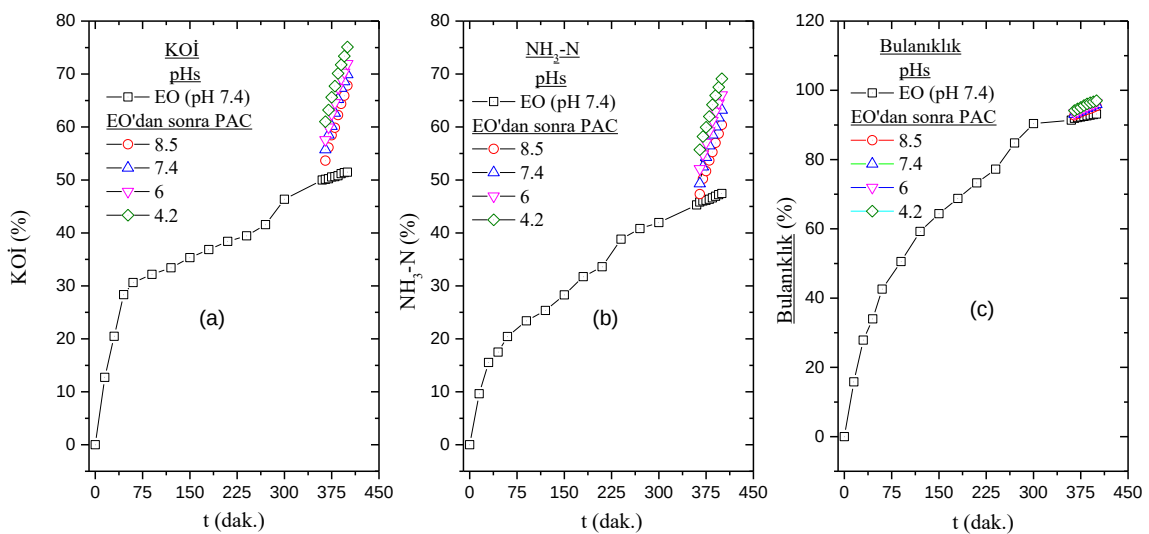
Karıştırma hızının artması ile adsorpsiyonla KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki artış TAK partiküllerinin ve çözelti içerisinde bulunan kolloidal ve kirletici maddelerin zamanla çözeltide homojen dağılımını teşvik ederek adsorpsiyon süresince kirletici konsantrasyonlarının homojen kalmasına yardımcı olmuştur. Ayrıca, karıştırma hızı, sınır tabakası kalınlığını azaltıp dış film transfer katsayısını artırmaktadır. Yüksek karıştırma hızlarında daha hızlı hareket eden TAK partikülleri ve kirletici maddeler birbirleri ile daha çok temas ederek çarpışma olasılıkları artmıştır (Sohbi Bellebia *et al.* 2012). Bu durum TAK partikülleri tarafından adsorplanan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık miktarını artırarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirletici maddelerin giderim verimlerinde bir artışa neden olmuştur.

Ti/PdO-CoO anot ile elektrokoksde olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine başlangıç pH değerlerinin etkisi

4.2, 6, 7.4 ve 8.5 olan pH değerlerinin elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 128’de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar karıştırma hızı 300 rpm, adsorbent miktarı 5 g/L, T 20°C olan çözelti ortamında

gerçekleştirilmiştir. Elektrokoksiasyon çalışmaları ile TAK adsorpsiyonu çalışmalarını mukayese edebilmek için elektrokoksiasyon çalışmaları 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda tamamlanmıştır. 400 dakika sonunda elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyuna 360 dakika sonunda 40 dakikalık bir süre boyunca TAK adsorpsiyonu uygulanmıştır. Yani elektro okside olmuş çıkış sızıntı suları ardışık prosesle (EO/TAK) toplam 400 dakika arıtıma tabi tutulmuştur. Daha sonra ardışık prosesle çıkış suyundan elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO ile elde edilen verimlerle karşılaştırılmıştır. 40 dakikalık bir TAK adsorpsiyonu süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektrokoksiasyon çalışmaları akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 7.4, T 20°C ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dakika olan deneysel şartlarda gerçekleştirilmiştir. Elektrokoksiasyonla 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %51.5, %47.4 ve %93.2 olarak belirlenmiştir.

4.2, 6, 7.4 ve 8.5 olan pH değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ise sırası ile (%75.1, %71.9, %69.9 ve %67.8), (%69.1, %66.1, %63.2 ve %60.4) ve (%97.1, %96.4, %95.9 ve %95.4) olarak belirlenmiştir. TAK adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 4.2 değeri için sırası ile %75.1, %69.1 ve %97.1 olarak belirlenmiştir. Şekil 128'den görüldüğü gibi başlangıç pH değerinin 8.5'den 4.2 değerine düşmesi ile çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.



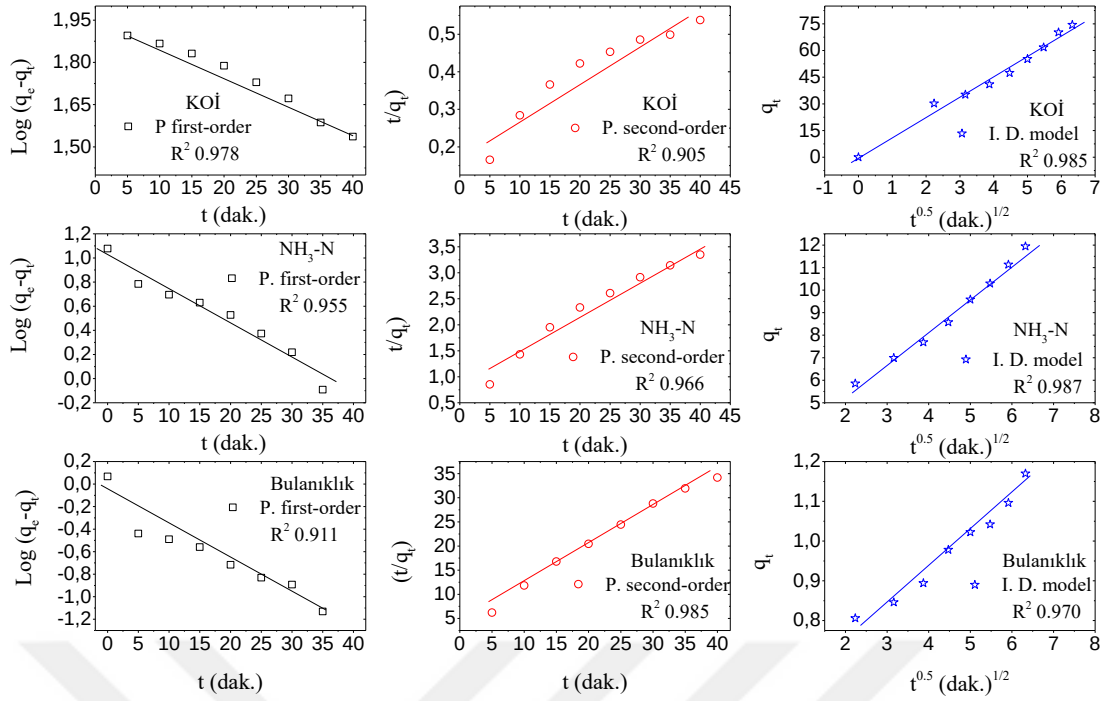
Şekil 128. Elektrokoksiasyon olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç pH değerinin etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, adsorbent miktarı 5 g/L, Karıştırma hızı 300 rpm ve T 20°C ve reaksiyon süresi 40 dak.)

Şekil 128’den görüldüğü gibi EO prosesinden sonra TAK adsorpsiyonunun çıkış sızıntı suyuna uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO’na kıyasla %23.6, %21.3 ve %3.9 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrooksidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözünmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların TAK partikülleri yüzeyinde bulunan aktif bölgelere adsorplanarak uzaklaşmalarının neden olduğu söylenebilir.

Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık giderim verimlerinin asidik pH 4.2 değerinde artmasının nedeni: Düşük pH değerlerinde H⁺ iyonları konsantrasyonunun artması ile TAK yüzeyinde bulunan negatif yüklerin H⁺ iyonları ile etkileşiminden sonra nötral veya pozitif hale gelmesi ve çözeltide bulunan negatif yüklü kolloidal yapıların H⁺ iyonları tarafından destabilize edilerek kolloidal partikül yüzeyinde difüze olmuş çift tabakanın sıkıştırılması nedeniyle gerçekleştiği söylenebilir. Bu nedenle çözelti içerisinde bulunan çözünmüş maddeler ve kolloidal yapılar elektrostatik etkileşimle TAK yüzeyinde adsorbe olmuşlardır. Öte yandan, yüksek pH değerlerinde sızıntı suyu ortamında bulunan OH⁻ iyonları konsantrasyonunun artması ile sızıntı suyu içerisinde bulunan negatif yüklü yüzeyler ve OH⁻ iyonları arasındaki iyonik itme kuvvetleri artarak KOİ ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır. NH₃-N giderim veriminin pH değerinin azalması ile artması elektrookside olmuş çıkış sızıntı suyunda bulunan klorür türlerinin NH₃-N ile verdikleri reaksiyon sonucu bu yapıların N₂’ye indirgemesi ve düşük pH değerlerinde oluşan amonyum-klor komplekslerinin TAK yüzeyindeki aktif bölgelere adsorplanmasından kaynaklandığı söylenebilir.

Elektrookside olmuş sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri, denge izotermi ve termodinamik parametreler

Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklığın giderimine ait adsorpsiyon kinetiklerinin belirlenmesinde pseudo-first-order (yalancı birinci mertebe), pseudo-second-order (yalancı ikinci mertebe) ve intraparticle diffusion (partikül içi difüzyon) eşitlikleri kullanıldı ve bu eşitliklere ait grafikler Şekil 129’da gösterildi.



Şekil 129. Elektro okside olmuş çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri (KOİ 543 mg-O₂/L, NH₃-N 115 mg/L, bulanıklık 6.4 NTU, TAK 5 g/L, karıştırma hızı 300 rpm, pH 8.35, T 20°C)

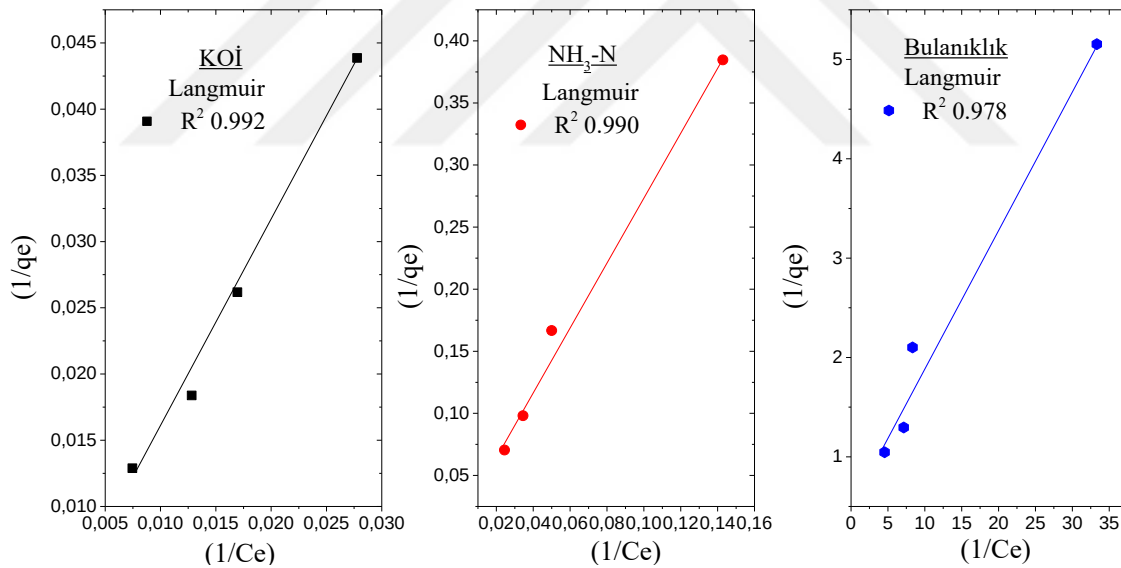
Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ gideriminin yüksek korelasyon (R^2 0.985) katsayısından dolayı partikül içi difüzyon modeline uyduğu belirlendi. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile NH₃-N ve bulanıklık giderim kinetikleri ise yüksek korelasyon (R^2 0.987) değerinden dolayı partikül içi difüzyon modele uyduğu belirlendi. Ayrıca elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile bulanıklık giderimi ise R^2 0.988 olmasından dolayı pseudo-second-order modele uyduğu belirlenmiştir. Sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim kinetiklerine ait adsorpsiyon hız sabiti değerleri Tablo 15’de verilmiştir.

Tablo 15. Elektro Okside Olmuş Çıkış Sızıntı Suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderim Kinetiklerine Ait Adsorpsiyon Hız Sabiti ve R^2 Değerleri

KOİ								
Pseudo-first-order			Pseudo-second-order			Partikül içi difüzyon		
k_1	q_e	R^2	k_2	q_e	R^2	k_{id}	C	R^2
(1/dk.)	(mg/g)		(g/mg.dk)	(mg/g)		(mg/g.dk ^{1/2})		
0.024	94.8	0.978	0.0005	103	0.905	11.34	0.095	0.985
NH ₃ -N								
k_1	q_e	R^2	k_2	q_e	R^2	k_{id}	C	R^2
(1/dk.)	(mg/g)		(g/mg.dk)	(mg/g)		(mg/g.dk ^{1/2})		
0.066	10.71	0.955	0.0064	14.38	0.966	1.49	2.219	0.987
Bulanıklık								
k_1	q_e	R^2	k_2	q_e	R^2	k_{id}	C	R^2
(1/dk.)	(mg/g)		(g/mg.dk)	(mg/g)		(mg/g.dk ^{1/2})		
0.065	0.74	0.911	0.169	1.248	0.988	0.088	0.579	0.970

Adsorpsiyon izoterm modelleri, sabit sıcaklıkta adsorban yüzeyindeki adsorbat miktarı ile çözeltideki adsorbat konsantrasyonu arasındaki denge ilişkileridir. İzoterm modellerinden maksimum adsorpsiyon kapasitesi belirlenebilir. İzoterm denge sabitleri, kullanılan adsorbanın ağır metal giderim yeteneği ya da ağır metal iyonlarının birim kütlesini uzaklaştırmak için gereken adsorban miktarı hakkında bilgi verir.

Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde elde edilen deneysel veriler Langmuir, Freundlich, Temkin ve Dubinin-Radushkevich (D-R) denge izotermi gibi dört farklı modele uyarlanmıştır. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde hangi modelin daha uygun olduğunu belirlemek için bağımlı ve bağımsız değişkenler arasındaki ilişkinin büyüklüğünü gösteren korelasyon katsayısı (R^2) değerinden yararlanılmıştır. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde en uygun izoterm Langmuir izotermi olarak belirlenmiş ve Şekil 130'da gösterilmiştir. Diğer izoterm grafikleri R^2 değerlerinin Langmuir izotermi R^2 değerinden küçük olduğu için şekille gösterilmemiştir ancak bu izotermelere ait R^2 değerleri ve izoterm sabitleri Tablo 16'da verilmiştir



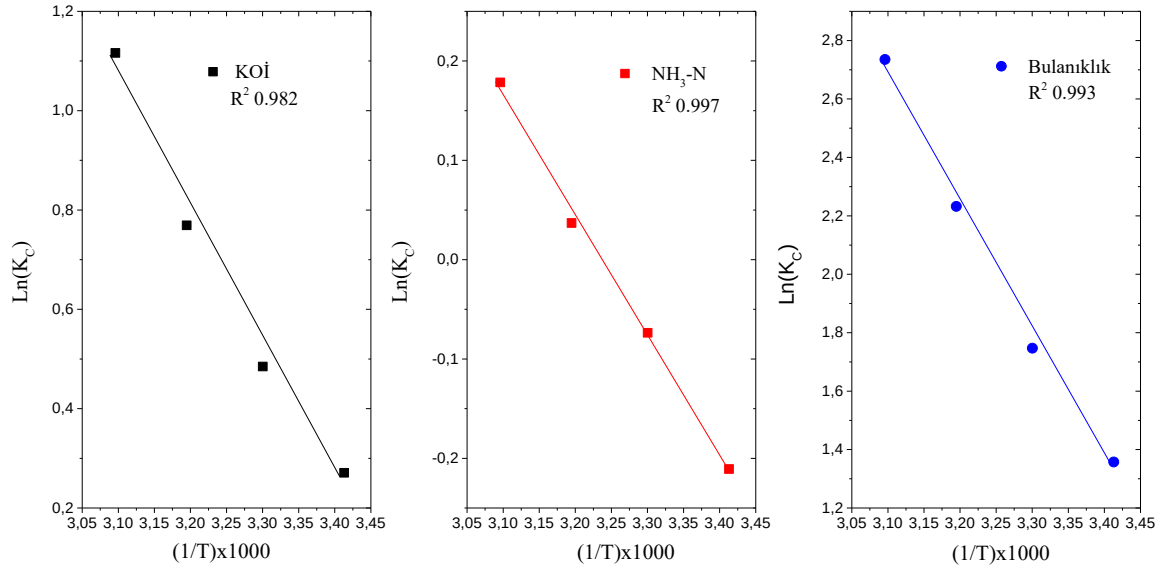
Şekil 130. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanık giderimine ait Langmuir izotermi (TAK 5 g/L, karıştırma hızı 300 rpm, pH 8.35, T 20°C)

Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine yönelik Langmuir izotermine ait korelasyon katsayıları sırası ile R^2 0.992, 0.990 ve 0.978 olarak belirlenmiştir. Sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine yönelik yapılan denge çalışmaları ile ilgili izoterm parametrelerine ait sayısal değerler Tablo 16'da verilmiştir.

Tablo 16. Elektro Okside Olmuş Sızıntı Suyundan TAK Adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimi İle İlgili İzoterm Parametreleri ve Korelasyon Katsayıları

Kirletici	İzoterm	İzoterm parametreleri			R ²
KOİ	Langmuir	K _L (L/mg)	Q _m (mg/g)		0.992
		0.0005	1250		
	Freundlich	K _f (L/mg)	n		0.985
		0.989	1.09		
	Temkin	B ₁	K _T (L/mg)		0.985
		0.186	6.226		
D-R	β	Q _m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.910	
	0.0003	71.52	40.82		
NH ₃ -N	Langmuir	K _L (L/mg)	Q _m (mg/g)		0.990
		0.0061	63.1		
	Freundlich	K _f (L/mg)	n		0.986
		0.38	1.04		
	Temkin	B ₁	K _T (L/mg)		0.893
		0.18	6.23		
D-R	β	Q _m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.842	
	0.00001	10.80	4.47		
Bukanıklık	Langmuir	K _L (L/mg)	Q _m (mg/g)		0.978
		3.87	1.85		
	Freundlich	K _f (L/mg)	n		0.956
		3.2	1.24		
	Temkin	B ₁	K _T (L/mg)		0.869
		0.36	1.92		
D-R	β	Q _m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.935	
	0.00000003	1.37	4082		

TAK adsorpsiyonuna ait standart serbest entalpi (ΔH°), standart serbest entropi (ΔS°) ve standart serbest gibbs (ΔG°) enerji değerlerinin belirlenmesinde başlangıç değeri T 20, 30, 40 ve 50°C olan elektro okside olmuş sızıntı suyu başlangıç sıcaklık değerlerinde adsorpsiyon çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Sızıntı suyunun KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyon değerleri sırası ile 543 mg O₂/L, 115 mg/L ve 6.4 NTU idi. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık kirletici parametrelerine ait dengedeki K_c dağılım katsayılarının sıcaklıkla artması adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğunu göstermektedir. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde TAK adsorpsiyon prosesine ait ΔH° , ΔS° ve ΔG° değerlerinin belirlenmesinde (1/T) değerlerine karşı Ln (K_c) değerlerinin grafiği çizilmiş ve Şekil 131’de verilmiştir.



Şekil 131. Elektro okside olmuş TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine yönelik $(1/T)$ değerlerine karşı $\ln(K_c)$ grafikleri

Ayrıca TAK adsorpsiyonu ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi ile ilgili termodinamik parametre değerleri Tablo 17’de özetlenmiştir. Tablo 17’te verilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait ΔH° değerlerinin pozitif olmasından dolayı adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğu anlaşılmaktadır. Tablo 17’deki ΔS° değerlerinin pozitif çıkmasının anlamı TAK ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra TAK partiküllerinin yüzeyinde meydana gelen tutunmadan sonra partiküllerin düzensizliğinin arttığı söylenebilir. Ayrıca ΔG° değerlerinin negatif olması TAK adsorpsiyonunun belirtilen sıcaklıklarda kendiliğinden meydana gelebileceğini ifade etmektedir.

