

İSTANBUL TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ★ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**ÇELİK ELEKTROTLARIN KULLANILDIĞI ELEKTROKOAGÜLASYON
YÖNTEMİ İLE FLORÜR GİDERİMİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Kübra KONUK

**Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı
Çevre Bilimleri ve Mühendisliği Programı**

MAYIS 2014

İSTANBUL TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ★ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**ÇELİK ELEKTROTLARIN KULLANILDIĞI ELEKTROKOAGÜLASYON
YÖNTEMİ İLE FLORÜR GİDERİMİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Kübra KONUK

(501111723)

**Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı
Çevre Bilimleri ve Mühendisliği Programı**

Tez Danışmanı: Prof. Dr. N. Işık KABDAŞLI

MAYIS 2014

İTÜ, Fen Bilimleri Enstitüsü'nün 501111723 numaralı Yüksek Lisans Öğrencisi **Kübra KONUK**, ilgili yönetmeliklerin belirlediği gerekli tüm şartları yerine getirdikten sonra hazırladığı “**ÇELİK ELEKTROTLARIN KULLANILDIĞI ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMİ İLE FLORÜR GİDERİMİ**” başlıklı tezini aşağıda imzaları olan jüri önünde başarı ile sunmuştur.

Tez Danışmanı : **Prof. Dr. N. Işık KABDAŞLI**
İstanbul Teknik Üniversitesi

Jüri Üyeleri : **Prof. Dr. İdil Arslan ALATON**
İstanbul Teknik Üniversitesi

Doç. Dr. Abdurrahman AKYOL
Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü

Teslim Tarihi : **5 Mayıs 2014**

Savunma Tarihi : **28 Mayıs 2014**

Canım Aileme ve Tüm Sevdiklerime,

ÖNSÖZ

Çalışmalarım boyunca her türlü konuda her zaman yanımda olan, bu çalışma sırasında bilgi, deneyim ve desteğini benden esirgemeyen, değerli görüş ve düşünceleri ile yol gösteren, bu çalışmanın oluşmasında en büyük paya sahip çok değerli hocam Sayın Prof. Dr. N. Işık KABDAŞLI'ya tüm içtenliğimle teşekkür ederim.

Çalışmamın her aşamasında görüş ve düşünceleri ile yol gösteren değerli hocalarım Prof. Dr. Olcay TUNAY'a, Doç. Dr. Tuğba ÖLMEZ HANCI'ya ve Ar. Gör. Burçin COŞKUN'a ilgileri için çok teşekkür ederim.

Hayatımın her aşamasında olduğu gibi lisansüstü öğrenimim boyunca da desteklerini benden esirgemeyen sevgili aileme ve tüm dostlarıma yanımda oldukları için çok teşekkür ederim.

Mayıs 2014

Kübra KONUK
Çevre Mühendisi

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖNSÖZ.....	vii
İÇİNDEKİLER	ix
KISALTMALAR	xi
ÇİZELGE LİSTESİ.....	xiii
ŞEKİL LİSTESİ.....	xvii
ÖZET.....	xix
SUMMARY	xxi
1. GİRİŞ	1
1.1 Çalışmanın Anlam ve Önemi	1
1.2 Amaç ve Kapsam.....	2
2. FLOR.....	3
2.1 Florürün Çevredeki Önemi, Bulunuşu ve Genel Arıtım Uygulamaları	3
2.1.1 Florür Kaynakları	4
2.1.2 Florürün Sağlık Üzerine Etkileri	6
2.1.3 Florür Arıtma İhtiyacı ve Standartları	8
2.2 Florür Giderme Yöntemleri.....	9
2.3 Elektrokoagülasyon	13
2.3.1 Elektrokoagülasyonun Uygulama Alanları	16
2.3.2 Elektrokoagülasyon Yönteminin Avantajları ve Dezavantajları.....	16
2.3.3 Elektrokoagülasyon Proses Mekanizmasının İncelenmesi	17
2.3.4 Elektrokoagülasyon Proses Verimine Etki Eden Faktörler.....	20
2.4 Elektrokoagülasyonda Kullanılan Reaktör Tipleri.....	22
2.5 Elektrokoagülasyon ile Florür Giderimi.....	23
3. DENEYSEL ÇALIŞMA	41
3.1 Deneysel Çalışmanın Planlanması	41
3.2 Materyal ve Metot	42
3.3 Deneysel Sonuçlar ile İlgili Gerekli Hesaplamalar	44
3.4 Deneylerin Yürütülüşü	44
3.5 Deneysel Çalışma Sonuçları.....	45
3.5.1 Akım Yoğunluğunun Etkisi	46
3.5.2 Elektrolit Cinsi ve Elektrolit Konsantrasyonunun Etkisi	50
3.5.3 Başlangıç Florür Konsantrasyonunun Etkisi.....	55
3.5.4 Başlangıç pH'sının Etkisi.....	58
4. SONUÇ VE ÖNERİLER.....	63
KAYNAKLAR	67
EKLER.....	73
ÖZGEÇMİŞ.....	109