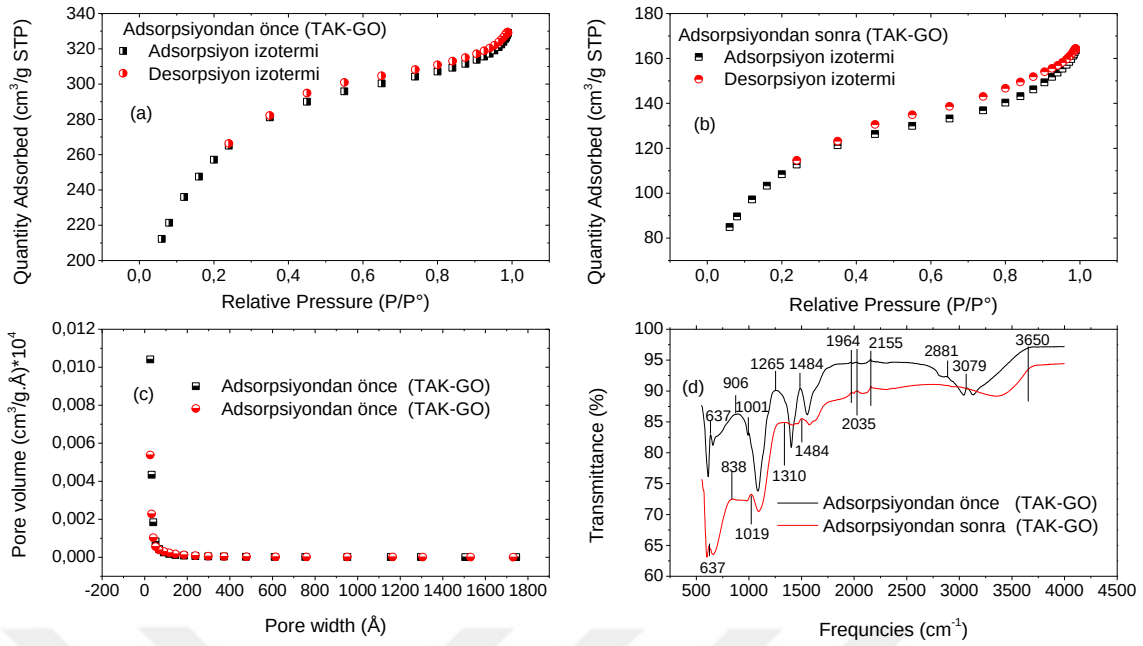
Tablo 17. Elektro Okside Olmuş Sızıntı Suyundan TAK Adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimine ait ΔG° , ΔH° ve ΔS° Değerleri

ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	KOİ ΔG° (kJ/mol)			
22.10	0.077	293 K	308 K	313 K	323 K
		-0.461	-1.232	-2.200	-2.771
ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	NH ₃ -N ΔG° (kJ/mol)			
10.04	0,0773	293 K	308 K	313 K	323 K
		-12.65	-13.38	-14.15	-14.93
ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	Bulanıklık ΔG° (kJ/mol)			
36.26	0.0370	293 K	308 K	313 K	323 K
		-3.00	-4.342	-5.682	-7.022

Ti/PdO-CoO Anot ile Elektro Okside Olmuş Sızıntı Çıkış Suyundan TAK-GO Adsorpsiyonu Prosesi ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimi

TAK-GO partiküllerinin BET yüzey alanı, por özellikleri, FTIR spektrumları ve SEM-EDX görüntüleri

TAK-GO partiküllerinin elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan önce ve sonra adsorpsiyon izotermini gösteren eğriler Şekil 132 (a) verilmiştir. Şekil 132 (a) incelendiğinde rölatif (bağıl) basıncın artması ile adsorplanan gaz hacmi artmış ve rölatif basınç değeri 0.99 olduğu zaman adsorplanan gaz hacmi maksimum değere ulaşmıştır. Rölatif basınç ekseninin sağına doğru gittikçe adsorplanan N₂ gazı hacminin basıncın veya konsantrasyondaki artış miktarının bir fonksiyonu olarak nasıl değiştiği görülmektedir. Daha sonra rölatif basıncın 1'e yaklaşmasından dolayı gaz basıncı ne kadar artırılırsa artırılсын adsorplanan gaz hacmi değişmeyip sabit kalmıştır. Şekil 132 (a) TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önceki izoterm eğrisi Tip I adsorpsiyon izoterminde uyduğu belirlenmiştir. Tip I izoterminde adsorpsiyon çoğunlukla mikroporlarda kemisorpsiyon olarak meydana gelmektedir. Bu durumda adsorplanan madde adsorbentteki mikroporların ve çok az sayıda mezoporların yüzeyine güçlü bir şekilde bağlanmıştır. Böylece adsorbent yüzeyinde adsorbatı barındıracak mikroporlar kalmadığından adsorpsiyon makroporlarda meydana gelmemiştir (Z. Chen *et al.* 2021; Koyuncu & Kul, 2020; F. Liu *et al.* 2021). TAK-GO partikülleri ile Elektrokside olmuş çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderildikten sonra kirleticilerle tükenmiş TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyon izotermini Şekil 132 (b)'de verilmiştir. Bu şekil incelendiğinde rölatif basıncın değerinin artması ile adsorplanan gaz hacmi artmış ancak adsorpsiyondan sonra adsorbent yüzeyindeki adsorplanan gaz hacmi oldukça azalmıştır. Şekil 132 (b) incelendiğinde TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan sonra adsorpsiyon izoterminin Tip II adsorpsiyonuna uyduğu belirlenmiştir (Gong *et al.* 2022; Koyuncu & Kul, 2020; D. Liu *et al.* 2021). Bu tür adsorpsiyonda adsorpsiyon eğrisi sigmoidal olup oluşacak izoterm eğrileri hem gözeneksiz hem de makro gözenekli adsorbentlerde fiziksel soğurma şeklinde meydana gelmektedir. Adsorpsiyon prosesinden sonra kirletici parametrelerin TAK-GO partikülleri yüzeyine adsorplandıktan sonra adsorbentte mikroporların tamamen ve mezoporların kısmen tükendiği Şekil 132 (a, b)'den de görülmektedir. Arta kalan mezoporlar ve makroporlarda ise por genişliğinden dolayı Şekil 132 (a, b)'de görüldüğü gibi gaz adsorpsiyonu gerçekleşmemiştir.



Şekil 132. 373 K sıcaklığında adsorpsiyondan önce ve sonra TAK-GO partiküllerine ait N₂ adsorption ve desorpsiyon izotermi (a, b) ve adsorbent por boyutu ile hacmi arasındaki ilişki (c) ve TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce sonra (d) FTIR spektrumları

Tip I izotermi adsorbent tarafından adsorbe edilen partiküllerinin adsorbent maddenin yüzeyinde tek bir tabaka oluşturduğu anlamına gelmektedir. Tek tabaka adsorbatlar tarafından soğurulduktan sonra diğer partikül maddeler önceki partiküllerin yüzeyine tutunur ve bu durum çoklu katmanların oluşmasına neden olur. Şekil 132 (a) incelendiğinde, TAK-GO partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderildikten sonra adsorpsiyonun devam edebilmesi için tükenmiş TAK-GO yüzeyinde her hangi bir mikropor kalmamıştır.

TAK-GO partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden önce ve sonra partiküllerin yüzey alanı ve por hacimlerini belirlemek için Brunauer-Emmett-Teller (BET) yüzey alanı analizleri gerçekleştirilmiştir. Adsorpsiyondan önce ve sonra TAK-GO partiküllerinin BET yüzey alanı ve por hacmi sırasıyla (909 m² g⁻¹ ve 0.5048 cm³ g⁻¹) ve (390 m² g⁻¹ ve 0.250 cm³ g⁻¹) olarak belirlenmiştir. TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra ortalama por çapı ise sırasıyla 2.23 ve 2.7 nm olarak hesaplanmıştır. Adsorpsiyondan sonra partiküllerin yüzey alanı ve hacimlerinde meydana gelen azalma ve ortalama por çapındaki artış KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin adsorpsiyonla uzaklaştırıldığını göstermektedir.

Kesikli adsorpsiyon çalışmalarında kullanılan TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra por boyutu dağılımlarını belirlemek için Barrett, Joyner and Halenda (BJH) yöntemi uygulanıp Şekil 132 (c)'de gösterilmiştir. Şekil 132 (c), TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ve sonra por çapları ile partiküllerin gram başına cm³ olarak hacimleri arasındaki ilişkiyi göstermektedir. Şekil 132 (c) incelendiğinde adsorpsiyondan önce TAK-GO

partiküllerinin por çapları 26.2-1744.5 Å arasında değiştiği görülmektedir. Şekil 132 (c) incelendiğinde gram başına en yüksek hacme sahip partikül boyutları ile por hacimleri sırası ile (26.2 Å, $104.1 \times 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{g Å}$), (32.6 Å, $43.4 \times 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{g Å}$) ve (40.3 Å, $18.4 \times 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{g Å}$) olarak belirlenmiştir. TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce ortalama por çapı 22.3 Å olarak belirlenmiştir. TAK-GO partikülleri ile elektro okside edilmiş çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin bir kısmı adsorpsiyonla uzaklaştırıldıktan sonra partiküllerin gram başına cm^3 olarak hacimleri arasındaki ilişki Şekil 132 (c) 'verilmiştir. Adsorpsiyondan sonra TAK-GO partiküllerinin por çapı ile gram başına sahip oldukları hacimleri sırası ile (26.2-1730.6 Å) ve $(53.8-0.0197) \times 10^{-4} (\text{cm}^3/\text{g Å})$ olarak belirlenmiştir. Adsorpsiyondan sonra TAK-GO partiküllerinin ortalama por çapı 25.65 Å olarak belirlenmiştir. TAK-GO partikülleri ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra mikroporların tamamı ve mezoporların bir kısmı kaybolmuş ve adsorpsiyondan sonra por çapı artmıştır. Bu durum kirleticilerin sızıntı suyundan uzaklaştırıldığı anlamına gelmektedir.

Bu çalışmada TAK-GO partikülleri ile elektro okside edilmiş çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde adsorpsiyona katılan aktif grupları belirlemek için FTIR spektrumları adsorpsiyondan önce ve sonra analiz edilmiştir. 500-4000 cm^{-1} dalga boyu aralığında TAK-GO partiküllerine ait FTIR spektrumları Şekil 132 (d)'de gösterilmiştir.

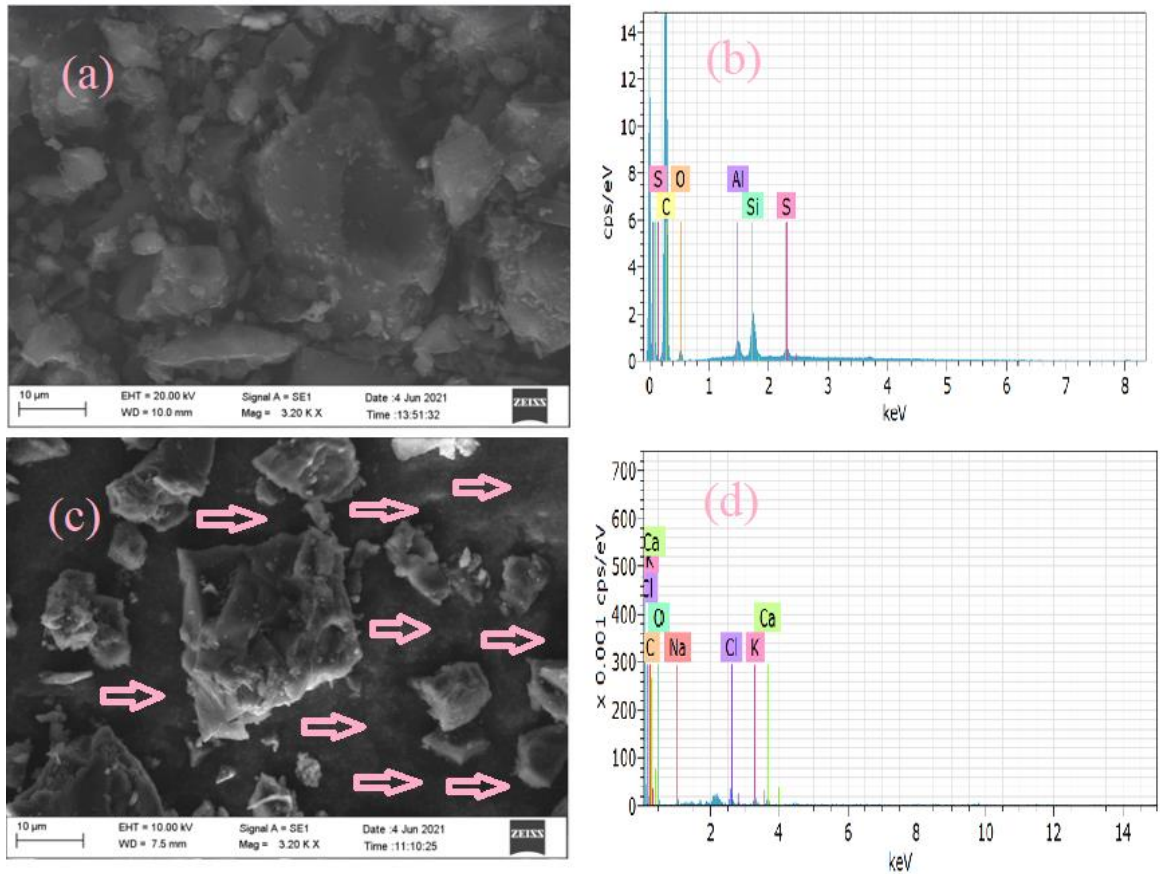
TAK-GO partiküllerinin elektro okside olmuş sızıntı suyunun adsorpsiyonundan önceki FTIR spektrumları şu şekilde belirlenmiştir; 637 cm^{-1} deki bantta RHC=CH₂ vinil yapısında CH₂ salınımı, 905 cm^{-1} deki bantta hidroksil amin grubunda N-O gerilmesi, 1001 cm^{-1} frekansında alifatik R-CR₂-NH₂ grubu titreşimi, 1265 cm^{-1} frekansında C(CH₃)₃ grubu titreşimi, 1310 cm^{-1} frekansında trans 1,2-dialkil, RHC=CHR titreşim grubu, 1484 cm^{-1} frekansında 3-süstitüe olmuş 5 üyeli heterosiklik halka titreşimi, 1964 cm^{-1} frekansında >C=C=C< allen titreşim grubunda elektron çeken gruplara bağlı faz dışı gerilme titreşimi, 2035 cm^{-1} frekansında titreşen R₁R₂C=N=N (R alkil ya da hidrojen grubu) grubu diazo bileşikler olup faz dışı gerilme, 2153 cm^{-1} frekansında titreşen grup ketenler >C=C=O olup faz dışı gerilme, 2881 cm^{-1} frekansında aril bileşiklerinde titreşen grup -CH₃, 3079 cm^{-1} frekansında 1,1-Dialkil, R₂C=CH₂ titreşimi ve 3650 cm^{-1} frekansında serbest OH titreşimi olarak belirlenmiştir (Colthup, 2012).

Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃ ve bulanıklık gideriminden sonra TAK-GO partikülleri yüzeyinde adsorpsiyondan önce bulunan titreşim yapan grupların geçirimsizlik yüzde değerleri azalmış ve bazı titreşim yapan gruplarda ise farklı frekanslara yönelik kaymalar gözlemlenmiş ve yeni pikler oluşmuştur Şekil 132 (d).

Adsorpsiyondan sonra TAK-GO partiküllerinin FTIR spektrumlarındaki değişimler şu şekilde belirlenmiştir: adsorpsiyondan sonra 637 cm^{-1} (RHC=CH₂) vinil yapısında CH₂

titreşimi, 1019 cm^{-1} frekansında Nitro-aminler grubunda 2-süstitüentli furan titreşimi, 1310 cm^{-1} frekansında amid ($-\text{C}(=\text{O})-\text{NHR}$ yapısında *cis* C-N titreşimi, 1484 cm^{-1} frekansında 3-süstitüe olmuş 5 üyeli heterosiklik halka titreşimi, 2035 cm^{-1} frekansında birincil $-\text{NH}_3^+$ tuzlarından aril amin titreşimi ve 3650 cm^{-1} frekansında serbest OH titreşimi olarak belirlenmiştir (Colthup, 2012). Şekil 132 (d)'den görüldüğü gibi adsorpsiyondan sonra bazı piklerin geçirimsizliklerinde önemli ölçüde bir azalma meydana gelmesi bazı yeni piklerin oluşumu ve bazı piklerin diğer piklere kaymaları KOİ, NH_3 ve bulanıklığa neden olan çözünmüş organik maddelerin ve negatif yüklü kolloidlerin adsorbent yüzeyinde adsorplandığını göstermektedir.

TAK-GO partiküllerinin morfolojik yapısını incelemek amacı ile SEM analizi gerçekleştirilmiştir. TAK-GO partiküllerinin okside edilmiş sızıntı suyunun adsorpsiyondan önce ve sonra elde edilen SEM görüntüleri Şekil 133 (a, c)'de gösterilmiştir. Sızıntı suyundaki KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklığa neden olan kirleticilerin gideriminden önce TAK-GO partiküllerinin fiziksel morfolojisi aglomera olmuş değişik büyüklükte partiküllerden oluştuğu ve bu partiküller yüzeyinde sırası ile makro, mezo ve mikro partiküllerin bulunduğu por çapı ve por boyutu ile ilgili ilişkiyi gösteren grafikten anlaşılmaktadır. TAK-GO partikülleri arasında büyük ve küçük oyukların bulunduğu Şekil 133 (a)'dan görülmektedir. Şekil 133 (a), TAK-GO partiküllerinin yüzey yapısının heterojen, amorf bir yapı ve değişik partikül çaplarına sahip olduğunu göstermektedir. Adsorpsiyonun mikroporlarda büyük düzeyde mezoporlarda ise oldukça düşük düzeyde meydana geldiği gerçekleştirilen partikül boyutu analizlerinden belirlenmiştir. Dolayısı ile TAK-GO partiküllerinin yüzeyinde bulunan makroporların kirletici parametrelerin mezo ve mikroporlara taşınmasında geçiş görevi sağladığı anlaşılmaktadır. Adsorpsiyondan sonra KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklığa neden olan çözünmüş organik maddelerin TAK-GO yüzeyinde adsorplanmasından sonra TAK-GO yüzeyinin bu kirleticiler tarafından bir örtü şeklinde kaplandıktan sonra mikroporların tamamen kaybolduğu ve mezoporların ise kısmen kaybolduğunu yapılan partikül boyut analizleri desteklemiştir.



Şekil 133. TAK-GO partiküllerinin adsorpsiyondan önce (a, b) ve adsorpsiyondan sonra (c, d) SEM-EDX görüntüleri

Elektro okside olmuş sızıntı çıkış suyunun adsorpsiyon prosesinden önce ve sonra TAK-GO partiküllerinin yapısında hangi elementlerin bulunduğunu belirlemek ve adsorpsiyon prosesini aydınlatmak amacı ile partiküllerin EDX analizleri yapılmış ve Şekil 133 (b, d)'de gösterilmiştir. TAK-GO partikülleri okside olmuş sızıntı suyunun adsorpsiyondan önce ağırlıkça %90.19 C, %6.22 O, %2.14 Si, %0.94 Al ve %0.51 S atomu içerdiği belirlenmiştir. Adsorpsiyon prosesinden sonra TAK-GO partikülleri ağırlıkça %64.48 C, %15.72 O, %7.17 Cl, %4.94 K, %3.88 Ca ve %3.82 Na atomu içerdiği belirlenmiştir. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyunun TAK-GO ile adsorpsiyonundan sonra TAK-GO partiküllerinin bileşiminde meydana gelen değişme sızıntı suyunda bulunan kirletici maddelerin TAK-GO partikülleri yüzeyinde adsorplanarak uzaklaştırıldığını göstermektedir.

Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine adsorbent miktarının etkisi

Başlangıç KOİ, NH₃-N ve bulanıklık değerleri sırası ile 1044 mg O₂/L, 204 mg/L ve 57 NTU olan sızıntı suyu yeni üretilen Ti/PdO-CoO anot ve çelik katot ile 400 dakika boyunca elektro oksidasyona tabi tutulmuştur. Deneysel çalışmalar 25 mA/cm² akım yoğunluğu, 300 rpm karıştırma hızı, 1 cm elektrot mesafesi, 20°C çözelti sıcaklığı ve başlangıç pH değeri 7.4

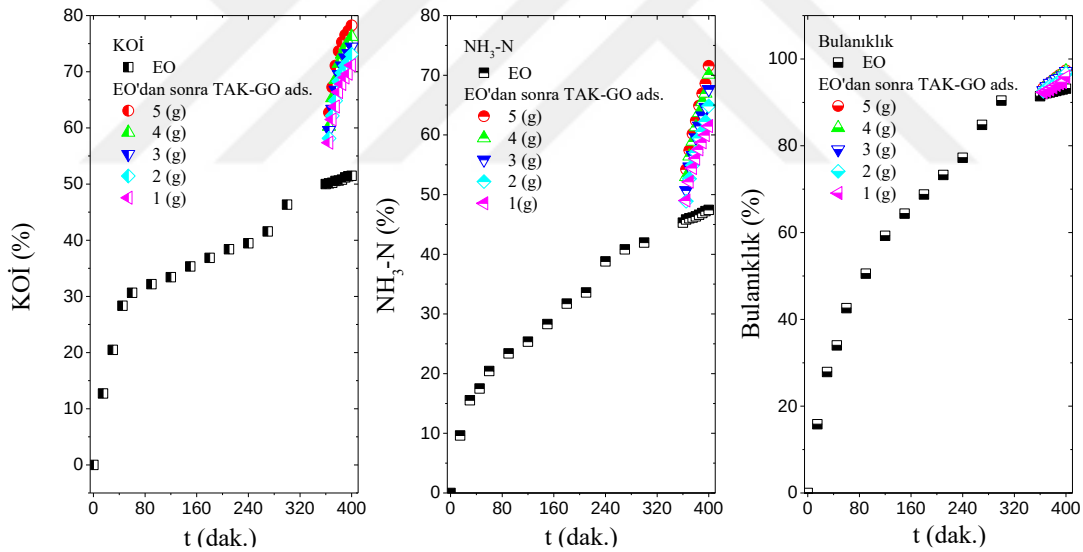
olan deneysel şartlarda gerçekleştirilmiştir. 400 dakikalık bir elektrooksidasyon süresi sonunda elektro okside olmuş çıkış suları 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. 360 ve 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda geriye kalan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyonları ve giderim verimleri sırası ile [(522 mg O₂/L, 111 mg/L ve 4.6 NTU) ve (%49.9, % 45.3 ve %91.4)] ve [(506.6 mg O₂/L, 107.2 mg/L ve 3.9 NTU) ve (%51.5, % 47.4 ve %93.1)] olarak belirlenmiştir. 360 dakikalık bir elektrooksidasyon prosesinden sonra mineralize ve polarize olmuş çözünmüş organik maddeler ve destabilize olmuş geriye kalan kolloidal maddeleri içeren çıkış suyu 40 dakikalık bir TAK-GO adsorpsiyon prosesine tabi tutulmuştur.

EO çıkış sızıntı suyuna TAK-GO adsorpsiyon prosesinin uygulanmasının temel amacı çıkış suyunda bulunan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin TAK-GO adsorpsiyonu prosesi ile giderim verimlerinin daha fazla artırılıp artırılmayacağını belirlemektir. Bu amaçla EO'dan sonra çıkış sızıntı suyuna farklı deneysel şartlarda TAK-GO adsorpsiyonu prosesi uygulanarak elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO prosesi ile kıyaslanarak değerlendirilmiştir. 360 dakikalık bir oksidasyon süresinden hemen sonra okside edilen çıkış suyu 40 dakikalık bir adsorpsiyon prosesine tabi tutulmuştur. Adsorpsiyon prosesinde beşer (5'er) dakikalık örnekler alınarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. TAK-GO adsorpsiyon süresi 360. dakikadan itibaren dikkate alınmış ve 400 dakikalık bir reaksiyon sonucu adsorpsiyon çalışmaları sonlandırılmıştır. Yani adsorpsiyon çalışmalarında 40 dakikalık bir adsorpsiyon süresi sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Daha sonra 400. dakika sonucu sıralı prosesle (EO/TAK-GO) elde edilen giderim verimleri EO ile elde edilen giderim verimleri ile mukayese edilmiştir. Böylece ardışık prosesle (EO/TAK-GO adsorpsiyonu) sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin arttırılması amaçlanmıştır.

1, 2, 3, 4, 5 g/L'lik TAK-GO miktarlarının elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 134'da gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar pH 7.4 (elektro okside olmuş çıkış suyunun başlangıç pH değeri), başlangıç sıcaklığı 20°C, elektrotlar arası mesafe 1 cm, karıştırma hızı 300 rpm ve elektrolitsiz ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları ile TAK-GO adsorpsiyonu çalışmalarını mukayese edebilmek için elektrooksidasyon çalışmaları 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda tamamlanmıştır. 400 dakika sonunda elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyuna 360. dakika sonunda 40 dakikalık bir süre TAK-GO adsorpsiyonu uygulanmıştır. Yani elektro okside olmuş çıkış sızıntı suları ardışık prosesle (EO/TAK-GO) toplam 400 dakika arıtıma tabi

tutulmuştur. Daha sonra ardışık prosesle çıkış suyundan elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO ile elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleriyle karşılaştırılmıştır. 40 dakikalık bir TAK-GO adsorpsiyonu süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektrokoksiasyon çalışmaları akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 7.4, T 20°C ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dakika olan deneysel şartlarda gerçekleştirilmiştir. Elektrokoksiasyonla 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %51.5, %47.4 ve %93.2 olarak belirlenmiştir.

1, 2, 3, 4, 5 g/L'lik TAK-GO adsorbent miktarları için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ise sırası ile (%71.2, %73.1, %74.5, %76.3 ve %78.3), (%61.5, %64.8, %67.6, %70.1 ve %71.6) ve (%95.9, %96.7, %97.2, %97.3 ve %97.5) olarak belirlenmiştir. TAK-GO adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 5 g/L'lik adsorbent miktarı için sırası ile %78.3, %71.6 ve %97.5 olarak belirlenmiştir. Şekil 134'den görüldüğü gibi adsorbent miktarının artması ile çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.



Şekil 134. Elektrokoksiasyon sonrası deponi sızıntı çıkış suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine adsorbent miktarının etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, T 20°C, pH 7.4 ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dak.)

Şekil 134'den görüldüğü gibi EO prosesinden sonra TAK-GO adsorpsiyonunun çıkış sızıntı sularına uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO'na kıyasla %26.8 , %24.2 ve %4.4 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrokoksiasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözünmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların TAK partikülleri yüzeyinde bulunan aktif bölgelere tutunarak çıkış sızıntı suyundan uzaklaştırılmıştır.

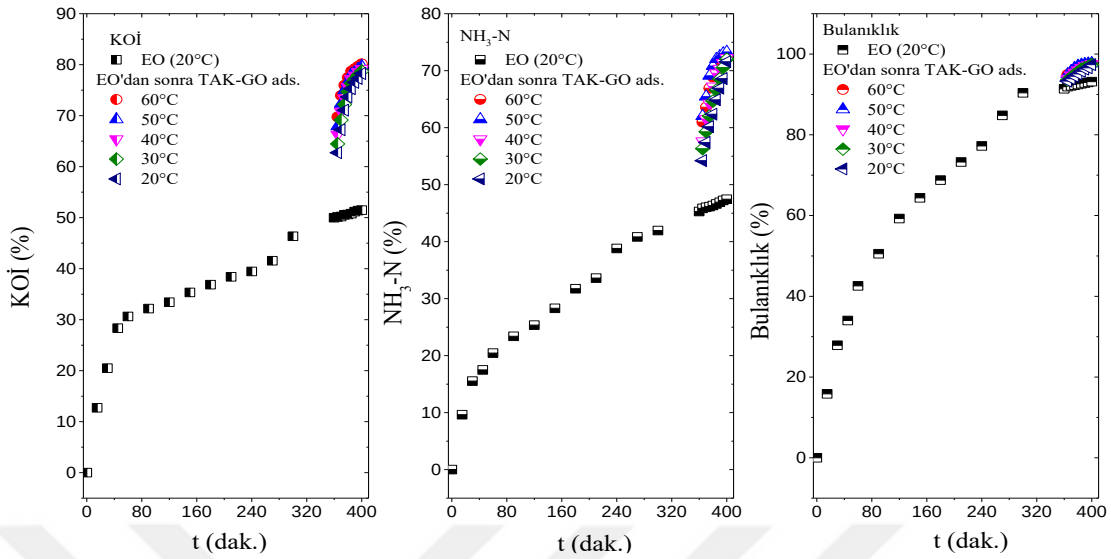
Adsorpsiyon prosesinde TAK-GO miktarının artması partiküllerin yüzey alanı ve aktif sit bölgelerinin önemli düzeyde artışına neden olduğu düşünülmektedir. Böylece çıkış sızıntı suyunda bulunan çözünmüş maddeler, kolloidal yapılar ve moleküler halde bulunan $\text{NH}_3\text{-N}$ 'ın TAK-GO yüzeyinde bulunan aktif bölgelere elektrostatik ve kimyasal bağlarla adsorplanarak zamanla giderim verimleri artmıştır (Deng *et al.* 2018; Reynier *et al.* 2015).

Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine başlangıç sıcaklığının etkisi

20, 30, 40, 50, 60°C başlangıç sıcaklık değerlerinin elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 135'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar pH 7.4 (elektrookside olmuş çıkış suyunun başlangıç pH değeri), adsorbent miktarı 5 g/L, karıştırma hızı 300 rpm olan çözelti ortamında gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları ile TAK-GO adsorpsiyonu çalışmalarını mukayese edebilmek için elektrooksidasyon çalışmaları 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda tamamlanmıştır. 400 dakika sonunda elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyuna 360. dakika sonunda 40 dakikalık bir süre TAK-GO adsorpsiyonu uygulanmıştır. Yani elektro okside olmuş çıkış sızıntı suları ardışık prosesle (EO/TAK-GO) toplam 400 dakika arıtıma tabi tutulmuştur. Daha sonra ardışık prosesle çıkış suyundan elde edilen KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri EO ile elde edilen KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri ile karşılaştırılmıştır. 40 dakikalık bir TAK-GO adsorpsiyonu süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 μm 'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları akım yoğunluğu 25 mA/cm^2 , pH 7.4, T 20°C ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dakika olan deneysel şartlarda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyonla 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %51.5, %47.4 ve %93.2 olarak belirlenmiştir.

20, 30, 40, 50, 60°C başlangıç sıcaklık değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri ise sırası ile (%78.3, %78.8, %79.2, %79.7 ve %78.4), (%71.6, %72.1, %72.3, %73.3 ve %72.5) ve (%97.5, %97.6, %97.8, %97.9 ve %97.7) olarak belirlenmiştir. TAK-GO adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri 50°C değeri için sırası ile %79.7, %73.3 ve %97.9 olarak belirlenmiştir. Şekil 135'den görüldüğü gibi başlangıç sıcaklık değerinin 20°C'den 50°C değerine çıkması ile çıkış sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim verimleri artmış ancak sıcaklık değerinin 50°C'den 60°C'e çıkması ile giderim verimlerinde kısmen bir azalma meydana gelmiştir. Bu

azalmaya yüksek sıcaklıklarda TAK-GO partikülleri yüzeyinde meydana gelen kısmen bir desorpsiyonun neden olduğu söylenebilir.



Şekil 135. Elektro okside olmuş düzenli deponi sızıntı çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç sıcaklığının etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, adsorbent miktarı 5 g/L, pH 7.4 ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dak.)

Şekil 135’den görüldüğü gibi EO prosesinden sonra TAK-GO adsorpsiyonunun çıkış sızıntı suyuna uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO’na kıyasla %28.2, %25.9 ve %4.5 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrokoksidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözünmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların TAK-GO partikülleri yüzeyinde bulunan aktif bölgelere tutunarak çıkış sızıntı suyundan uzaklaştığının neden olduğu söylenebilir.

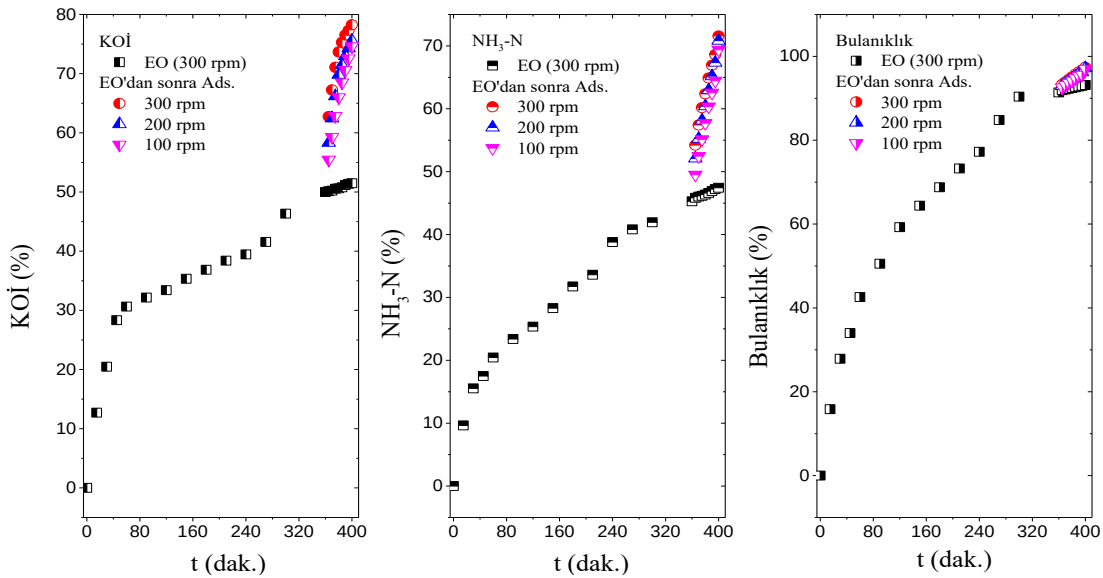
KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde ki bu artış, adsorpsiyon prosesinin endotermik yapısını göstermektedir. Bu artış, yüzeyde mevcut olan aktif bağlama bölgelerinde ki bir artıştan veya adsorbenti çevreleyen sınır tabakasının kalınlığındaki bir azalmadan kaynaklanabileceği söylenebilir (Meena *et al.* 2008). Artan çözelti sıcaklığı, KOİ ve bulanıklığa neden olan maddelerin artan sıcaklıkla kinetik enerjilerinin artmasından dolayı TAK-GO gözenekleri içerisindeki taşınımının artması ile açıklanabilir (Kaur *et al.* 2016).

Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine karıştırma hızının etkisi

100, 200 ve 300 rpm’lık karıştırma hızının elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 136’da gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar pH 7.4 (elektrokoksido olmuş çıkış suyunun başlangıç pH değeri), adsorbent miktarı

5 g/L, T 20°C olan ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrokoksidadasyon çalışmaları ile TAK-GO adsorpsiyonu çalışmalarını mukayese edebilmek için elektrokoksidadasyon çalışmaları 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda tamamlanmıştır. 400. dakika sonunda elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyuna 360. dakika sonunda 40 dakikalık bir süre TAK-GO adsorpsiyonu uygulanmıştır. Yani elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyu ardışık prosesle (EO/TAK-GO) toplam 400 dakika arıtıma tabi tutulmuştur. Daha sonra ardışık prosesle çıkış suyundan elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO ile elde edilen verimlerle karşılaştırılmıştır. 40 dakikalık bir TAK adsorpsiyonu süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektrokoksidadasyon çalışmaları akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 7.4, T 20°C ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dakika olan deneysel şartlarda gerçekleştirilmiştir. Elektrokoksidadasyonla 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %51.5, %47.4 ve %93.2 olarak belirlenmiştir.

100, 200 ve 300 rpm'lık karıştırma hızı değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ise sırası ile (%74.6, %75.5 ve %78.3), (%69.4, %70.8 ve %71.6) ve (%97.1, %97.2 ve %97.5) olarak belirlenmiştir. TAK-GO adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 300 rpm değeri için sırası ile %78.3, %71.6 ve %97.5 olarak belirlenmiştir. Şekil 136'dan görüldüğü gibi başlangıç sıcaklık değerinin 100 rpm'den 300 rpm değerine çıkması ile çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.



Şekil 136. Elektro okside olmuş düzenli deponi sızıntı çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine karıştırma hızının etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, adsorbent miktarı 5 g/L, pH 7.4 ve T 20°C ve reaksiyon süresi 400 dak.)

Şekil 136'den görüldüğü gibi EO prosesinden sonra TAK-GO adsorpsiyonunun çıkış sızıntı suyuna uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO'na kıyasla %26.8, %24.2 ve %4.3 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrooksidasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözünmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların TAK-GO partikülleri yüzeyinde bulunan aktif bölgelere tutunarak çıkış sızıntı suyundan kirleticilerin çözelti ortamından uzaklaştırılması ile açıklanabilir.

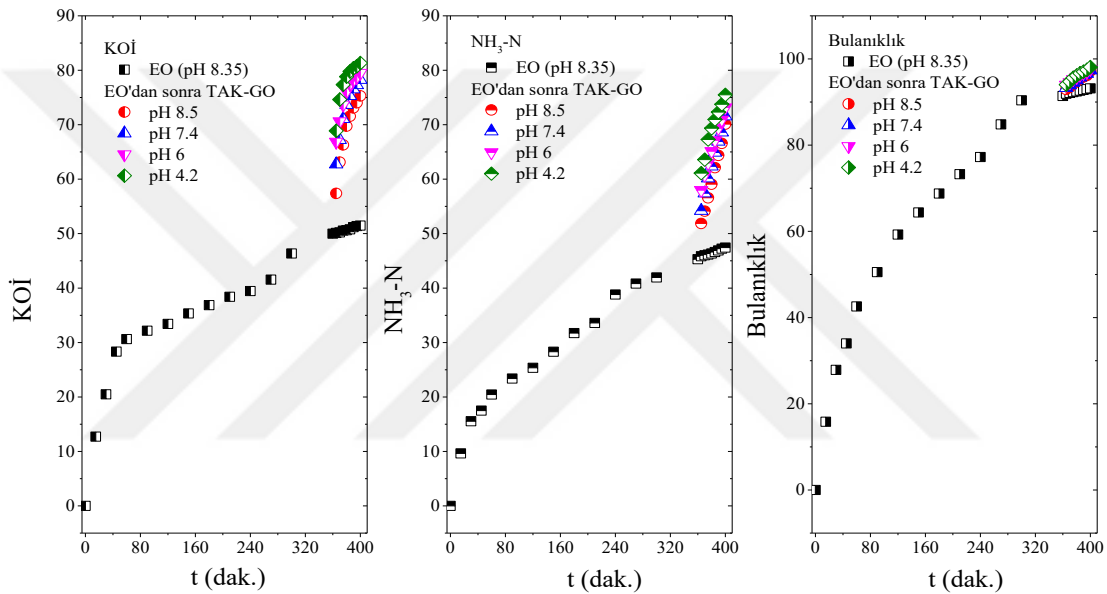
Karıştırma hızının artması TAK-GO partiküllerinin ve çözelti içerisinde bulunan kolloidal ve kirletici maddelerin zamanla çözeltide homojen dağılımını teşvik ederek adsorpsiyon süresince kirletici konsantrasyonlarının homojen kalmasına yardımcı olmuştur. Ayrıca, karıştırma hızı, sınır tabakası kalınlığını azaltıp dış film transfer katsayısını artırmaktadır. Yüksek karıştırma hızlarında daha hızlı hareket eden TAK-GO partikülleri ve kirletici maddeler birbirleri ile daha çok temas ederek çarpışma olasılıkları artmıştır (Sohbi Bellebia *et al.* 2012). Bu durum TAK-GO partikülleri tarafından adsorplanan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık miktarını artırarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklığa neden olan kirletici maddelerin giderim verimlerinde bir artışa neden olmuştur.

Ti/PdO-CoO anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine başlangıç pH değerinin etkisi

4.2, 6, 7.4 ve 8.5 olan başlangıç pH değerlerinin elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine etkileri araştırılmış ve Şekil 137'de gösterilmiştir. Deneysel çalışmalar karıştırma hızı 300 rpm, adsorbent miktarı 5 g/L, T 20°C olan ortamda gerçekleştirilmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları ile TAK-GO adsorpsiyonu çalışmalarını mukayese edebilmek için elektrooksidasyon çalışmaları 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda tamamlanmıştır. 400 dakika sonunda elektro okside olmuş çıkış suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyuna 360 dakika sonunda 40 dakikalık bir süre TAK-GO adsorpsiyonu uygulanmıştır. Yani elektro okside olmuş çıkış sızıntı suları ardışık prosesle (EO/TAK-GO) toplam 400 dakika arıtıma tabi tutulmuştur. Daha sonra ardışık prosesle çıkış suyundan elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO ile elde edilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile karşılaştırılmıştır. 40 dakikalık bir TAK-GO adsorpsiyonu süresinin ardından reaktörden alınan numuneler 45 µm'lik filtreden geçirildikten sonra KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri belirlenmiştir. Elektrooksidasyon çalışmaları akım yoğunluğu 25 mA/cm², pH 7.4, T 20°C ve karıştırma hızı 300 rpm ve reaksiyon süresi 400 dakika olan deneysel şartlarda

gerçekleştirilmiştir. Elektrokoksiasyonla 400 dakikalık bir reaksiyon sonunda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %51.5, %47.4 ve %93.2 olarak belirlenmiştir.

4.2, 6, 7.4 ve 8.5 olan pH değerleri için 40 dakikalık bir reaksiyon sonucu TAK-GO adsorpsiyonu ile okside olmuş çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ise sırası ile (%81.3, %79.5, %78.3 ve %75.3), (%75.5, %71.6, %71 ve %70.1) ve (%98.1, %97.6, %97.5 ve %97.2) olarak belirlenmiştir. TAK-GO adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 4.2 değeri için değeri için sırası ile %81.3, %75.5 ve %98.1 olarak belirlenmiştir. Şekil 137’den görüldüğü gibi başlangıç pH değerinin pH 8.5’den pH 4.2 değerine düşmesi ile çıkış sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri artmıştır.



Şekil 137. Elektro okside olmuş deponi sızıntı çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine başlangıç pH değerinin etkisi (KOİ 1044 mg-O₂/L, NH₃-N 204 mg/L, bulanıklık 57 NTU, adsorbent miktarı 5 g/L, Karıştırma hızı 300 rpm ve T 20°C ve reaksiyon süresi 400 dak.)

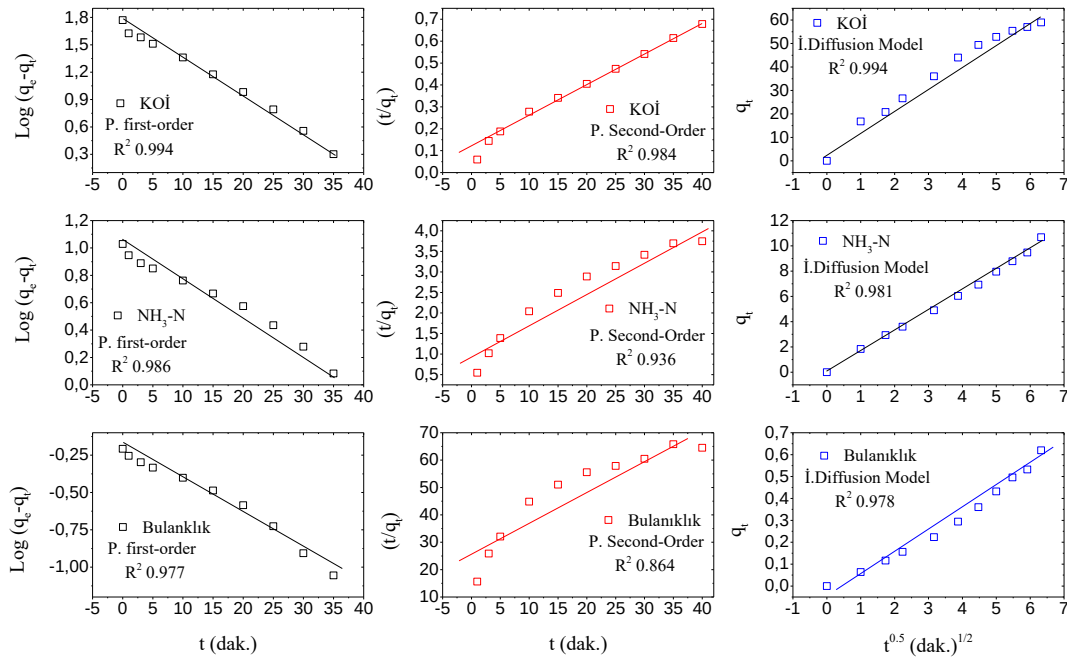
Şekil 137’den görüldüğü gibi EO prosesinden sonra TAK-GO adsorpsiyonunun çıkış sızıntı suyuna uygulanması sonucu KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri EO’na kıyasla %29.8, %28.1 ve %5 olarak artmıştır. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerindeki bu artışlar elektrokoksiasyon sonucu mineralize olmuş ve polar yapıya dönüşmüş çözünmüş organik maddelerin ve destabilize olmuş kolloidal yapıların TAK-GO partiküllerinin yüzey alanının artması ve yüzeyde bulunan aktif bölgelere tutunarak çıkış sızıntı suyundan uzaklaşması şeklinde açıklanabilir.

Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık giderim verimlerinin asidik pH (pH 4.2) değerinde artmasının nedeni: Düşük pH değerlerinde H⁺ iyonları konsantrasyonunun artması ile TAK-GO yüzeyinde bulunan negatif yüklerin H⁺ iyonları ile

etkileşiminden sonra nötral veya pozitif hale gelmesi ve çözeltide bulunan negatif yüklü kolloidal yapıların H^+ iyonları tarafından destabilize edilerek kolloidal tanecik yüzeyinde difüze olmuş çift tabakanın sıkıştırılması nedeniyle gerçekleştiği söylenebilir. Bu nedenle çözelti içerisinde bulunan çözünmüş maddeler ve kolloidal yapılar elektrostatik ve kimyasal etkileşimle TAK-GO yüzeyinde adsorbe olmuşlardır. Öte yandan, yüksek pH değerlerinde sızıntı suyu ortamında bulunan OH^- iyonları konsantrasyonunun artması ile sızıntı suyu içerisinde bulunan negatif yüklü yüzeyler ve OH^- iyonları arasındaki iyonik itme kuvvetleri artarak KOİ ve bulanıklık giderim verimleri azalmıştır. NH_3 -N giderim veriminin pH değerinin azalması ile artması elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyunda bulunan klorür türlerinin NH_3 -N ile verdikleri reaksiyon sonucu bu yapıların N_2 ' ye indirgemesi ve düşük pH değerlerinde oluşan amonyum-klor komplekslerinin TAK-GO yüzeyindeki aktif bölgelere adsorplanmasından kaynaklandığı söylenebilir.

Elektro okside olmuş sızıntı çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH_3 -N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri, denge izotermeleri ve termodinamik parametreler

Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH_3 -N ve bulanıklığın giderimine ait adsorpsiyon kinetiklerinin belirlenmesinde pseudo-first-order (yalancı birinci mertebe), pseudo-second-order (yalancı ikinci mertebe) ve intraparticle diffusion (partikül içi difüzyon) eşitlikleri kullanıldı ve bu eşitliklere ait grafikler Şekil 138'de gösterildi.



Şekil 138. Elektro okside olmuş çıkış suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH_3 -N ve bulanıklık giderimine ait adsorpsiyon kinetikleri (KOİ 522 mg- O_2 /L, NH_3 -N 111 mg/L, bulanıklık 4.6 NTU, TAK 5 g/L, karıştırma hızı 300 rpm, pH 7.7.4 ve T 20°C)

Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ gideriminin yüksek korelasyon (R^2 0.997 ve R^2 0.994) katsayılarından dolayı pseudo-first-order ve partikül içi difüzyon modeline uyduğu belirlendi. Ayrıca pseudo-second-order modelinin korelasyon katsayısı da R^2 0.986 olarak belirlendi. KOİ giderimi yüksek korelasyon katsayısından dolayı pseudo-second-order modele de uyabilir. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile $\text{NH}_3\text{-N}$ giderim kinetiği yine yüksek korelasyon katsayılarından dolayı hem pseudo-first-order (R^2 0.985) hem de partikül içi difüzyon (R^2 0.981) modeline uyduğu belirlenmiştir. Ayrıca elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile bulanıklık giderimi ise yine korelasyon katsayılarının yüksek olmasından dolayı hem pseudo-first-order (R^2 0.977) hem de partikül içi difüzyon (R^2 0.978) modeline uyduğu belirlenmiştir. Sızıntı suyundan KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık giderim kinetiklerine ait adsorpsiyon hız sabiti ve korelasyon değerleri Tablo 18’de verilmiştir.

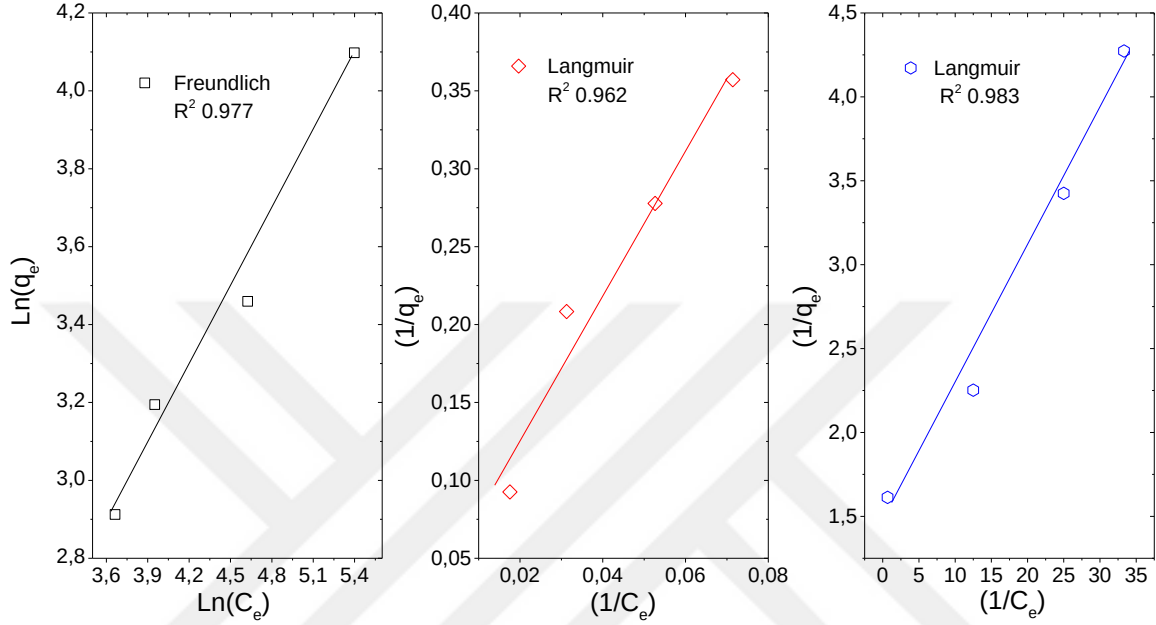
Tablo 18. Elektro Okside Olmuş Çıkış Sızıntı Suyundan TAK-GO Adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık Giderim Kinetiklerine Ait Adsorpsiyon Hız Sabiti ve R^2 Değerleri

KOİ								
Pseudo-first-order			Pseudo-second-order			Partikül içi difüzyon		
k_1 (1/dk.)	q_e (mg/g)	R^2	k_2 (g/mg.dk)	q_e (mg/g)	R^2	k_{id} (mg/g.dk ^{1/2})	C	R^2
0.073	211.1	0.997	0.00033	270	0.984	36.1	0.259	0.994
$\text{NH}_3\text{-N}$								
k_1 (1/dk.)	q_e (mg/g)	R^2	k_2 (g/mg.dk)	q_e (mg/g)	R^2	k_{id} (mg/g.dk ^{1/2})	C	R^2
0.064	35.4	0.986	0.0067	46	0.763	-3.63	5.624	0.981
Bulanıklık								
k_1 (1/dk.)	q_e (mg/g)	R^2	k_2 (g/mg.dk)	q_e (mg/g)	R^2	k_{id} (mg/g.dk ^{1/2})	C	R^2
0.033	1.4	0.969	-	-	-	-0.358	0.324	0.870

Adsorpsiyon izoterm modelleri, sabit sıcaklıkta adsorban yüzeyindeki adsorbat miktarı ile çözeltideki adsorbat konsantrasyonu arasındaki denge ilişkileridir. İzoterm modellerinden maksimum adsorpsiyon kapasitesi belirlenebilir. İzoterm denge sabitleri, kullanılan adsorbanın ağır metal giderim yeteneği ya da ağır metal iyonlarının birim kütlesini uzaklaştırmak için gereken adsorban miktarı hakkında bilgi verir.

Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanıklık gideriminde elde edilen deneysel veriler Langmuir, Freundlich, Temkin ve Dubinin-Radushkevich (D-R) denge izotermi gibi dört farklı modele uyarlanmıştır. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık gideriminde hangi modelin daha uygun olduğunu belirlemek için bağımlı ve bağımsız değişkenler arasındaki ilişkinin

büyükliğini gösteren korelasyon katsayısı (R^2) değerinden yararlanılmıştır. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık gideriminde en uygun izotermin sırası ile Freundlich, Langmuir ve Langmuir izotermi olarak belirlenmiş ve Şekil 139’da gösterilmiştir. Diğer izoterm grafikleri R^2 değerlerinin Freundlich ve Langmuir izoterminin R^2 değerlerinden küçük olduğu için şekille gösterilmemiştir ancak bu izotermelere ait R^2 değerleri ve izoterm sabitleri Tablo 19’da verilmiştir.



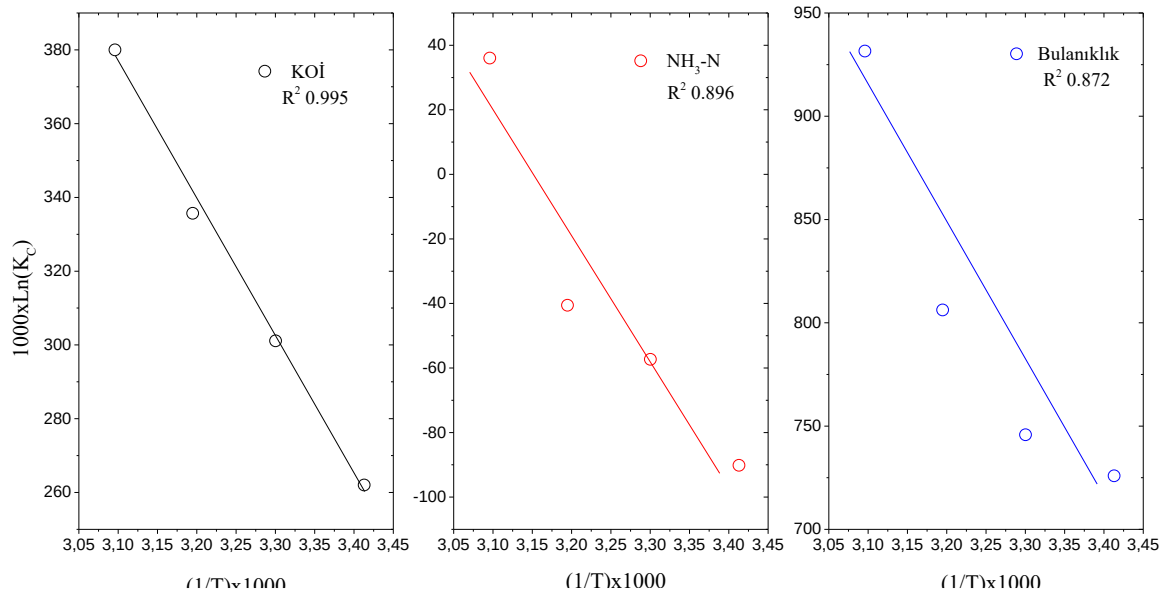
Şekil 139. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve bulanık giderimine ait Langmuir izotermi (TAK 5 g/L, karıştırma hızı 300 rpm, pH 7.2 ve T 20°C)

Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık giderimine yönelik Freundlich ve Langmuir izotermine ait korelasyon katsayıları sırası ile R^2 0.977, 0.962 ve 0.983 olarak belirlenmiştir. Sızıntı suyundan TAK ile KOİ, $\text{NH}_3\text{-N}$ ve Bulanıklık giderimine yönelik yapılan denge çalışmaları ile ilgili izoterm parametrelerine ait sayısal değerler Tablo 19’da verilmiştir.

Tablo 19. Elektro Okside Olmuş Sızıntı Suyundan TAK-GO Adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimi ile İlgili İzoterm Parametreleri ve Korelasyon Katsayıları

Kirletici	İzoterm	İzoterm parametreleri			R ²
KOİ	Langmuir	K _L (L/mg)	Q _m (mg/g)		0.967
		0.0068	87.7		
	Freundlich	K _f (L/mg)	n		0.977
		1.74	1.54		
	Temkin	B ₁	K _T (L/mg)		0.935
		19.19	23.16		
	D-R	β	Q _m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.807
		3E-4	47.46	40.82	
NH ₃ -N	Langmuir	K _L (L/mg)	Q _m (mg/g)		0.962
		0.0072	29.85		
	Freundlich	K _f (L/mg)	n		0.957
		0.23	1.07		
	Temkin	B ₁	K _T (L/mg)		0.877
		0.1	5.51		
	D-R	β	Q _m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.842
		5E-5	8.27	111.8	
Bukanıklık	Langmuir	K _L (L/mg)	Q _m (mg/g)		0.978
		17.35	0.7		
	Freundlich	K _f (L/mg)	n		0.823
		0.6	4.54		
	Temkin	B ₁	K _T (L/mg)		0.909
		684	1.92		
	D-R	β	Q _m (mg/g)	E (kJ/mol)	0.959
		1E-8	1.37	7071	

TAK-GO adsorpsiyonuna ait standart serbest entalpi (ΔH°), standart serbest entropi (ΔS°) ve standart serbest gibbs (ΔG°) enerji değerlerinin belirlenmesinde başlangıç değeri T 20, 30, 40 ve 50°C olan elektro okside olmuş sızıntı suyu başlangıç sıcaklık değerlerinde adsorpsiyon çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Sızıntı suyunun KOİ, NH₃-N ve bulanıklık konsantrasyon değerleri sırası ile 522 mg O₂/L, 111 mg/L ve 4.6 NTU olarak belirlendi. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık kirletici parametrelerine ait dengedeki Kc dağılım katsayılarının sıcaklıkla artması adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğunu göstermektedir. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde TAK-GO adsorpsiyon prosesine ait ΔH° , ΔS° ve ΔG° değerlerinin belirlenmesinde (1/T) değerlerine karşı Ln (Kc) değerlerinin grafiği çizilmiş ve Şekil 140'da verilmiştir.



Şekil 140. Elektro okside olmuş TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık giderimine yönelik $(1/T)$ değerlerine karşı $\ln(K_c)$ grafikleri

Ayrıca TAK-GO adsorpsiyonu ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi ile ilgili termodinamik parametre değerleri Tablo 20’de özetlenmiştir. Tablo 20’de verilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait ΔH° değerlerinin pozitif olmasından dolayı adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğu anlaşılmaktadır. Tablo 20’deki ΔS° değerlerinin pozitif çıkmasının anlamı TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra TAK-GO partiküllerinin yüzeyinde meydana gelen tutunmadan sonra partiküllerin düzensizliğinin arttığı söylenebilir. Ayrıca ΔG° değerlerinin negatif ve pozitif olmasının anlamı TAK-GO adsorpsiyonunun belirtilen sıcaklıklarda kendiliğinden meydana gelip gelemeyeceğini belirtmektedir.

Tablo 20. Elektro Okside Olmuş Sızıntı Suyundan TAK-GO Adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderimine ait ΔG° , ΔH° ve ΔS° Değerleri

ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	KOİ ΔG° (kJ/mol)			
3.05	0.0125	293 K	308 K	313 K	323 K
		-0.613	-0.734	-0.862	-0.987
ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	NH ₃ -N ΔG° (kJ/mol)			
3.08	0,0097	293 K	308 K	313 K	323 K
		0.243	0.146	0.050	-0.047
ΔH° (kJ/mol)	ΔS° (kJ/mol.K)	Bulanıklık ΔG° (kJ/mol)			
5.27	0.023	293 K	308 K	313 K	323 K
		-1.469	-1.169	-1.929	--2.159

SONUÇ VE ÖNERİLER

TAK adsorpsiyonu, TAK-GO adsorpsiyonu, Elektrokoagülasyon prosesi, Kombine Elektrokoagülasyon-TAK prosesi, Elektrokoksiasyon prosesi, Ardışık elektrokoksiasyon /elektrokoagülasyon prosesi, Ardışık elektrokoksiasyon/TAK adsorpsiyonu prosesi ve Ardışık elektrokoksiasyon/TAK-GO adsorpsiyonu prosesleri kullanılarak Bingöl ilinde bulunan düzenli deponi alanı sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri araştırılmış ve bu prosesler ile gerçekleştirilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri bir birleriyle mukayese edilmiştir. Farklı proseslere ait KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri aşağıda verilmiş ve bir birleriyle mukayese edilerek düzenli deponi alanı sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimlerinde en etkili proses belirlenmiş, sonuçlar ve öneriler aşağıdaki gibi özetlenmiştir.

Gerçekleştirilen kesikli adsorpsiyon çalışmalarında TAK adsorbenti kullanılarak sızıntı suyundan optimum KOİ ve bulanıklık giderim verimleri 50°C için sırası ile %47.8 ve %51.8 olarak belirlenmiştir. En yüksek NH₃-N giderim verimi 60°C’de %26.5 olarak belirlendi. Belirlenen deneysel şartlarda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine TAK miktarının etkili olduğu gözlemlendi. Adsorpsiyonda kullanılan TAK miktarı artırılarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artacağı belirlenmiştir. Ancak TAK miktarının arttırılması maliyeti artırması ve TAK adsorpsiyon prosesi ile diğer prosesleri mukayese edebilmek için TAK miktarı 5 g/L’ değerinde sabit tutulmuştur. Sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ gideriminin yüksek korelasyon (R^2 0.992) katsayısından dolayı partikül içi difüzyon modeline uyduğu belirlendi. Sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile NH₃-N ve bulanıklık giderim kinetikleri ise yüksek korelasyon (R^2 0.996 ve R^2 0.994) değerlerinden dolayı hem pseudo-first-order hem de partikül içi difüzyon modele uyduğu belirlendi. Ayrıca sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile bulanıklık giderimi ise R^2 0.995 olmasından dolayı pseudo-first-order modele uyduğu belirlenmiştir. Sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde en uygun izotermin Langmuir izotermi olduğu belirlenmiştir. TAK adsorpsiyonu sonucu dengedeki Kc dağılım katsayılarının sıcaklıkla artması adsorpsiyon prosesinin endotermik bir proses olduğunu göstermektedir. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait ΔH° değerlerinin pozitif olmasından dolayı adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğu anlaşılmaktadır. TAK adsorpsiyonu sonucu ΔS° değerlerinin pozitif çıkmasının anlamı TAK ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra TAK partiküllerinin yüzeyinde meydana gelen tutunmadan sonra partiküllerin düzensizliğinin arttığı söylenebilir. Ayrıca ΔG°

değerlerinin pozitif olmasının nedeni TAK adsorpsiyonunun kendiliğinden meydana gelemeyeceğini ifade etmektedir.

Gerçekleştirilen kesikli adsorpsiyon çalışmalarında TAK-GO adsorbenti kullanılarak sızıntı suyundan optimum KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri 50°C için sırası ile %57.4 ve %37.4 ve 67.5 olarak belirlenmiştir. Belirlenen deneysel şartlarda KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde TAK-GO miktarının etkili olduğu gözlemlenmiştir. Adsorpsiyonda kullanılan TAK-GO miktarının artırılarak KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinin artacağı yapılan jar testleri ile ortaya konulmuştur. Ancak TAK-GO miktarının artırılması maliyeti artırması ve TAK-GO adsorpsiyon prosesini diğer proseslerle mukayese edebilmek için TAK-GO miktarı 5 g/L' değerinde sabit tutulmuştur. TAK prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerini TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile mukayese edebilmek için benzer deneysel şartlarda çalışılmıştır. TAK-GO adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri TAK adsorpsiyonu ile karşılaştırıldığında KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %9.6, %10.9 ve %15.7 olarak artmıştır. Giderim verimlerindeki bu artışlara TAK-GO partiküllerinin yüzey alanının TAK partiküllerinden büyük olması ve TAK-GO yüzeyinde bulunan fonksiyonel grupların TAK yüzeyinde bulunan fonksiyonel gruplardan farklı olmasından kaynaklandığı söylenebilir. Sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ gideriminin yüksek korelasyon (R^2 0.995) katsayısından dolayı partikül içi difüzyon modeline uyduğu belirlendi. Sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile NH₃-N giderim kinetikleri ise yüksek korelasyon (R^2 0.996 ve R^2 0.996) değerlerinden dolayı hem pseudo- first-order hem de partikül içi difüzyon modele uyduğu belirlenmiştir. Ayrıca sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile bulanıklık giderimi ise R^2 0.986 olmasından dolayı Partikül içi difüzyon modeline uyduğu belirlenmiştir. Sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde en uygun izoterm Langmuir izotermi olarak belirlenmiştir. Sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimine yönelik Langmuir izotermine ait korelasyon katsayılarının sırası ile R^2 0.988, 0.986 ve 0.994 olduğu belirlenmiştir. TAK-GO adsorpsiyonuna ait standart serbest entalpi (ΔH°), standart serbest entropi (ΔS°) ve standart serbest gibbs (ΔG°) enerji değerlerinin belirlenmesinde başlangıç sıcaklık değeri T 20, 30, 40 ve 50°C olan sızıntı suyu sıcaklık değerlerinde adsorpsiyon çalışmaları gerçekleştirilmiştir. Bulanıklık kirletici parametrelerine ait dengedeki Kc dağılım katsayılarının sıcaklıkla artması adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğunu göstermektedir. TAK-GO partikülleri ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait ΔH° değerlerinin pozitif olmasından dolayı adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğu belirlenmiştir. ΔS° değerlerinin pozitif çıkmasının anlamı TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra TAK-GO partiküllerinin

yüzeyinde meydana gelen adsorplanmadan sonra partiküllerin düzensizliğinin arttığı söylenebilir. Ayrıca ΔG° değerlerinin pozitif ve negatif anlamı TAK-GO adsorpsiyonunun kendiliğinden meydana gelip gelemeyeceğini ifade etmektedir.