KISALTMALAR

APHA	: Standart Yöntemler
EPA	: Çevre Koruma Ajansı
TSE	: Türk Standartları Enstitüsü
WHO	: Dünya Sağlık Örgütü

ÇİZELGE LİSTESİ

Sayfa

Çizelge 2. 1: Florun özellikleri.	3
Çizelge 2. 2: Bazı endüstriyel atıksularda florür iyonu konsantrasyonları (Beyhan, 2003).	5
Çizelge 2. 3: Florür konsantrasyonları ve biyolojik etkileri (Rao, 2003).	7
Çizelge 2. 4: İçme suyu için florür standartları (İstanbul Su Kalitesi Raporu, 2004).	9
Çizelge 2. 5: Kıta içi su kaynaklarının sınıflarına göre florür için kalite kriterleri (SKKY, 2004).	9
Çizelge 3. 1: Farklı akım yoğunluklarında elektrokoagülasyon uygulaması görünür birinci derece reaksiyon kinetiği hız sabitleri.	49
Çizelge 3. 2: Farklı klorür dozajları ile yürütülen elektrokoagülasyon uygulaması görünür birinci derece reaksiyon kinetiği hız sabitleri.	55
Çizelge 3. 3: Farklı başlangıç florür konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon uygulaması görünür birinci derece reaksiyon kinetiği hız sabitleri.	57
Çizelge A. 1: 0.75 mA/cm ² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 0.75 mA/cm ² , oluşan çamur : 1250 mg AKM/L)	75
Çizelge A. 2: 1.51 mA/cm ² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 1.51 mA/cm ² , oluşan çamur : 1835 mg AKM/L).	76
Çizelge A. 3: 2.27 mA/cm ² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 2.27 mA/cm ² , oluşan çamur : 2655 mg AKM/L).	77
Çizelge A. 4: 3.03 mA/cm ² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 3.03 mA/cm ² , oluşan çamur : 3950 mg AKM/L).	78
Çizelge A. 5: 3.79 mA/cm ² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 3.79 mA/cm ² , oluşan çamur : 4700 mg AKM/L).	79
Çizelge B. 1: 3.79 mA/cm ² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 3.79 mA/cm ²).	81