Elektrokoagülasyon prosesinde alüminyum anot ve çelik katot kullanılarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi gerçekleştirilmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile pH 5, pH 9.5 ve pH 5 değerlerinde elde edilmiştir. Bu pH değerlerinde KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %87, %28 ve %62 olarak belirlenmiştir. Elektrokoagülasyonla elde edilen en yüksek KOİ ve bulanıklık giderim verimleri TAK adsorpsiyonu sonucu elde edilen en yüksek KOİ ve bulanıklık giderim verimleri ile karşılaştırıldığında KOİ ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %39.4 ve %10.2 artmıştır. Elektrokoagülasyonla pH 9.5 değerinde elde edilen NH₃-N giderim verimi TAK adsorpsiyonu ile karşılaştırıldığında %1.5 artmıştır. Elektrokoagülasyonla elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi TAK-GO adsorpsiyonu sonucu elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi ile karşılaştırıldığında KOİ giderim verimi %29.6 olarak artmıştır. Elektrokoagülasyonla pH 9.5 değerinde elde edilen NH₃-N giderim verimi TAK-GO adsorpsiyonu ile karşılaştırıldığında %9.4 azalmıştır. Elektrokoagülasyonla pH 5 değerinde elde edilen bulanıklık giderim verimi TAK-GO adsorpsiyonu ile karşılaştırıldığında bulanıklık giderim veriminde %5.5'lik bir azalma belirlenmiştir. Sızıntı suyunun başlangıç pH'sı, sıcaklık, akım yoğunluğu, elektrotlar arası mesafe, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun fonksiyonu olarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde reaksiyon kinetikleri yüksek korelasyon katsayılarına sahip olmasından dolayı ($R^2 > 0.95$) pseudo-ikinci merteye reaksiyon kinetiğine uyduğu belirlenmiştir. KOİ giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci merteye hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Sızıntı suyundan KOİ gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri pH 5 değerinde $1.37 \cdot 10^{-4} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. NH₃-N giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci merteye hız sabitinin pH, sıcaklık, akım yoğunluğu, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ve elektrotlar arası mesafenin azalması ile artmıştır. Sızıntı suyundan NH₃-N gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri 10 mM'lık NaCl konsantrasyonu için $5.23 \cdot 10^{-5} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Bulanıklık giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci merteye hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e yükselmesi ile hız sabiti değeri artmış ancak sıcaklık değerinin 50°C'den

60°C'ye yükselmesi ile hız sabiti değeri de azalmıştır. Ayrıca bulanıklık giderimi için pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200rpm' yükselmesi ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır. Sızıntı suyundan bulanıklık gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri NaCl konsantrasyonun 10 mM olduğunda $6.25 \cdot 10^{-4} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir.

Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu prosesinde alüminyum anot ve çelik katot ve 5 g/L TAK kullanılarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi gerçekleştirilmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile pH 5, pH 9.5 ve pH 5 değerlerinde elde edilmiştir. En yüksek KOİ ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 değerinde sırası ile %88 ve %91 olarak belirlenmiştir. En yüksek NH₃-N giderim verimi ise pH 9.5 değerinde %40 olarak bulunmuştur. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu ile elde edilen en yüksek KOİ ve bulanıklık giderim verimleri TAK adsorpsiyonu sonucu elde edilen en yüksek KOİ ve bulanıklık giderim verimleri ile karşılaştırıldığında KOİ ve bulanıklık giderim verimleri sırası ile %38.2 ve %39.2 artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu ile pH 9.5 değerinde elde edilen NH₃-N giderim verimi TAK adsorpsiyonu ile karşılaştırıldığında %13.5 olarak artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu ile elde edilen KOİ giderim verimi TAK-GO adsorpsiyonu sonucu elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi ile karşılaştırıldığında KOİ giderim verimi %28.6 olarak artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu pH 9.5 değerinde elde edilen NH₃-N giderim verimi TAK-GO adsorpsiyonu ile pH 9.5 değerinde elde edilen NH₃-N verimi ile karşılaştırıldığında %2.6 artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek bulanıklık giderim verimi TAK-GO adsorpsiyonu ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek bulanıklık giderim verimi ile karşılaştırıldığında %23.5 artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi elektrokoagülasyonla pH 5 değerinde elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi ile karşılaştırıldığında %1 olarak artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu ile pH 9.5 değerinde elde edilen en yüksek NH₃-N giderim verimi elektrokoagülasyonla pH 9.5 değerinde elde edilen en yüksek NH₃-N giderim verimi ile karşılaştırıldığında %12 olarak artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek bulanıklık giderim verimi elektrokoagülasyonla pH 5 değerinde elde edilen en yüksek bulanıklık giderim verimi ile karşılaştırıldığında %29 olarak artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi yüksek korelasyon katsayılarından ($R^2 > 0.95$) dolayı reaksiyon kinetikleri pseudo-ikinci mertebe reaksiyon kinetiğine uyduğu belirlenmiştir. Kombine prosesler ile KOİ giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız

sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerinin 20°C'den 50°C'e yükselmesi ile reaksiyon hız sabiti değeri artmış ve çözelti sıcaklığının 50°'den 60°C'ye yükselmesi azalmıştır. Ayrıca KOİ giderimi için pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm'e çıkması ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır. Kombine proses ile sızıntı suyundan KOİ gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri başlangıç çözelti sıcaklık değeri T 50°C değerinde $9.27 \cdot 10^{-5} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Kombine prosesler ile NH₃-N giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabitinin pH, sıcaklık, akım yoğunluğu, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ve elektrotlar arası mesafenin azalması ile artmıştır. Kombine elektrokoagülasyon prosesinde bulanıklık giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e yükselmesi ile hız sabiti değeri artmış ancak sıcaklık değerinin 50°'den 60°C'ye yükselmesi ile hız sabiti değeri azalmıştır. Ayrıca bulanıklık giderimi için pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm'e yükselmesi ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır.

Elektrooksidasyon prosesinde yeni üretilen PdO-CoO anot ve çelik katot kullanılarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi gerçekleştirilmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 değerinde elde edilmiştir. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 değerinde sırası ile %55.9 ve %47.9 ve % 93 olarak belirlenmiştir. Elektrooksidasyon ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi elektrokoagülasyonla pH 5 değerinde elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi ile mukayese edildiğinde KOİ giderim veriminde %31.1'lık bir azalma görülmüştür. Elektrooksidasyon ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri elektrokoagülasyonla pH 5 değerinde elde edilen en yüksek NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile mukayese edildiğinde NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde sırası ile %19.9 ve inde %31'lık bir artış görülmüştür. Sızıntı suyu çözelti pH'sı, sıcaklık, akım yoğunluğu, elektrotlar arası mesafe, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun fonksiyonu olarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi yüksek korelasyon katsayılarından ($R^2 > 0.95$) dolayı reaksiyon kinetikleri pseudo-ikinci mertebe reaksiyon kinetiğine uyduğu belirlenmiştir. KOİ giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar Pseudo-ikinci mertebe hız sabiti değeri akım yoğunluğu ve

karıştırma hızının artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e artması ile reaksiyon hız sabiti değeri artmış ve çözelti sıcaklığının 50°'den 60°C'ye yükselmesi ile azalmıştır. Sızıntı suyundan KOİ gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değerleri 10 M NaCl konsantrasyonu ve pH 5 değerinde sırası ile $2.98 \cdot 10^{-6} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ ve $2.24 \cdot 10^{-6} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Elektrooksidasyon prosesi ile NH₃-N giderimine ait pseudo-ikinci mertebe hız sabiti değerleri çözelti pH değeri ve elektrotlar arası mesafenin azalması ile artmış akım yoğunluğu, çözelti sıcaklığı, karıştırma hızı NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonlarının artması ile artmıştır. Sızıntı suyundan NH₃-N gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri 10 mM'lık NaCl konsantrasyonu için $1.95 \cdot 10^{-5} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir. Bulanıklık giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabiti değerinin elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ile artmış akım yoğunluğu, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonlarının artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e yükselmesi ile reaksiyon hız sabiti değeri artmış ancak sıcaklık değerinin 50°'den 60°C'ye yükselmesi ile hız sabiti değeri de azalmıştır. Sızıntı suyundan bulanıklık gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri NaCl konsantrasyonun 10 mM olduğu zaman $5.33 \cdot 10^{-4} \text{ L mg}^{-1} \text{ dak}^{-1}$ olarak belirlenmiştir.

Ti/PdO-CoO anot ile elektrookside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerine pH 5 olan başlangıç değerlerinde ulaşılmıştır. En yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 değerinde sırası ile %88.5, 76.5 ve % 99.8 olarak belirlenmiştir. Ardışık elektrooksidasyon/elektrokoagülasyon ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi elektrooksidasyon prosesi ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi ile mukayese edildiğinde KOİ giderim veriminde %32.6 bir artış görülmüştür. Ardışık elektrooksidasyon/koagülasyon prosesi ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri elektrokoagülasyonla pH 5 değerinde elde edilen en yüksek NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri ile mukayese edildiğinde NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde sırası ile %28.6 ve %6.9'lık bir artış görülmüştür. Sızıntı suyu başlangıç çözelti pH değeri, sıcaklık, akım yoğunluğu, elektrotlar arası mesafe, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun fonksiyonu olarak elektro okside olmuş sızıntı suyundan elektrokoagülasyon prosesi ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde yüksek korelasyon katsayılarından ($R^2 > 0.95$) dolayı reaksiyon kinetikleri pseudo-ikinci mertebe reaksiyon kinetiğine uyduğu belirlenmiştir. KOİ giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafe ve pH değerlerinin azalması ve

NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e çıkması ile reaksiyon hız sabiti değeri artmış ve çözelti sıcaklığının 50°'den 60°C'ye yükselmesi ile azalmıştır. Ayrıca KOİ giderimi için pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm'e çıkması ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır. Sızıntı suyundan KOİ gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri 10 mM'lık NaCl konsantrasyonu değerinde 0.0001 L mg⁻¹ dak⁻¹ olarak belirlenmiştir. NH₃-N giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabitinin pH, sıcaklık, akım yoğunluğu, karıştırma hızı, NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ve elektrotlar arası mesafenin azalması ile artmıştır. Sızıntı suyundan NH₃-N gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri 10 mM'lık NaCl konsantrasyonu için 3.9.10⁻⁴ L mg⁻¹ dak⁻¹ olarak belirlenmiştir. Bulanıklık giderimi ile ilgili gerçekleştirilen hesaplamalar neticesinde elde edilen sonuçlar pseudo-ikinci mertebe hız sabitinin akım yoğunluğunun artması, elektrotlar arası mesafenin ve pH değerlerinin azalması ve NaCl ve Na₂SO₄ elektrolit konsantrasyonunun artması ile artmıştır. Ayrıca sıcaklık değerlerinin 20°C'den 50°C'e yükselmesi ile hız sabiti değeri artmış ancak sıcaklık değerinin 50°'den 60°C'ye yükselmesi ile hız sabiti değeri azalmıştır. Ayrıca bulanıklık giderimi için pseudo-ikinci mertebe reaksiyon hız sabiti karıştırma hızının 100 rpm'den 200 rpm değerine yükselmesi ile artmış ancak 200 rpm'den 300 rpm'e yükselmesi ile azalmıştır. Sızıntı suyundan bulanıklık gideriminde en büyük reaksiyon hız sabiti değeri NaCl konsantrasyonunun 10 mM olduğunda 0.057 L mg⁻¹ dak⁻¹ olarak belirlenmiştir.

Ti/(PdO-CoO) anot ile elektrookside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 olan başlangıç değerinde elde edilmiştir. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 değerinde sırası ile %75.1, 69.1 ve % 97.1 olarak belirlenmiştir. Ardışık elektrooksidasyon/TAK adsorpsiyonu ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi elektrooksidasyon prosesi ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi ile mukayese edildiğinde KOİ giderim veriminde %19.1'lık bir artış görülmüştür. Ardışık elektrooksidasyon/TAK adsorpsiyon prosesi ile pH 5 değerinde elde edilen en yüksek NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri elektrooksidasyon prosesi ile mukayese edildiğinde NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde sırası ile %21.2 ve %4.2'lik bir artış görülmüştür. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ giderimi yüksek korelasyon (R² 0.985) katsayısından dolayı partikül içi difüzyon modeline uyduğu belirlenmiştir. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile NH₃-N ve bulanıklık giderim kinetikleri ise yüksek korelasyon (R² 0.987) değerinden dolayı partikül içi difüzyon modele uyduğu belirlenmiştir. Ayrıca elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK

adsorpsiyonu ile bulanıklık giderimi ise R^2 0.988 olmasından dolayı pseudo-second-order modele uyduğu belirlenmiştir. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK ile KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık gideriminde en uygun izoterm Langmuir izotermi olarak belirlenmiştir. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK adsorpsiyonu ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık kirleticisi parametrelerine ait denge K_c dağılım katsayılarının sıcaklıkla artması adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğunu göstermektedir. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait ΔH° değerlerinin pozitif olmasından dolayı adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğu anlaşılmaktadır. ΔS° değerlerinin pozitif çıkmasının anlamı TAK ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra TAK partiküllerinin yüzeyinde meydana gelen adsorpsiyondan sonra partiküllerin düzensizliğinin arttığı söylenebilir. Ayrıca ΔG° değerlerinin negatif olması TAK adsorpsiyonunun belirtilen sıcaklıklarda kendiliğinden meydana gelebileceğini ifade etmektedir.

Ti/(PdO-CoO) anot ile elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 5 olan başlangıç değerinde elde edilmiştir. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile en yüksek KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri pH 4.2 değerinde sırası ile %81.3, %75.5 ve % 98.1 olarak belirlenmiştir. Ardışık elektrooksidasyon/TAK-GO adsorpsiyonu ile elde edilen en yüksek KOİ giderim verimi elektrooksidasyon prosesi ile elde edilen KOİ giderim verimi ile mukayese edildiğinde KOİ giderim veriminde %25.4'lık bir artış görülmüştür. Ardışık elektrooksidasyon/TAK-GO adsorpsiyon prosesi ile elde edilen en yüksek NH₃-N ve bulanıklık giderim verimleri elektrooksidasyon prosesi ile mukayese edildiğinde NH₃-N ve bulanıklık giderim verimlerinde sırası ile %27.6 ve %5.2'lık bir artış görülmüştür. Elektro okside olmuş çıkış sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile KOİ gideriminin yüksek korelasyon (R^2 0.997 ve R^2 0.994) katsayılarından dolayı pseudo-first-order ve partikül içi difüzyon modeline uyduğu belirlenmiştir. Ayrıca pseudo-second-order modelinin korelasyon katsayısı da R^2 0.986 olarak belirlenmiştir. KOİ giderimi yüksek korelasyon katsayısından dolayı pseudo-second-order modele de uygun olduğu belirlenmiştir. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile NH₃-N giderim kinetiği yine yüksek korelasyon katsayılarından dolayı hem pseudo-first-order (R^2 0.985) hem de partikül içi difüzyon (R^2 0.981) modeline uyduğu belirlenmiştir. Ayrıca elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO adsorpsiyonu ile bulanıklık giderimi ise yine korelasyon katsayılarının yüksek olmasından dolayı hem pseudo-first-order (R^2 0.977) hem de partikül içi difüzyon (R^2 0.978) modeline uyduğu belirlenmiştir. Elektro okside olmuş sızıntı suyundan TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde en uygun izotermin sırası ile Freundlich, Langmuir ve Langmuir izotermi olarak belirlenmiştir. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık kirleticisi parametrelerine ait denge K_c dağılım katsayılarının

sıcaklıkla artması adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğunu göstermektedir. KOİ, NH₃-N ve bulanıklık parametrelerine ait ΔH° değerlerinin pozitif olmasından dolayı adsorpsiyon prosesinin endotermik olduğu anlaşılmaktadır. ΔS° değerlerinin pozitif çıkmasının anlamı TAK-GO ile KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminden sonra TAK-GO partiküllerinin yüzeyinde meydana gelen adsorpsiyondan sonra partiküllerin düzensizliğinin arttığı söylenebilir. Ayrıca ΔG° değerlerinin negatif ve pozitif olmasının anlamı TAK-GO adsorpsiyonunun belirtilen sıcaklıklarda kendiliğinden meydana gelip gelemeyeceğini belirtmektedir.

Sonuç olarak TAK-GO adsorpsiyonu ile sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimi TAK adsorpsiyonu prosesinden daha etkili olduğu bulundu. Elektrokoagülasyon prosesi pH 5 değerinde sızıntı suyundan %87 KOİ giderimi ile TAK ve TAK-GO adsorpsiyonu ve elektrokoksidasyon ve kombine elektrokoagülasyon prosesinden daha etkili bir proses olduğu belirlendi. Diğer prosesler içerisinde pH 5 değerinde %88.5 KOİ, %76.5 NH₃-N ve %99.8 bulanıklık giderimi ile ardışık elektrokoksidasyon/elektrokoagülasyon prosesi sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde en etkili proses olarak belirlendi. Bu prosesi müteakiben ardışık elektrokoksidasyon/TAK-GO adsorpsiyonu ve elektrokoksidasyon/TAK adsorpsiyon prosesi KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde etkili prosesler olarak belirlendi. Yalnızca elektrokoksidasyon prosesinin sızıntı suyundan NH₃-N ve bulanıklık gideriminde en uygun proses olduğu ortaya konuldu. Ancak gerek maliyet gerek işletme süresi dikkate alındığında pH 5 değerinde %86 KOİ ve %91 bulanıklık giderim verimi ile kombine elektrokoagülasyon/TAK adsorpsiyonunun sızıntı suyundan KOİ ve bulanıklık gideriminde etkili bir proses olduğu belirlenmiştir.

Farklı prosesler kullanılarak sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde kullanılan proseslere yönelik yapılacak öneriler şu şekildedir: Yalnız başına kullanılan TAK ve TAK-GO proseslerinin sızıntı suyundan ancak ileri arıtım amacıyla KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde kullanılması gerektiği önerilmektedir. Aksi takdirde aşırı miktarda adsorbent tüketimine neden olacağı sonucuna varılmıştır. Elektrokoksidasyon ve elektrokoksidasyonla ilgili ardışık proseslerle gerçekleştirilen KOİ, NH₃-N ve bulanıklık giderimlerinin hem giderim maliyetinin yüksek olması hem de uzun işletme süresinden dolayı daha zorlu prosesler olduğu sonucuna varılmıştır. Kullanılan prosesler içerisinde gerek giderim maliyetlerinin düşük olması gerekse giderim verimlerinin yüksek ve işletim süresinin kısa olmasından dolayı kombine elektrokoagülasyon-TAK prosesinin sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde kullanılabileceği önerilmektedir. Ayrıca elektrokoagülasyon prosesinin tek başına kullanılması durumunda akım yoğunluğunun artırılması durumunda sızıntı suyundan KOİ, NH₃-N ve bulanıklık gideriminde daha etkili olacağı sonucuna varılmıştır.

Elde edilen veriler ışığında, sızıntı suyu arıtımında KOİ kirletici parametresinin gideriminde toplam tüketim maliyeti açısından kombine Elektrokoagülasyon-TAK adsorpsiyon prosesinin elektrokoagülasyon ve elektrooksidasyon gibi kimyasal proseslerden daha düşük maliyetli bir proses olduğu belirlenmiştir.



KAYNAKÇA

- A. Al-Raad, A., Hanafiah, M. M., Naje, A. S., Ajeel, M. A., O. Basheer, A., Ali Aljayashi, T., & Ekhwan Toriman, M. (2019). Treatment of saline water using electrocoagulation with combined electrical connection of electrodes. *Processes*, 7(5), 242.
- Abdel-Fatah, M. A. (2018). Nanofiltration systems and applications in wastewater treatment. *Ain Shams Engineering Journal*, 9(4), 3077–3092.
- Abdelhay, A., Jum'h, I., Abdulhay, E., Al-Kazwini, A., & Alzubi, M. (2017). Anodic oxidation of slaughterhouse wastewater on boron-doped diamond: process variables effect. *Water Science and Technology*, 76(12), 3227–3235.
- Abdulhussain, A. A., Guo, J., Liu, Z. P., Pan, Y. Y., & Wisaam, S. (2009). Review on landfill leachate treatments. *American Journal of Applied Sciences*, 6(4), 672–684.
- Abood, A. R., Bao, J., Du, J., Zheng, D., & Luo, Y. (2014). Non-biodegradable landfill leachate treatment by combined process of agitation, coagulation, SBR and filtration. *Waste Management*, 34(2), 439–447.
- Adhoum, N., & Monser, L. (2004). Decolourization and removal of phenolic compounds from olive mill wastewater by electrocoagulation. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 43(10), 1281–1287.
- Adigüzel, Z. (2015). *Nanokristal Ni-W elektrolitik kaplamaların korozyon karakteristikleri*. Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Afef, B., Sana, N., Amel, C., Khaled, B., Wided, B., & Elimame, E. (2019). High-rate humic acid removal from cellulose and paper industry wastewater by combining electrocoagulation process with adsorption onto granular activated carbon. *Ind. Crops Prod.*, 140, 111715.
- Ahammad, S. Z., Graham, D. W., & Dolfing, J. (2020). Wastewater treatment: biological. In *Managing Water Resources and Hydrological Systems* (pp. 561–576). CRC Press.
- Ahn, W.-Y., Kang, M.-S., Yim, S.-K., & Choi, K.-H. (2002). Advanced landfill leachate treatment using an integrated membrane process. *Desalination*, 149(1–3), 109–114.
- Akyol, A. (2012). Treatment of paint manufacturing wastewater by electrocoagulation. *Desalination*, 285, 91–99.
- Al-Qodah, Z., Tawalbeh, M., Al-Shannag, M., Al-Anber, Z., & Bani-Melhem, K. (2020). Combined electrocoagulation processes as a novel approach for enhanced pollutants removal: A state-of-the-art review. *Science of The Total Environment*, 744, 140806.
- Al-Raad, A. A., Hanafiah, M. M., Naje, A. S., & Ajeel, M. A. (2020). Optimized parameters of the electrocoagulation process using a novel reactor with rotating anode for saline water treatment. *Environmental Pollution*, 265, 115049.
- An, C., Huang, G., Yao, Y., & Zhao, S. (2017). Emerging usage of electrocoagulation technology for oil removal from wastewater: A review. *Science of the Total Environment*, 579, 537–556.
- Anglada, A., Urtiaga, A., & Ortiz, I. (2009). Contributions of electrochemical oxidation to waste-water treatment: fundamentals and review of applications. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 84(12), 1747–1755.

- Ashok, K. C., & Sharma, A. K. (2013). Removal of turbidity. *COD and BOD from Secondarily Treated Sewage Water by Electrolytic Treatment*. *Appl Water Sci*. Doi, 10.
- Aslan, A. (2020). *Badem kabuğu ve kayısı çekirdeği kabuğu kullanılarak sabit yataklı kolonda adsorpsiyon ile sulu çözeltilerden boyar madde giderimi*. Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Aslan, M. (2016). Membran teknolojileri. *TC Çevre ve Şehircilik Bakanlığı*, 286.
- Association, A. P. H. (2005). APHA–AWWA–WPCF, Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater. *American Water Works Association*, New York.
- Aswathy, P., Gandhimathi, R., Ramesh, S. T., & Nidheesh, P. V. (2016). Removal of organics from bilge water by batch electrocoagulation process. *Separation and Purification Technology*, 159, 108–115.
- Babu, R. R., Bhadrinarayana, N. S., Begum, K., & Anantharaman, N. (2007). Treatment of tannery wastewater by electrocoagulation. *Journal of the University of Chemical Technology and Metallurgy*, 42(2), 201–206.
- Balci, A. (2018). *Astrazon kırmızısı ve astrazon mavisinin ticari aktif karbon üzerine adsorpsiyonu ve adsorpsiyon prosesinin optimizasyonu*. Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Barhoumi, A., Ncib, S., Chibani, A., Brahmi, K., Bouguerra, W., & Elaloui, E. (2019). High-rate humic acid removal from cellulose and paper industry wastewater by combining electrocoagulation process with adsorption onto granular activated carbon. *Industrial Crops and Products*, 140, 111715.
- Bassyouni, D. G., Hamad, H. A., El-Ashtoukhy, E. S. Z., Amin, N. K., & Abd El-Latif, M. M. (2017). Comparative performance of anodic oxidation and electrocoagulation as clean processes for electrocatalytic degradation of diazo dye Acid Brown 14 in aqueous medium. *Journal of Hazardous Materials*, 335, 178–187.
- Bayramoglu, M., Kobya, M., Can, O. T., & Sozbir, M. (2004). Operating cost analysis of electrocoagulation of textile dye wastewater. *Separation and Purification Technology*, 37(2), 117–125.
- Bellebia, S., Kacha, S., Boubarka, Z., Bouyakoub, A. Z., & Derriche, Z. (2009). Color removal from acid and reactive dye solutions by electrocoagulation and electrocoagulation/adsorption processes. *Water Environment Research*, 81(4), 382–393.
- Bellebia, Sohbi, Kacha, S., Bouyakoub, A. Z., & Derriche, Z. (2012). Experimental investigation of chemical oxygen demand and turbidity removal from cardboard paper mill effluents using combined electrocoagulation and adsorption processes. *Environmental Progress & Sustainable Energy*, 31(3), 361–370.
- Benamor, W. L. A. A. W. M. A., & Hilal, N. (2010). CHITOSAN AS NATURAL COAGULANT IN. *Process Biochem*, 45, 1437–1444.
- Benhelal, E., Rashid, M. I., Rayson, M. S., Oliver, T. K., Brent, G., Stockenhuber, M., & Kennedy, E. M. (2019). “ACEME”: Synthesis and characterization of reactive silica residues from two stage mineral carbonation Process. *Environmental Progress & Sustainable Energy*, 38(3), e13066.
- Bilgili, M. S. (2006). *Katı atık düzenli depo sahalarında atıkların aerobik ve anaerobik ayrışması üzerine sızıntı suyu geri devrinin etkileri*.
- Biroğul, N. (2012). *Bir tekstil atık suyunun koagülasyon–flokülasyon–membran filtrasyon süreçleri ile arıtılabilirliğinin incelenmesi*. Yüksek Lisans Tezi, Eskişehir Osmangazi Üniversitesi, Fen Bilimleri

- Bouhezila, F., Hariti, M., Lounici, H., & Mameri, N. (2011). Treatment of the OUED SMAR town landfill leachate by an electrochemical reactor. *Desalination*, 280(1–3), 347–353.
- Cabeza, A., Urtiaga, A., Rivero, M.-J., & Ortiz, I. (2007). Ammonium removal from landfill leachate by anodic oxidation. *Journal of Hazardous Materials*, 144(3), 715–719.
- Cai, J., Zhou, M., Yang, W., Pan, Y., Lu, X., & Serrano, K. G. (2018). Degradation and mechanism of 2, 4-dichlorophenoxyacetic acid (2, 4-D) by thermally activated persulfate oxidation. *Chemosphere*, 212, 784–793.
- Camcıoğlu, Ş. (2016). *Kağıt endüstrisi atıksularının elektrokimyasal yöntemle arıtılması*. Doktora Tezi, Ankara Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya
- Caregnato, P., Gara, P. D., Bosio, G. N., Mártire, D. O., & Gonzalez, M. C. (2007). Reactions of $\text{Cl}^\bullet/\text{Cl}_2^{\bullet-}$ radicals with the nanoparticle silica surface and with humic acids: Model reactions for the aqueous phase chemistry of the atmosphere. *Photochemistry and Photobiology*, 83(4), 944–951.
- Çeçen, F., & Aktaş, Ö. (2004). Aerobic co-treatment of landfill leachate with domestic wastewater. *Environmental Engineering Science*, 21(3), 303–312.
- Chen, G. (2004). Electrochemical technologies in wastewater treatment. *Separation and Purification Technology*, 38(1), 11–41.
- Chen, L., Lei, C., Li, Z., Yang, B., Zhang, X., & Lei, L. (2018). Electrochemical activation of sulfate by BDD anode in basic medium for efficient removal of organic pollutants. *Chemosphere*, 210, 516–523.
- Chen, W., Zhuo, X., He, C., Shi, Q., & Li, Q. (2020). Molecular investigation into the transformation of dissolved organic matter in mature landfill leachate during treatment in a combined membrane bioreactor-reverse osmosis process. *Journal of Hazardous Materials*, 397, 122759.
- Chen, X., Chen, G., & Yue, P. L. (2000). Separation of pollutants from restaurant wastewater by electrocoagulation. *Separation and Purification Technology*, 19(1–2), 65–76.
- Chen, Z., Liu, S., Huang, J., Huang, W., Chen, L., Cui, Y., Du, Y., & Fu, R. (2021). Molecular level design of nitrogen-doped well-defined microporous carbon spheres for selective adsorption and electrocatalysis. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 13(10), 12025–12032.
- Chou, W.-L., Wang, C.-T., & Chang, S.-Y. (2009). Study of COD and turbidity removal from real oxide-CMP wastewater by iron electrocoagulation and the evaluation of specific energy consumption. *Journal of Hazardous Materials*, 168(2–3), 1200–1207.
- Colthup, N. (2012). *Introduction to infrared and Raman spectroscopy*. Elsevier.
- Czarnetzki, L. R., & Janssen, L. J. J. (1992). Formation of hypochlorite, chlorate and oxygen during NaCl electrolysis from alkaline solutions at an $\text{RuO}_2/\text{TiO}_2$ anode. *Journal of Applied Electrochemistry*, 22(4), 315–324.
- da Silva, S. W., do Prado, J. M., Heberle, A. N. A., Schneider, D. E., Rodrigues, M. A. S., & Bernardes, A. M. (2019). Electrochemical advanced oxidation of Atenolol at Nb/BDD thin film anode. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 844, 27–33.
- Dai, Q., Zhou, J., Weng, M., Luo, X., Feng, D., & Chen, J. (2016). Electrochemical oxidation metronidazole with Co modified PbO_2 electrode: Degradation and mechanism. *Separation and Purification Technology*, 166, 109–116.

- Daneshvar, N., Sorkhabi, H. A., & Kasiri, M. B. (2004). Decolorization of dye solution containing Acid Red 14 by electrocoagulation with a comparative investigation of different electrode connections. *Journal of Hazardous Materials*, 112(1–2), 55–62.
- Dash, B. P., & Chaudhari, S. (2005). Electrochemical denitrification of simulated ground water. *Water Research*, 39(17), 4065–4072.
- David, C., Arivazhagan, M., & Tuvakara, F. (2015). Decolorization of distillery spent wash effluent by electro oxidation (EC and EF) and Fenton processes: a comparative study. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 121, 142–148.
- Davila, J. A., Machuca, F., & Marrianga, N. (2011). Treatment of vinasses by electrocoagulation–electroflotation using the Taguchi method. *Electrochimica Acta*, 56(22), 7433–7436.
- Deborde, M., & Von Gunten, U. R. S. (2008). Reactions of chlorine with inorganic and organic compounds during water treatment—kinetics and mechanisms: a critical review. *Water Research*, 42(1–2), 13–51.
- Demir, E., & Yalçın, H. (2014). Adsorbentler: sınıflandırma, özellikler, kullanım ve öngörüler. *Türk Bilimsel Derlemeler Dergisi*, 2, 70–79.
- Demirbas, E., & Kobya, M. (2017). Operating cost and treatment of metalworking fluid wastewater by chemical coagulation and electrocoagulation processes. *Process Safety and Environmental Protection*, 105, 79–90.
- Deng, Y., & Englehardt, J. D. (2007). Electrochemical oxidation for landfill leachate treatment. *Waste Management*, 27(3), 380–388.
- Deng, Y., Jung, C., Zhao, R., Torrens, K., & Wu, L. (2018). Adsorption of UV-quenching substances (UVQS) from landfill leachate with activated carbon. *Chemical Engineering Journal*, 350, 739–746.
- Devi, R. (2010). Innovative technology of COD and BOD reduction from coffee processing wastewater using avocado seed carbon (ASC). *Water, Air, and Soil Pollution*, 207(1), 299–306.
- Devi, R., & Dahiya, R. P. (2006). Chemical oxygen demand (COD) reduction in domestic wastewater by fly ash and brick kiln ash. *Water, Air, and Soil Pollution*, 174(1), 33–46.
- Devi, R., & Dahiya, R. P. (2008). COD and BOD removal from domestic wastewater generated in decentralised sectors. *Bioresource Technology*, 99(2), 344–349.
- Devi, R., Singh, V., & Kumar, A. (2008). COD and BOD reduction from coffee processing wastewater using Avacado peel carbon. *Bioresource Technology*, 99(6), 1853–1860.
- Dimoglo, E. (n.d.). electroflotation as a combined process for the laundry wastewater purification and reuse, J. *Water Process Eng*, 31.
- Dinibütün Katip, N. (2016). *Adsorpsiyonlu ısı pompa sistemlerinde alternatif malzemelerle gaz adsorpsiyonunun fizikokimyasal parametrelerinin belirlenmesi*. Uludağ Üniversitesi.
- Dubin, M. M. (1947). The equation of the characteristic curve of activated charcoal. *Dokl. Akad. Nauk. SSSR.*, 55, 327–329.
- El-Taweel, Y. A., Nassef, E. M., Elkheriany, I., & Sayed, D. (2015). Removal of Cr (VI) ions from waste water by electrocoagulation using iron electrode. *Egyptian Journal of Petroleum*, 24(2), 183–192.
- Elkins, K. M., & Nelson, D. J. (2002). Spectroscopic approaches to the study of the interaction of aluminum with humic substances. *Coordination Chemistry Reviews*, 228(2), 205–225.

- Elmas, A. (2014). *Çinkonun perlit ve kitosan modifiye perlit ile adsorpsiyonu ve adsorpsiyon özelliklerinin karşılaştırılması*. Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Espinoza-Quiñones, F. R., Fornari, M. M. T., Módenes, A. N., Palácio, S. M., da Silva Jr, F. G., Szymanski, N., Kroumov, A. D., & Trigueros, D. E. G. (2009). Pollutant removal from tannery effluent by electrocoagulation. *Chemical Engineering Journal*, 151(1–3), 59–65.
- Fellner, J., & Brunner, P. H. (2010). Modeling of leachate generation from MSW landfills by a 2-dimensional 2-domain approach. *Waste Management*, 30(11), 2084–2095.
- Fernandes, A., Pacheco, M. J., Ciriaco, L., & Lopes, A. (2015). Review on the electrochemical processes for the treatment of sanitary landfill leachates: present and future. *Applied Catalysis B: Environmental*, 176, 183–200.
- Ferraz, F. M., & Yuan, Q. (2020). Performance of oat hulls activated carbon for COD and color removal from landfill leachate. *Journal of Water Process Engineering*, 33, 101040.
- Foo, K. Y., Lee, L. K., & Hameed, B. H. (2013). Batch adsorption of semi-aerobic landfill leachate by granular activated carbon prepared by microwave heating. *Chemical Engineering Journal*, 222, 259–264.
- Freundlich, H. M. F. (1906). Over the adsorption in solution. *J. Phys. Chem*, 57(385471), 1100–1107.
- Gandhimathi, R., Durai, N. J., Nidheesh, P. V., Ramesh, S. T., & Kanmani, S. (2013). Use of combined coagulation-adsorption process as pretreatment of landfill leachate. *Iranian Journal of Environmental Health Science & Engineering*, 10(1), 1–7.
- Ganiyu, N. (n.d.). mechanisms and reactivity of electrogenerated reactive species at thin-film boron-doped diamond (BDD) electrodes during electrochemical wastewater treatment. *Electro. Chem*, 6, 2379.
- Gendel, Y., & Lahav, O. (2012). Revealing the mechanism of indirect ammonia electrooxidation. *Electrochimica Acta*, 63, 209–219.
- Ghanbari, F., Wu, J., Khatebasreh, M., Ding, D., & Lin, K.-Y. A. (2020). Efficient treatment for landfill leachate through sequential electrocoagulation, electrooxidation and PMS/UV/CuFe₂O₄ process. *Separation and Purification Technology*, 242, 116828.
- Gheraout, D., Gheraout, B., Saiba, A., Boucherit, A., & Kellil, A. (2009). Removal of humic acids by continuous electromagnetic treatment followed by electrocoagulation in batch using aluminium electrodes. *Desalination*, 239(1–3), 295–308.
- Ghimire, U., Jang, M., Jung, S. P., Park, D., Park, S. J., Yu, H., & Oh, S.-E. (2019). Electrochemical removal of ammonium nitrogen and cod of domestic wastewater using platinum coated titanium as an anode electrode. *Energies*, 12(5), 883.
- Gonçalves, M. R., Marques, I. P., & Correia, J. P. (2012). Electrochemical mineralization of anaerobically digested olive mill wastewater. *Water Research*, 46(13), 4217–4225.
- Gong, G., Liang, S., Shi, Y., Wang, Z., Li, Z., Li, R., Lu, S., & Zhang, Y. (2022). Preparation of microporous carbon materials using residual coal from oxidative degradation of lignite as the carbon source and the mechanism and dynamics of its methyl orange adsorption. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 636, 128138.
- Gonzalez-Olmos, R., Penadés, A., & Garcia, G. (2018). Electro-oxidation as efficient pretreatment to minimize the membrane fouling in water reuse processes. *Journal of Membrane Science*, 552, 124–131.

- Gotvajn, A. Ž., Tišler, T., & Zagorc-Končan, J. (2009). Comparison of different treatment strategies for industrial landfill leachate. *Journal of Hazardous Materials*, 162(2–3), 1446–1456.
- Gracien, E. B., Shen, J., Sun, X., Liu, D., Li, M., Yao, S., & Sun, J. (2007). Photocatalytic activity of manganese, chromium and cobalt-doped anatase titanium dioxide nanoporous electrodes produced by re-anodization method. *Thin Solid Films*, 515(13), 5287–5297.
- Guo, J.-S., Abbas, A. A., Chen, Y.-P., Liu, Z.-P., Fang, F., & Chen, P. (2010). Treatment of landfill leachate using a combined stripping, Fenton, SBR, and coagulation process. *Journal of Hazardous Materials*, 178(1–3), 699–705.
- Hakizimana, J. N., Gourich, B., Chafi, M., Stiriba, Y., Vial, C., Drogui, P., & Naja, J. (2017). Electrocoagulation process in water treatment: A review of electrocoagulation modeling approaches. *Desalination*, 404, 1–21.
- Halim, A. A., Aziz, H. A., Johari, M. A. M., & Ariffin, K. S. (2010). Comparison study of ammonia and COD adsorption on zeolite, activated carbon and composite materials in landfill leachate treatment. *Desalination*, 262(1–3), 31–35.
- Hamid, M. A. A., Aziz, H. A., Yusoff, M. S., & Rezan, S. A. (2021). Clinoptilolite augmented electrocoagulation process for the reduction of high-strength ammonia and color from stabilized landfill leachate. *Water Environment Research*, 93(4), 596–607.
- He, P. J., Shao, L. M., Guo, H. D., Li, G. J., & Lee, D. J. (2005). Nitrogen removal from landfill leachate using single or combined processes. *Environmental Technology*, 26(4), 373–380.
- Helfferich, F. G. (1995). *Ion exchange*. Courier Corporation.
- Hiew, B. Y. Z., Lee, L. Y., Lee, X. J., Gan, S., Thangalazhy-Gopakumar, S., Lim, S. S., Pan, G.-T., & Yang, T. C.-K. (2019). Adsorptive removal of diclofenac by graphene oxide: Optimization, equilibrium, kinetic and thermodynamic studies. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 98, 150–162.
- Hisham Elnenay, A. M., Nassef, E., Farouk Malash, G., & Abdel Magid, M. H. (2017). Treatment of drilling fluids wastewater by electrocoagulation. *Egypt. J. Pet*, 26, 203–208.
- Ho, Y.-S., & McKay, G. (1999). Pseudo-second order model for sorption processes. *Process Biochemistry*, 34(5), 451–465.
- Hoang, N. T., Nguyen, X. C., Le, P.-C., Juzsakova, T., Chang, S. W., & Nguyen, D. D. (2021). Electrochemical degradation of pesticide Padan 95SP by boron-doped diamond electrodes: The role of operating parameters. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 9(3), 105205.
- Holt, P. K., Barton, G. W., Wark, M., & Mitchell, C. A. (2002). A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 211(2–3), 233–248.
- Huang, C.-H., Chen, L., & Yang, C.-L. (2009). Effect of anions on electrochemical coagulation for cadmium removal. *Separation and Purification Technology*, 65(2), 137–146.
- Huang, K.-L., Liu, C.-C., Ma, C.-Y., & Chen, T.-T. (2019). Effects of operating parameters on electrochemical treatment of swine wastewater. *Int. J. Electrochem. Sci.*, in Press.
- Hummelgård, C., Karlsson, R. K. B., Bäckström, J., Rahman, S. M. H., Cornell, A., Eriksson, S., & Olin, H. (2013). Physical and electrochemical properties of cobalt doped (Ti, Ru) O₂ electrode coatings. *Materials Science and Engineering: B*, 178(20), 1515–1522.

- Hussin, F., Aroua, M. K., & Szlachta, M. (2019). Combined solar electrocoagulation and adsorption processes for Pb (II) removal from aqueous solution. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 143, 107619.
- İlhan, F. (2006). *Sızıntı sularının elektrokoagülasyon yöntemiyle arıtılması*.
- İlhan, F., Kurt, U., Apaydin, O., & Gonullu, M. T. (2008). Treatment of leachate by electrocoagulation using aluminum and iron electrodes. *Journal of Hazardous Materials*, 154(1–3), 381–389.
- Im, J., Woo, H., Choi, M., Han, K., & Kim, C. (2001). Simultaneous organic and nitrogen removal from municipal landfill leachate using an anaerobic-aerobic system. *Water Research*, 35(10), 2403–2410.
- Iqhrammullah, M., Saleha, S., Maulina, F. P., & Idroes, R. (2020). Polyurethane film prepared from ball-milled algal polyol particle and activated carbon filler for NH₃-N removal. *Heliyon*, 6(8), e04590.
- Joseph, J., Sajeesh, A. K., Nagashri, K., Gladis, E. H. E., Sharmila, T. M., & Dhanaraj, C. J. (2021). Determination of ammonia content in various drinking water sources in Malappuram District, Kerala and its removal by adsorption using agricultural waste materials. *Materials Today: Proceedings*, 45, 811–819.
- Jum'h, I., Abdelhay, A., Al-Taani, H., Telfah, A., Alnaief, M., & Rosiwal, S. (2017). Fabrication and application of boron doped diamond BDD electrode in olive mill wastewater treatment in Jordan. *Journal of Water Reuse and Desalination*, 7(4), 502–510.
- Kannan, N. (2006). Karthi eyan G, Tamilselvan N. Comparison of treatment potential of electrocoagulation of distillery effluent with and without activated Areca catechu nut carbon. *Journal of Hazardous Materials*, 137(3), 1803–1809.
- Kapalka, A., Katsaounis, A., Michels, N.-L., Leonidova, A., Souentie, S., Comninellis, C., & Udert, K. M. (2010). Ammonia oxidation to nitrogen mediated by electrogenerated active chlorine on Ti/PtOx-IrO₂. *Electrochemistry Communications*, 12(9), 1203–1205.
- Karakuş, S. (2011). Farklı Boyar Maddelerin Özel Hazırlanmış Adsorbanlar Üzerinde Adsorpsiyon Kinetiğinin ve Termodinamiğinin İncelenmesi. *Fen Bilimleri Enstitüsü, Kimya Bölümü, Fiziksel Kimya Anabilim Dalı, Doktora Tezi*.
- Karlsson, R. K. B., & Cornell, A. (2016). Selectivity between oxygen and chlorine evolution in the chlor-alkali and chlorate processes. *Chemical Reviews*, 116(5), 2982–3028.
- Karri, R. R., Sahu, J. N., & Chimmiri, V. (2018). Critical review of abatement of ammonia from wastewater. *Journal of Molecular Liquids*, 261, 21–31.
- Karukstis, K. K., & Van Hecke, G. R. (2003). *Chemistry Connections: The chemical basis of everyday phenomena*. Elsevier.
- Kaur, K., Mor, S., & Ravindra, K. (2016). Removal of chemical oxygen demand from landfill leachate using cow-dung ash as a low-cost adsorbent. *Journal of Colloid and Interface Science*, 469, 338–343.
- Kayacan, B. B. (2010). *Pamuklu tekstil endüstrisi atıksularının membran proseslerle geri kazanımının araştırılması*.
- Ken, D. S., & Sinha, A. (2021). Dimensionally stable anode (Ti/RuO₂) mediated electro-oxidation and multi-response optimization study for remediation of coke-oven wastewater. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 9(1), 105025.