Çizelge B. 2: 7.58 mA/cm ² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 7.58 mA/cm ²).	82
Çizelge B. 3: 11.37 mA/cm ² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları(F ₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 11.37 mA/cm ²).	83
Çizelge B. 4: 015.16 mA/cm ² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları(F ₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 15.16 mA/cm ²).	84
Çizelge C. 1: 50 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl: 50 mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 6085 mg AKM/L).	86
Çizelge C. 2: 75 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl: 75 mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 6005 mg AKM/L).	87
Çizelge C. 3: 100 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl: 100 mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 15335 mg AKM/L).	88
Çizelge C. 4: 125 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl: 125 mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 20880 mg AKM/L).	89
Çizelge C. 5: 150 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl:150 mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 20055 mg AKM/L).	90
Çizelge D. 1: 50 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl: 50 mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 6685 mg AKM/L).	92
Çizelge D. 2: 75 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl: 75mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 6005 mg AKM/L).	93
Çizelge D. 3: 100 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl: 100 mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 5335 mg AKM/L).	94
Çizelge D. 4: 125 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl: 125 mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 3800 mg AKM/L).	95
Çizelge D. 5: 150 mg/L Cl ⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ ~7, Cl: 150 mg/L, J: 11.37 mA/cm ² , oluşan çamur: 3850 mg AKM/L).	96
Çizelge D.6: 50 mg /L klorür eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, pH ₀ =3, J: 11.37 mA/cm ²).	97
Çizelge E. 1: Başlangıç florür konsantrasyonu 2 mg/L olarak hazırlanan numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları(pH~7, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm ²).	99
Çizelge E. 2: Başlangıç florür konsantrasyonu 3 mg/L olarak hazırlanan numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (pH~7, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm ²).	100

Çizelge E. 3: Başlangıç florür konsantrasyonu 4 mg/L olarak hazırlanan numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (pH~7, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm ²).	101
Çizelge E. 4: Başlangıç florür konsantrasyonu 5 mg/L olarak hazırlanan numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (pH~7, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm ²).	102
Çizelge F. 1: Başlangıç pH'sı 3 olarak hazırlanan numunede yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA/cm ²).	104
Çizelge F. 2: Başlangıç pH'sı 4 olarak hazırlanan numunede yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA/cm ²).	105
Çizelge F. 3: Başlangıç pH'sı 5 olarak hazırlanan numunede yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA/cm ²).	106
Çizelge F. 4: Başlangıç pH'sı 5 olarak hazırlanan numunede yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F ₀ : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA/cm ²).	107

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 2. 1: Elektrokoagülasyon ile giderim prosesi (Emamijomeh, 2006).	15
Şekil 3. 1 : Elektrokoagülasyonun gerçekleştiği reaktör.	43
Şekil 3. 2 : Elektrokoagülatör güç kaynağı.	43
Şekil 3. 3 : Farklı akım yoğunluklarında yürütülen denemelerde zamana bağlı normalize florür değişimi (F_0 : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, $pH_0 \sim 7$).....	46
Şekil 3. 4: Farklı akım yoğunluklarında yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi ($pH_0 \sim 7$ F_0 : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L).....	47
Şekil 3. 5 : 3.79 – 15.16 mA/cm ² arasında değişen akım yoğunluklarında zamana bağlı normalize florür değişimi (F_0 : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, $pH_0 \sim 6.5$)..	48
Şekil 3. 6 : 3.79 – 15.2 mA/cm ² arasında değişen akım yoğunluklarında zamana bağlı pH değişimi (F_0 : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, $pH_0 \sim 6.5$).....	49
Şekil 3. 7 : Farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı normalize florür değişimi (F_0 : 5 mg/L $pH_0 \sim 7$, J : 11.37 mA/cm ²).....	51
Şekil 3. 8 : Farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı pH değişimi (F_0 : 5 mg/L $pH_0 \sim 7$, J : 11.37 mA/cm ²).....	52
Şekil 3. 9 : Farklı KCl konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı normalize florür değişimi (F_0 : 5 mg/L, $pH_0 \sim 7$, J : 11.37 mA/cm ²).	53
Şekil 3. 10 : Farklı KCl konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı pH değişimi (F_0 : 5 mg/L, $pH_0 \sim 7$, J : 11.37 mA/cm ²).....	54
Şekil 3. 11 : Farklı başlangıç florür konsantrasyonlarında yürütülen denemelerde zamana bağlı normalize florür değişimi ($pH_0 \sim 7$, Cl: 50 mg/L, J: 11.37 mA/cm ²).....	56
Şekil 3. 12 : Farklı başlangıç florür konsantrasyonlarında yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi ($pH_0 \sim 7$, Cl: 50 mg/L, J: 11.37 mA/cm ²)..	57
Şekil 3. 13 : Farklı başlangıç pH'larında 5 mg/L florür ilaveli numunelerde yürütülen denemelerde zamana bağlı normalize florür değişimi (F_0 : 5 mg/L , Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm ²).....	58
Şekil 3. 14 : Farklı başlangıç pH'larında 5 mg/L florür ilaveli numunelerde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (F_0 : 5 mg/L , Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm ²).	59