- Keyis, D. (2020). 3, 4-dihidroksi benaldehit ile modifiye edilmiş kitosanın hazırlanması ve sulu ortamlardan bor adsorpsiyon özelliklerinin araştırılması. Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Khandaker, S., Toyohara, Y., Saha, G. C., Awual, M. R., & Kuba, T. (2020). Development of synthetic zeolites from bio-slag for cesium adsorption: Kinetic, isotherm and thermodynamic studies. *Journal of Water Process Engineering*, 33, 101055.
- Khandegar, V., & Saroha, A. K. (2012). Electrochemical treatment of distillery spent wash using aluminum and iron electrodes. *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 20(3), 439–443.
- Khosla, N. K., VenkaTAKhalam, S., & Somasundaran, P. (1991). Pulsed electrogeneration of bubbles for electroflotation. *Journal of Applied Electrochemistry*, 21(11), 986–990.
- Kinidi, L., & Salleh, S. F. (2020). The COD Removal of Lime and Subsequent Acid Pretreated Partially Stabilised Leachate via Granular-Activated Carbon. *International Journal of Chemical Engineering*, 2020.
- Klidi, N., Clematis, D., Delucchi, M., Gadri, A., Ammar, S., & Panizza, M. (2018). Applicability of electrochemical methods to paper mill wastewater for reuse. Anodic oxidation with BDD and TiRuSnO₂ anodes. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 815, 16–23.
- Koyuncu, H., & Kul, A. R. (2020). Biosorption study for removal of methylene blue dye from aqueous solution using a novel activated carbon obtained from nonliving lichen (*Pseudevernia furfuracea* (L.) Zopf.). *Surfaces and Interfaces*, 19, 100527. <https://doi.org/10.1016/j.surfin.2020.100527>
- Labanowski, J., Pallier, V., & Feuillade-Cathalifaud, G. (2010). Study of organic matter during coagulation and electrocoagulation processes: Application to a stabilized landfill leachate. *Journal of Hazardous Materials*, 179(1–3), 166–172.
- Lagergren, S. K. (1898). About the theory of so-called adsorption of soluble substances. *Sven. Vetenskapsakad. Handlingar*, 24, 1–39.
- Lak, M. G., Sabour, M. R., Amiri, A., & Rabbani, O. (2012). Application of quadratic regression model for Fenton treatment of municipal landfill leachate. *Waste Management*, 32(10), 1895–1902.
- Le Luu, T., Stephane, D. D. F., Minh, N. H., Canh, N. D., & Thanh, B. X. (2019). Electrochemical oxidation as a post treatment for biologically tannery wastewater in batch reactor. *Water Science and Technology*, 80(7), 1326–1337.
- Li, J., Zhao, L., Qin, L., Tian, X., Wang, A., Zhou, Y., Meng, L., & Chen, Y. (2016). Removal of refractory organics in nanofiltration concentrates of municipal solid waste leachate treatment plants by combined Fenton oxidative-coagulation with photo-Fenton processes. *Chemosphere*, 146, 442–449.
- Li, W., Hua, T., Zhou, Q., Zhang, S., & Li, F. (2010). Treatment of stabilized landfill leachate by the combined process of coagulation/flocculation and powder activated carbon adsorption. *Desalination*, 264(1–2), 56–62.
- Li, Xiangdong, Song, J., Guo, J., Wang, Z., & Feng, Q. (2011). Landfill leachate treatment using electrocoagulation. *Procedia Environmental Sciences*, 10, 1159–1164.
- Li, Xinyang, Wang, C., Qian, Y., Wang, Y., & Zhang, L. (2013). Simultaneous removal of chemical oxygen demand, turbidity and hardness from biologically treated citric acid wastewater by electrochemical oxidation for reuse. *Separation and Purification Technology*, 107, 281–288.

- Linares-Hernández, I., Barrera-Díaz, C., Bilyeu, B., Juárez-GarcíaRojas, P., & Campos-Medina, E. (2010). A combined electrocoagulation–electrooxidation treatment for industrial wastewater. *Journal of Hazardous Materials*, 175(1–3), 688–694.
- Linares-Hernández, I., Barrera-Díaz, C., Roa-Morales, G., Bilyeu, B., & Ureña-Núñez, F. (2007). A combined electrocoagulation–sorption process applied to mixed industrial wastewater. *Journal of Hazardous Materials*, 144(1–2), 240–248.
- Liu, D., Zou, Z., Cai, Y., Qiu, Y., Zhou, Y., & He, S. (2021). An updated study on CH₄ isothermal adsorption and isosteric adsorption heat behaviors of variable rank coals. *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 89, 103899.
- Liu, F., Lin, Q., Fu, C., Wang, M., Han, M., Huang, C., Pan, H., & Liu, F. (2021). Alkaline KMnO₄ solution pretreat hydrochar to prepare high ultra-micropore volume carbon for CH₄ enrichment from low-concentration coalbed methane. *Fuel*, 303, 121301.
- Liu, Haiwei, Dong, Y., Liu, Y., & Wang, H. (2010). Screening of novel low-cost adsorbents from agricultural residues to remove ammonia nitrogen from aqueous solution. *Journal of Hazardous Materials*, 178(1–3), 1132–1136.
- Liu, Huijuan, Zhao, X., & Qu, J. (2010). Electrocoagulation in water treatment. In *Electrochemistry for the Environment* (pp. 245–262). Springer.
- Liu, X., & He, Z. (2020). Decreased formation of disinfection by-products during electrochemical leachate oxidation and their post-removal by electro-adsorption. *Science of The Total Environment*, 730, 139171.
- Lv, G., Wu, D., & Fu, R. (2009). Performance of carbon aerogels particle electrodes for the aqueous phase electro-catalytic oxidation of simulated phenol wastewaters. *Journal of Hazardous Materials*, 165(1–3), 961–966.
- Mahdavi, A. R., Ghoresyhi, A. A., Rahimpour, A., Younesi, H., & Pirzadeh, K. (2018). COD removal from landfill leachate using a high-performance and low-cost activated carbon synthesized from walnut shell. *Chemical Engineering Communications*, 205(9), 1193–1206.
- Mahesh, S., Prasad, B., Mall, I. D., & Mishra, I. M. (2006). Electrochemical degradation of pulp and paper mill wastewater. Part 1. COD and color removal. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 45(8), 2830–2839.
- Mahmad, M. K. N., Rozainy, M. A. Z. M. R., Abustan, I., & Baharun, N. (2016). Electrocoagulation process by using aluminium and stainless steel electrodes to treat total chromium, colour and turbidity. *Procedia Chemistry*, 19, 681–686.
- Maitlo, H. A., Kim, J. H., An, B. M., & Park, J. Y. (2018). Effects of supporting electrolytes in treatment of arsenate-containing wastewater with power generation by aluminumair fuel cell electrocoagulation. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 57, 254–262.
- Makrygianni, M., Lada, Z. G., Manousou, A., Aggelopoulos, C. A., & Deimede, V. (2019). Removal of anionic dyes from aqueous solution by novel pyrrolidinium-based Polymeric Ionic Liquid (PIL) as adsorbent: Investigation of the adsorption kinetics, equilibrium isotherms and the adsorption mechanisms involved. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 7(3), 103163.
- Malinovic, B., Djuricic, T., Bjelić, D., Markic, D., Djukic, N., & Djukic, D. (2016). Treatment of Leachate by Electrocoagulation Using Iron Electrode. *Journal of Hazardous Materials*, 154(1–3).

- Mandal, P., Gupta, A. K., & Dubey, B. K. (2020). Role of inorganic anions on the performance of landfill leachate treatment by electrochemical oxidation using graphite/PbO₂ electrode. *Journal of Water Process Engineering*, 33, 101119.
- Mansoorian, H. J., Rajabizadeh, A., Bazrafshan, E., & Mahvi, A. H. (2012). Practical assessment of electrocoagulation process in removing nickel metal from aqueous solutions using iron-rod electrodes. *Desalination and Water Treatment*, 44(1–3), 29–35.
- Mansouri, K., Ibrik, K., Bensalah, N., & Abdel-Wahab, A. (2011). Anodic dissolution of pure aluminum during electrocoagulation process: influence of supporting electrolyte, initial pH, and current density. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 50(23), 13362–13372.
- Mao, X., Xiong, L., Hu, X., Yan, Z., Wang, L., & Xu, G. (2018). Remediation of ammonia-contaminated groundwater in landfill sites with electrochemical reactive barriers: A bench scale study. *Waste Management*, 78, 69–78.
- Marañón, E., Castrillón, L., Fernández-Nava, Y., Fernández-Méndez, A., & Fernández-Sánchez, A. (2008). Coagulation–flocculation as a pretreatment process at a landfill leachate nitrification–denitrification plant. *Journal of Hazardous Materials*, 156(1–3), 538–544.
- Marshall, R. E., & Farahbakhsh, K. (2013). Systems approaches to integrated solid waste management in developing countries. *Waste Management*, 33(4), 988–1003.
- Martinez-Huitle, C. A., & Ferro, S. (2006). Electrochemical oxidation of organic pollutants for the wastewater treatment: direct and indirect processes. *Chemical Society Reviews*, 35(12), 1324–1340.
- Martínez-Huitle, C. A., Quiroz, M. A., Comninellis, C., Ferro, S., & De Battisti, A. (2004). Electrochemical incineration of chloranilic acid using Ti/IrO₂, Pb/PbO₂ and Si/BDD electrodes. *Electrochimica Acta*, 50(4), 949–956.
- McKay, G., Otterburn, M. S., & Sweeney, A. G. (1980). The removal of colour from effluent using various adsorbents—III. Silica: Rate processes. *Water Research*, 14(1), 15–20.
- Mech, K., Żabiński, P., Kowalik, R., & Fitzner, K. (2013). Analysis of Co–Pd alloys deposition from electrolytes based on [Co (NH₃)₆]³⁺ and [Pd (NH₃)₄]²⁺ complexes. *Electrochimica Acta*, 104, 468–473.
- Mechelhoff, M., Kelsall, G. H., & Graham, N. J. D. (2013). Electrochemical behaviour of aluminium in electrocoagulation processes. *Chemical Engineering Science*, 95, 301–312.
- Meena, A. K., Kadirvelu, K., Mishra, G. K., Rajagopal, C., & Nagar, P. N. (2008). Adsorptive removal of heavy metals from aqueous solution by treated sawdust (*Acacia arabica*). *Journal of Hazardous Materials*, 150(3), 604–611.
- Meng, X., Khoso, S. A., Jiang, F., Zhang, Y., Yue, T., Gao, J., Lin, S., Liu, R., Gao, Z., & Chen, P. (2020). Removal of chemical oxygen demand and ammonia nitrogen from lead smelting wastewater with high salts content using electrochemical oxidation combined with coagulation–flocculation treatment. *Separation and Purification Technology*, 235, 116233.
- Michaud, B. M. G. J. G. P. A. (2003). MA Rodrigo C. Comninellis Electrogenation of hydroxyl radicals on boron-doped diamond electrodes *J. Electrochem. Soc.*, 150, 79.
- Midda, M. O., Srivastava, V. C., & Kushwaha, J. P. (2020). Optimizing experimental binary adsorption of aniline–nitrobenzene onto granular activated carbon packed bed by Taguchi’s methodology. *Journal of Water Process Engineering*, 34, 101045.

- Modirshahla, N. (2007). Behnajady, MA and Kooshaiian, S. Investigation of the effect of 1. different electrode connections on the removal efficiency of tartrazine from aqueous solutions by electrocoagulation. *Dyes and Pigments*, 74, 249–257.
- Modirshahla, N., Behnajady, M. A., & Mohammadi-Aghdam, S. (2008). Investigation of the effect of different electrodes and their connections on the removal efficiency of 4-nitrophenol from aqueous solution by electrocoagulation. *Journal of Hazardous Materials*, 154(1–3), 778–786.
- Mollah, M Yousuf A, Schennach, R., Parga, J. R., & Cocke, D. L. (2001). Electrocoagulation (EC)—science and applications. *Journal of Hazardous Materials*, 84(1), 29–41.
- Mollah, Mohammad Y A, 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*, 114(1–3), 199–210.
- Morris, J. C., & Wei, I. (1969). Chlorine-ammonia breakpoint reactions: model mechanisms and computer simulation. *Division of Water, Air and Waste Chemistry at the 157th Annual Meeting of the American Chemical Society*, 2–19.
- Mukimin, A., Vistanty, H., & Zen, N. (2015). Oxidation of textile wastewater using cylinder Ti/β-PbO₂ electrode in electrocatalytic tube reactor. *Chemical Engineering Journal*, 259, 430–437.
- Murugananthan, M., Yoshihara, S., Rakuma, T., Uehara, N., & Shirakashi, T. (2007). Electrochemical degradation of 17β-estradiol (E2) at boron-doped diamond (Si/BDD) thin film electrode. *Electrochimica Acta*, 52(9), 3242–3249.
- Myllymäki, P., Lahti, R., Romar, H., & Lassi, U. (2018). Removal of total organic carbon from peat solution by hybrid method—Electrocoagulation combined with adsorption. *Journal of Water Process Engineering*, 24, 56–62.
- Naje, A. S., Ajeel, M. A., Ali, I. M., Al-Zubaidi, H. A. M., & Alaba, P. A. (2019). Raw landfill leachate treatment using an electrocoagulation process with a novel rotating electrode reactor. *Water Science and Technology*, 80(3), 458–465.
- Nas, K. B. (2019). *Atıksu geri kazanımı yapılan ileri biyolojik atıksu arıtma tesisinde ve pilot ölçekli membran prosesler ile (Uf, nf, ro) mikrokirleticilerin giderimi*. Konya Teknik Üniversitesi.
- Nava, J. L., Quiroz, M. A., & Martínez-Huitle, C. A. (2008). Electrochemical treatment of synthetic wastewaters containing alphazurine a dye: role of electrode material in the colour and COD removal. *Journal of the Mexican Chemical Society*, 52(4), 249–255.
- Nidheesh, P. V, Kumar, A., Babu, D. S., Scaria, J., & Kumar, M. S. (2020). Treatment of mixed industrial wastewater by electrocoagulation and indirect electrochemical oxidation. *Chemosphere*, 251, 126437.
- Nigri, E. M., Santos, A. L. A., & Rocha, S. D. F. (2020). Removal of organic compounds, calcium and strontium from petroleum industry effluent by simultaneous electrocoagulation and adsorption. *Journal of Water Process Engineering*, 37, 101442.
- Nikoloski, A. N., & Ang, K.-L. (2014). Review of the application of ion exchange resins for the recovery of platinum-group metals from hydrochloric acid solutions. *Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review*, 35(6), 369–389.
- Niza, N. M., Yusoff, M. S., Zainuri, M. A. A. M., Emmanuel, M. I., Shadi, A. M. H., Hanif, M. H. M., & Kamaruddin, M. A. (2021). Removal of ammoniacal nitrogen from old leachate using batch electrocoagulation with vibration-induced electrode plate. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 9(2), 105064.

- Noce, R. D., Barelli, N., Sumodjo, P. T. A., Cornejo, D. R., & Benedetti, A. V. (2006). Effect of the bath pH on the electrodeposition of nanocrystalline Pd–Co alloys and their magnetic properties. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 306(2), 199–203.
- Oduncu, E. (2017). *Elektrokoagülasyon ve elektrooksidasyon yöntemi ile katı atık düzenli depolama sahası sızıntı suyunun arıtımı*. Anadolu University (Turkey).
- Oishi, K., & Savadogo, O. (2013). Electrochemical investigation of Pd–Co thin films binary alloy for the oxygen reduction reaction in acid medium. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 703, 108–116.
- Orbak, İ. (2009). *Aktif karbon ile çevre kirletici bazı unsurların giderilmesi*. Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Othman, N. H., Alias, N. H., Shahrudin, M. Z., Bakar, N. F. A., Him, N. R. N., & Lau, W. J. (2018). Adsorption kinetics of methylene blue dyes onto magnetic graphene oxide. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 6(2), 2803–2811.
- Oturan, M. A. (2021). Outstanding performances of the BDD film anode in electro-Fenton process: Applications and comparative performance. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 25(3), 100925.
- Oumar, D., Patrick, D., Gerardo, B., Rino, D., & Ihsen, B. S. (2016). Coupling biofiltration process and electrocoagulation using magnesium-based anode for the treatment of landfill leachate. *Journal of Environmental Management*, 181, 477–483.
- Panizza, M., Delucchi, M., & Sirés, I. (2010). Electrochemical process for the treatment of landfill leachate. *Journal of Applied Electrochemistry*, 40(10), 1721–1727.
- Panizza, M., & Martinez-Huitle, C. A. (2013). Role of electrode materials for the anodic oxidation of a real landfill leachate—Comparison between Ti–Ru–Sn ternary oxide, PbO₂ and boron-doped diamond anode. *Chemosphere*, 90(4), 1455–1460.
- Parande, A. K., Sivashanmugam, A., Beulah, H., & Palaniswamy, N. (2009). Performance evaluation of low cost adsorbents in reduction of COD in sugar industrial effluent. *Journal of Hazardous Materials*, 168(2–3), 800–805.
- Park, H., Choo, K.-H., Park, H.-S., Choi, J., & Hoffmann, M. R. (2013). Electrochemical oxidation and microfiltration of municipal wastewater with simultaneous hydrogen production: Influence of organic and particulate matter. *Chemical Engineering Journal*, 215, 802–810.
- Periyasamy, S., & Muthuchamy, M. (2018). Electrochemical oxidation of paracetamol in water by graphite anode: effect of pH, electrolyte concentration and current density. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 6(6), 7358–7367.
- Pulkka, S., Martikainen, M., Bhatnagar, A., & Sillanpää, M. (2014). Electrochemical methods for the removal of anionic contaminants from water—a review. *Separation and Purification Technology*, 132, 252–271.
- Qing, G., Anari, Z., Abolhassani, M., Foster, S. L., Matlock, M., Thoma, G., & Greenlee, L. F. (2021). Electrochemical ammonia removal and disinfection of aquaculture wastewater using batch and flow reactors incorporating PtRu/graphite anode and graphite cathode. *Aquacultural Engineering*, 93, 102155.
- Rafiee, P., Hosseini, M., & Ebrahimi, S. (2020). The evolution patterns of temperature, pH, and voltage during the removal of chemical oxygen demand from a landfill leachate using electrocoagulation under different conditions. *Reaction Kinetics, Mechanisms and Catalysis*, 131(1), 319–334.

- Rafizul, I. M., & Alamgir, M. (2012). Characterization and tropical seasonal variation of leachate: Results from landfill lysimeter studied. *Waste Management*, 32(11), 2080–2095.
- Rahman, Z., Thomas, L., microbiology, V. S.-J. of basic, & 2019, undefined. (2019). Biosorption of heavy metals by a lead (Pb) resistant bacterium, *Staphylococcus hominis* strain AMB-2. *Wiley Online Library*, 59(5), 477–486. <https://doi.org/10.1002/jobm.201900024>
- Rani, A., Negi, S., Hussain, A., & Kumar, S. (2020). Treatment of urban municipal landfill leachate utilizing garbage enzyme. *Bioresource Technology*, 297, 122437.
- Raschitor, A., Llanos, J., Cañizares, P., & Rodrigo, M. A. (2017). Novel integrated electrodialysis/electro-oxidation process for the efficient degradation of 2, 4-dichlorophenoxyacetic acid. *Chemosphere*, 182, 85–89.
- Renou, S. (2008). Givauda, n GJ; Poulain, S.; Dirassouyan, F.; Moulin. *Landfill Leachate Treatment: Review and Opportunity.*, *Journal of Hazardous Materials*, 150, 468–493.
- Renou, S., Givaudan, J. G., Poulain, S., Dirassouyan, F., & Moulin, P. (2008). Landfill leachate treatment: Review and opportunity. *Journal of Hazardous Materials*, 150(3), 468–493.
- Reynier, N., Coudert, L., Blais, J.-F., Mercier, G., & Besner, S. (2015). Treatment of contaminated soil leachate by precipitation, adsorption and ion exchange. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 3(2), 977–985.
- Rieman, W., & Walton, H. F. (2013). *Ion exchange in analytical chemistry: international series of monographs in analytical chemistry*. Elsevier.
- Rodrigo, M. A., Sirés, I., Billas, E., Oturan, M., & Pinazza, M. (2014). *Electrochemical Advanced Oxidation Processes*.
- Rodriguez, J., Rodrigo, M. A., Panizza, M., & Cerisola, G. (2009). Electrochemical oxidation of Acid Yellow 1 using diamond anode. *Journal of Applied Electrochemistry*, 39(11), 2285–2289.
- Rubio, J., & Tessele, F. (1997). Removal of heavy metal ions by adsorptive particulate flotation. *Minerals Engineering*, 10(7), 671–679.
- Rusdianasari, R., Taqwa, A., Jaksen, J., & Syakdani, A. (2017). Treatment optimization of electrocoagulation (EC) in purifying palm oil mill effluents (POMEs). *Journal of Engineering and Technological Sciences*, 49(5), 604–617.
- Saeedi, M., & Khalvati-Fahlyani, A. (2011). Treatment of oily wastewater of a gas refinery by electrocoagulation using aluminum electrodes. *Water Environment Research*, 83(3), 256–264.
- Sahu, O., Mazumdar, B., & Chaudhari, P. K. (2014). Treatment of wastewater by electrocoagulation: a review. *Environmental Science and Pollution Research*, 21(4), 2397–2413.
- Samarghandi, M. R., Dargahi, A., Shabanloo, A., Nasab, H. Z., Vaziri, Y., & Ansari, A. (2020). Electrochemical degradation of methylene blue dye using a graphite doped PbO₂ anode: optimization of operational parameters, degradation pathway and improving the biodegradability of textile wastewater. *Arabian Journal of Chemistry*, 13(8), 6847–6864.
- Saravanan, M., Sambhamurthy, N. P., & Sivarajan, M. (2010). Treatment of acid blue 113 dye solution using iron electrocoagulation. *CLEAN–Soil, Air, Water*, 38(5-6), 565–571.

- Sarpaşar, Z. (2019). *Zeolitin manyetik FE3O4 nanoparçacıklar ile modifikasyonu ve boyarmadde adsorpsiyonunun incelenmesi*. Kütahya Dumlupınar Üniversitesi/Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Secula, M. S., Cagnon, B., de Oliveira, T. F., Chedeville, O., & Fauduet, H. (2012). Removal of acid dye from aqueous solutions by electrocoagulation/GAC adsorption coupling: Kinetics and electrical operating costs. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 43(5), 767–775.
- Seredych, M., Petit, C., Tamashausky, A. V., & Bandosz, T. J. (2009). Role of graphite precursor in the performance of graphite oxides as ammonia adsorbents. *Carbon*, 47(2), 445–456.
- Serrano, K., & Michaud, P. A. (n.d.). Comninellis Ch. and Savall A. 2002. *Electrochim. Acta*, 48, 431.
- Singh, S., & Lo, L. (2016). S., Srivastava, VC, and Hiwar-kar, AD, Comparative study of electrochemical oxidation for dye degradation: parametric optimization and mechanism identification. *J. Environ. Chem. Eng.*, 4, 2911.
- Sitorus, I. S., Astono, W., & Iswanto, B. (2018). Batch leachate treatment using stirred electrocoagulation reactor with variation of residence time and stirring rate. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 106(1), 12095.
- Solano, A. M. S., de Araújo, C. K. C., de Melo, J. V., Peralta-Hernandez, J. M., da Silva, D. R., & Martínez-Huitle, C. A. (2013). Decontamination of real textile industrial effluent by strong oxidant species electrogenerated on diamond electrode: viability and disadvantages of this electrochemical technology. *Applied Catalysis B: Environmental*, 130, 112–120.
- Song, H., Yan, L., Jiang, J., Ma, J., Zhang, Z., Zhang, J., Liu, P., & Yang, T. (2018). Electrochemical activation of persulfates at BDD anode: radical or nonradical oxidation? *Water Research*, 128, 393–401.
- Srilatha, K., Bhagawan, D., Shankaraiah, G., Kumar, P. K., Himabindu, V., & Srinivasulu, S. (2019). Performance evaluation of different advanced processes for treating chloro-pesticide intermediate industrial wastewater. *Sustainable Water Resources Management*, 5(4), 1833–1846.
- Strawn, D. G. (2021). Sorption mechanisms of chemicals in soils. *Soil Systems*, 5(1), 13.
- Tanattı, N. P. (2015). *Biyodizel atıksularının elektrokoagülasyon ve ileri oksidasyon yöntemleri ile arıtılabilirliği*.
- Tchobanoglus, G., Burton, F., & Stensel, H. D. (2003). Wastewater engineering: treatment and reuse. *American Water Works Association. Journal*, 95(5), 201.
- Temkin, M. I. (1940). Kinetics of ammonia synthesis on promoted iron catalysts. *Acta Physiochim. URSS*, 12, 327–356.
- Teng, C., Zhou, K., Peng, C., & Chen, W. (2021). Characterization and treatment of landfill leachate: A review. *Water Research*, 203, 117525.
- Terrazas, E., Vázquez, A., Briones, R., Lázaro, I., & Rodríguez, I. (2010). EC treatment for reuse of tissue paper wastewater: Aspects that affect energy consumption. *Journal of Hazardous Materials*, 181(1–3), 809–816.
- Tijani, J. O., Fatoba, O. O., Madzivire, G., & Petrik, L. F. (2014). A review of combined advanced oxidation technologies for the removal of organic pollutants from water. *Water, Air, & Soil Pollution*, 225(9), 1–30.

- Tongur, T. (2020). *Yüksek polariteli bazı pestisitlerin sulu çözeltilerden aktif karbon kumaşı üzerine adsorpsiyon ve elektrosorpsiyon ile uzaklaştırılmasının spektrofotometrik yöntemle incelenmesi.*
- Topal Canbaz, G. (2020). *Bitkilerden metal nanopartiküllerin sentezi ve fenol ve ağır metal iyon adsorpsiyonunda kullanımının incelenmesi.*
- Tsantaki, E., Velegraki, T., Katsaounis, A., & Mantzavinos, D. (2012). Anodic oxidation of textile dyehouse effluents on boron-doped diamond electrode. *Journal of Hazardous Materials*, 207, 91–96.
- Unal, B. O., Dizge, N., Karagunduz, A., & Keskinler, B. (2019). Combined electrocoagulation and electrooxidation process in electro membrane bioreactor to improve membrane filtration effectiveness. *Bioresource Technology Reports*, 7, 100237.
- Varank, G. (2006). *Aerobik olarak stabilize edilmiş katı atıklar ile kompost ürününün karşılaştırılması.*
- Vardar, B. (2006). *Tekstil endüstrisi reaktif boya banyolarının elektrokimyasal yöntemler ile arıtımı.* Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Verma, A. K. (2017). Treatment of textile wastewaters by electrocoagulation employing Fe-Al composite electrode. *Journal of Water Process Engineering*, 20, 168–172.
- Vik, E. A., Carlson, D. A., Eikum, A. S., & Gjessing, E. T. (1984). Electrocoagulation of potable water. *Water Research*, 18(11), 1355–1360.
- Wang, C.-T., Chou, W.-L., & Kuo, Y.-M. (2009). Removal of COD from laundry wastewater by electrocoagulation/electroflotation. *Journal of Hazardous Materials*, 164(1), 81–86.
- Wang, Y., Li, X., Zhen, L., Zhang, H., Zhang, Y., & Wang, C. (2012). Electro-Fenton treatment of concentrates generated in nanofiltration of biologically pretreated landfill leachate. *Journal of Hazardous Materials*, 229, 115–121.
- Weber Jr, W. J., & Morris, J. C. (1963). Kinetics of adsorption on carbon from solution. *Journal of the Sanitary Engineering Division*, 89(2), 31–59.
- Wu, Z., Cheng, Z., & Ma, W. (2012). Adsorption of Pb (II) from glucose solution on thiol-functionalized cellulosic biomass. *Bioresource Technology*, 104, 807–809.
- Xiao, S., Peng, J., Song, Y., Zhang, D., Liu, R., & Zeng, P. (2013). Degradation of biologically treated landfill leachate by using electrochemical process combined with UV irradiation. *Separation and Purification Technology*, 117, 24–29.
- Yahiaoui, I., Aissani-Benissad, F., Fourcade, F., & Amrane, A. (2013). Removal of tetracycline hydrochloride from water based on direct anodic oxidation (Pb/PbO₂ electrode) coupled to activated sludge culture. *Chemical Engineering Journal*, 221, 418–425.
- Yaşar Eynur, S. (n.d.). *XAD-7 reçinesi üzerindeki Kongo kırmızısının adsorpsiyon izotermelerinin incelenmesi.* Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Yildiz, Ş., Demir, A., & İçmesuyu, Ö. (2010). Biyokatıların Aerobik Stabilizasyonu. *Organik Atıklardan Kompost ve Yenilenebilir Enerji Üretimi&kompostun Kullanım Alanları Çalıştayı, ORAK*, 63–74.
- Yıldız, Y. Ş., Koparal, A. S., & Keskinler, B. (2008). Effect of initial pH and supporting electrolyte on the treatment of water containing high concentration of humic substances by electrocoagulation. *Chemical Engineering Journal*, 138(1–3), 63–72.
- Zailani, L. W. M., Amdan, N. S. M., & Zin, N. S. M. (2018). Removal efficiency of electrocoagulation treatment using aluminium electrode for stabilized leachate. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 140(1), 12049.

- Zeybek, Z. (2019). *Sulardaki metal kirliliğinin doğal adsorbanlar ile giderimi*.
- Zhang, Changyong, He, D., Ma, J., & Waite, T. D. (2018). Active chlorine mediated ammonia oxidation revisited: Reaction mechanism, kinetic modelling and implications. *Water Research*, 145, 220–230.
- Zhang, Chao, Jiang, Y., Li, Y., Hu, Z., Zhou, L., & Zhou, M. (2013). Three-dimensional electrochemical process for wastewater treatment: a general review. *Chemical Engineering Journal*, 228, 455–467.
- Zhang, G., Huang, X., Ma, J., Wu, F., & Zhou, T. (2020). Ti/RuO₂-IrO₂-SnO₂ Anode for Electrochemical Degradation of Pollutants in Pharmaceutical Wastewater: Optimization and Degradation Performances. *Sustainability*, 13(1), 126.
- Zhang, X., Hao, Y., Wang, X., Chen, Z., & Li, C. (2016). Competitive adsorption of cadmium (II) and mercury (II) ions from aqueous solutions by activated carbon from *Xanthoceras sorbifolia* Bunge hull. *Journal of Chemistry*, 2016.
- Zhao, G. (n.d.). lei Y, Lv B, Gao J, Zhang Y, Li D (2010) Fabrication and electrochemical treatment application of a novel lead dioxide anode with superhydrophobic surfaces, high oxygen evolution potential, and oxidation capability. *Environ Sci Technol*, 44(5), 1754–1759.
- Zhao, J., Ye, S., Wang, Y., You, X., Chai, L., & Shu, Y. (2015). Electrochemical degradation of acidified reed pulp black liquor with three-dimensional electrode reactor. *Journal of Central South University*, 22(8), 2945–2953.
- Zhong, H., Tian, Y., Yang, Q., Brusseau, M. L., Yang, L., & Zeng, G. (2017). Degradation of landfill leachate compounds by persulfate for groundwater remediation. *Chemical Engineering Journal*, 307, 399–407.
- Zhou, Y., Liu, X., Xiang, Y., Wang, P., Zhang, J., Zhang, F., Wei, J., Luo, L., Lei, M., & Tang, L. (2017). Modification of biochar derived from sawdust and its application in removal of tetracycline and copper from aqueous solution: Adsorption mechanism and modelling. *Bioresource Technology*, 245(July), 266–273. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2017.08.178>
- Zielińska, M., Kulikowska, D., & Stańczak, M. (2020). Adsorption–Membrane process for treatment of stabilized municipal landfill leachate. *Waste Management*, 114, 174–182.
- Zou, J., Peng, X., Li, M., Xiong, Y., Wang, B., Dong, F., & Wang, B. (2017). Electrochemical oxidation of COD from real textile wastewaters: Kinetic study and energy consumption. *Chemosphere*, 171, 332–338.

ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı: Ayşenur ÖĞEDEY

Doğum Tarihi:

Öğrenim Durumu: Doktora (Devam Ediyor)

Derece	Bölüm	Üniversite	Yıl
Lisans	Çevre Mühendisliği	Fırat Üniversitesi	2008
Y. Lisans	Çevre Teknolojisi	Fırat Üniversitesi	2013
Doktora	Çevre Teknolojisi	Atatürk Üniversitesi	2013-

Yüksek Lisans Tez Başlığı :

Piroliz Ürünü ile Elde Edilen Ürün Üzerine Naftalinin Adsorpsiyonu, 2013, Yüksek Lisans Tezi, Fırat Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Çevre Mühendisliği ABD, Elazığ.

Danışman: Yrd. Doç. Dr. Gülşad USLU

Doktora Tezi Başlığı :

Bingöl Düzenli Çöp Depolama Sahasında Oluşan Sızıntı Suyunun Karakterizasyonu, Adsorpsiyon, Elektrokimyasal ve Ardışık Elektrokimyasal/Adsorpsiyon Proseslerini Kullanarak Sızıntı Suyundan KOİ, NH₃-N ve Bulanıklık Giderim Verimlerinin Araştırılması, Kinetik ve Maliyet Çalışmaları

Danışman: Prof.Dr. Ensar OĞUZ

Görev Unvanı	Görev Yeri	Yıl
Arş.Gör.	Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, Munzur Üniversitesi	2011- 2019
Arş.Gör.	Mühendislik Fakültesi, İnşaat Mühendisliği Bölümü, Munzur Üniversitesi	2019-

Projelerde Yaptığı Görevler:

Genç Deponi Alanlarında Oluşan Sızıntı Sularından Elektrokimyasal Yöntemlerle KOİ ve Renk Giderimi, Yükseköğretim Kurumları tarafından destekli bilimsel araştırma projesi, Yürütücü: Mehtap TANYOL
Araştırmacı: Ensar OĞUZ , **Araştırmacı: Ayşenur ÖĞEDEY, 24/06/2015 - 24/06/2017 (ULUSAL).**

A. Uluslararası hakemli dergilerde yayımlanan makaleler :

SCI ve SCI-Expanded Dergilerde Yayımlanan Makaleler

A1. Demir, V., Yildirim, N., Yildirim, N.C., Ergin, S., **Cumurcu, A.**, Evaluation of Bacteriological Quality of Drinking Water In Tunceli, Turkey, Journal of Pure and Applied Microbiology, **2013**, 7(1), 785-789.

A2. Yonten, V., Alp, H., Yildirim, N., Yildirim, N.C., **Ogedey A.**, Investigation of Optimum Conditions for Efficient COD Reduction in Synthetic Sulfamethazine Solutions by *Pleurotus eryngii* var. *ferulae* using Response Surface Methodology, Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers 2017, 80: 349-355. DOI: 10.1016/j.jtice.2017.07.021.

A3. **Ogedey A.**,Tanyol M., Optimizing electrocoagulation process using experimental design for COD removal from unsanitary landfill leachate. Water Science and Technology, **2017**, 76(11), 2907-2917., Doi: 10.2166/wst.2017.460.

A4. Tatar, S., Yildirim, N.C., Serdar, O., Yildirim, N., **Ogedey, A.**, The Using of Gammarus pulex as a Biomonitor in Ecological Risk Assessment of Secondary Effluent from Municipal Wastewater Treatment Plant in Tunceli, Turkey, Human and Ecological Risk Assessment, **2018**, 24(3): 819-829. DOI: 10.1080/10807039.2017.1400374.

A5. Serdar, O., Yildirim, N.C., Tatar S., Yildirim, N., **Ogedey, A.**, Antioxidant Biomarkers in Gammarus pulex to evaluate the Efficiency of Electrocoagulation Process in Landfill Leachate Treatment, Environmental Science and Pollution Research, **2018**, 25(13):12538-12544, DOI: 10.1007/s11356-018-1491-7.

A6. Tanyol, M., **Ogedey, A.**, Oguz, E., COD removal from leachate by electrocoagulation process: treatment with monopolar electrodes in parallel connection. Water Science and Technology, **2018**,77(1), 170-186., Doi: 10.2166/wst.2017.528

SCI ve SCI-Expanded Dışındaki Diğer İndekslerde Taranan Dergilerde Yayımlanan Makaleler

B. Uluslararası bilimsel toplantılarda sunulan ve bildiri kitabında (Proceedings) basılan bildiriler :

B1. Yildirim, N., Tanyol, M., Dere, T., **Cumurcu, A.**, Yildiz, A., The investigation on Physico-chemical Parameters of The Textile Effluents After Treatment by White Rot Fungus *Pleurotus djamor*, *New Biotechnology* Volume 29, Supplement, Pages S184, Abstracts of the 15th European Congress on Biotechnology, İstanbul, 23–26 September **2012**.

B2. Demir V., Yildirim, N., Yildirim, N.C., **Cumurcu, A.**, Ergin, S., Evaluation of Drinking Water Microbiology Tunceli, International Conference on Environmental Science and Technology – 2013 (ICOEST'2013 - Cappadocia) Urgup, Nevsehir, Turkey, June 18 - 21, **2013**.

B3. Tanyol M., Yildirim, N., Yildirim, N.C., Danabas, D., **Ogedey, A.**, Microbiological Pollution in Uzuncayir Dam Lake (Tunceli), FABA 2014, 25-27 Eylül **2014**, Trabzon, Türkiye

B4. Tatar, S.Y., Yildirim, N.C., Serdar, O., Yildirim, N., **Ogedey, A.**, Glutathion Levels in *Gammarus pulex* Exposed to Landfill Leachate Treated by using Electrocoagulation Process, International Conference On Advances and Innovations in Engineering, 10-12 May, **2017**, Elazığ, Turkey

B5. Yonten, V., Alp, H., Yildirim, N., Yildirim, N.C., **Ogedey, A.**, The searching for optimum COD removal conditions by *Pleurotus eryngii* var. *ferulae* from synthetic sulfamethazine solutions using RSM, ICAFOF, 15-17 May **2017**, Nevşehir, Turkey. (SÖZLÜ)

B6. Serdar, O., Yildirim, N.C., Tatar S., Yildirim, N., **Ogedey, A.**, Malondialdehyde Levels in *Gammarus pulex* Exposed to Landfill Leachate Treated by Using Electrocoagulation Process. 1. International Symposium on Limnology and Freshwater Fisheries, 4-6 October **2017**, Isparta, Turkey. (Sözlü sunum)

B7. Tatar Ş., Yıldırım Numan, Yıldırım N.C., Serdar O., **Ogedey A.**, Glutathione And Malondialdehyde Levels In *Gammarus Pulex* After Exposure To Secondary Effluent From Tunceli Municipal Wastewater Treatment Plant. 2nd International Energy And Engineering Conference **2017** (Özet Bildiri/Sözlü Sunum) (Yayın No:3944904)

B8. Tatar Ş., Öbek E., **Ogedey A.**, Yıldırım N.C., Removal Of Arsenic, Aluminum, From Wastewater By Duckweed, *Lemna Minor L.* And *Lemna Gibba L.*. 2nd International Conference On Civil And Environmental Engineering **2017** (Özet Bildiri/Sözlü Sunum) (Yayın No:3973028)

B9. **Ogedey A.**, Oğuz E., Tanyol M., Pretreatment Of Landfill Leachate Using Electrocoagulation Process. 2nd International Conference On Civil And Environmental Engineering **2017** (Özet Bildiri/Sözlü Sunum) (Yayın No:3972900)

B10. Tanyol M., **Ogedey A.**, Optimization of COD Removal in Leachate Using Response Surface Methodology with Electrocoagulation Process. 6th Int'xxl Conf. on Studies in Architecture, Civil, Construction Environmental Engineering (SACCEE-17) March 27-30, **2017** Singapore (Özet Bildiri/Sözlü Sunum) (Yayın No:3972992)

B11. **Cumurcu, A.**, Uslu, G., Bir PAH Bileşiği olan Naftaninin Çevresel Önemi ve Adsorbsiyon Metodu ile Giderilmesi, 1st. International industrial water Technologies symposium and fair, 6-9 December **2012**, Bursa-Turkey, Poster presentation.

C. Ulusal hakemli dergilerde yayımlanan makaleler :

C1. Öbek, E., Karataş, F., Arslan, E.I., **Cumurcu, A.**, Karaca, A.B., **2009**, Arıtma Çamuru Uygulanmış Toprakta Bazı B Grubu Vitaminlerinin İncelenmesi, Fırat Üniversitesi, Fen Bilimleri Dergisi, (2): 85-91.

D. Ulusal bilimsel toplantılarda sunulan ve bildiri kitaplarında basılan bildiriler:

D1. Yıldırım, N., Tanyol, M., Dere, T., **Cumurcu, A.**, Yıldız, A., *Coriolus versicolor* ile Uygulama Sonrası Tekstil Atıksularının Fizikokimyasal Özelliklerindeki Değişimler, Ekoloji 2012 sempozyumu, 3-5 Mayıs **2012**, Kilis 7 Aralık Üniversitesi, Kilis.

D2. Cumurcu, A., Bişkin, N., Tunceli İlindeki Mevcut Atık Miktarına Bağlı Biyogaz Üretim Potansiyeli, 4. Ulusal Çevre ve Ekoloji Öğrenci Kongresi, 8-9 February **2013**, Ankara, **Sözlü Sunum.**

D3. Cumurcu, A., Tunceli İli Biyolojik Atıksu Arıtma Tesisinden Uzunçayır Baraj Gölüne Deşarj Edilen Atıksulardaki Nitrat ve Fosfat Konsantrasyonlarının Belirlenmesi, 17. Ulusal Su Ürünleri Sempozyumu, 3-6 September **2013**, İstanbul, Poster Sunumu.

D4. Ögedey, A., Yıldırım, Cıkcıkoğlu, N.,Ögedey, P.,Karataş, H.B.,2014, Uzunçayır Baraj Gölü Üzerinde Seçilen Bazı İstasyonlarda Fiziko-Kimyasal Bazı Parametrelerin Değerlendirilmesi, 5. Doğu Anadolu Su Ürünleri Sempozyumu, 31 Mayıs-02 Haziran **2014** Elazığ, Poster Sunumu.

D5. Ögedey, A., Sızıntı Sularının Arıtımında Fiziko-Kimyasal Proseslerin Uygulanmasının Değerlendirilmesi, Ekoloji 2015 Sempozyumu, 06-09 Mayıs **2015**, Sinop, Poster sunumu.

D6. Ögedey, A., Yıldırım, N.C., Yıldırım, N., Tanyol, M., Danabaş, D. Tunceli ili Uzunçayır Baraj Gölü Üzerinde Belirlenen Bazı İstasyonlarda 2014 yılı İlkbahar Mevsiminde Toplanan Su Örneklerinin Fiziko-kimyasal Parametrelerinin Değerlendirilmesi, Ekoloji 2015 Sempozyumu, 06-09 Mayıs **2015**, Sinop, Poster sunumu.