Şekil 3. 15 :Farklı başlangıç pH'larında 5 mg/L florür ilaveli numunelerde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (F_0 : 5 mg/L , Cl: 50 mg/L (KCl), $J : 11.37 \text{ mA /cm}^2$). 60

ÇELİK ELEKTROTLARIN KULLANILDIĞI ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMİ İLE FLORÜR GİDERİMİ

ÖZET

Florür iyonu vücutta bulunması gereken temel bileşenlerden biridir. Ancak bu iyonun yüksek miktarlarda suda bulunduğu zaman insan sağlığına olumsuz etkilerinden dolayı arıtılma ihtiyacı gündeme gelmektedir.

Elektrokimyasal yöntemlerden biri olan elektrokoagülasyon prosesi son yıllarda su ve atıksu arıtımında kullanılmaya başlanmış olan uygulanması kolay, çoğu organik ve inorganik kirleticinin gideriminde etkili bir yöntemdir. Florürün insan ve çevre sağlığı açısından olumsuz etkilere sahip olmasından dolayı Dünya Sağlık Örgütü (WHO) ve Türk Standartları Enstitüsü (TSE) tarafından içme sularında bulunabilecek maksimum florür konsantrasyonu 1.5 mg/L olarak sınırlandırılmıştır.

İçme suyunda olduğu kadar birçok endüstriyel atıksuyun arıtımında elektrokoagülasyon prosesi tercih edilmektedir. Buna rağmen elektrokoagülasyonun florür gideriminde kullanımı ile ilgili literatürde yer alan çalışmalar oldukça kısıtlıdır. Bu çalışmalarda çoğunlukla alüminyum elektrotunun elektroliz ile defloridasyon prosesinde kullanımı üzerine odaklanmıştır. Yapılmış olan araştırmalar elektrokoagülasyonu esas alan geleneksel anlayış çerçevesinde ele alınmış diğer bir deyimle giderilecek kirleticilerin elektrotların çözünmesi ile oluşan alüminyum hidroksit yumakları üzerinde adsorpsiyon ve kimyasal çöktürme mekanizmaları çerçevesinde bağlanıp sudan uzaklaştırılmasını ve bu şekilde arıtımın gerçekleştirilmesini hedeflemişlerdir. Bu çalışmada çelik elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon prosesi gerçekleştirilmiş olup, optimumu işletme koşullarının belirlenmesi hedeflenmiştir.

Bu çalışmada sentetik olarak hazırlanan numuneler üzerinde çelik elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon yönteminin uygulandığı florür giderimi ile ilgili deneysel çalışmalar yürütülmüştür. Birinci bölümde çalışmanın anlam ve önemi, amaç ve kapsamı belirtilmiştir.

İkinci bölümde flor elementi ve florürün özellikleri, kullanım alanları ve kaynakları açıklanmıştır. Florun insan sağlığı üzerindeki etkisi anlatılmış; Türkiye’de flor içeren sular ile ilgili yapılan çalışmalardan söz edilmiştir. Üçüncü bölümde Türk Standartları Enstitüsü 266 ve Dünya Sağlık Örgütü’ne (WHO) göre içme suyu standartları ile farklı kurumlarca belirlenen florür standartları belirtilmiştir. Sulardan florür arıtma metotlarından bahsedilip literatürdeki uygulamalardan örnekler verilmiş, elektrokoagülasyonun tanımı yapıp bu prosesi etkileyen faktörler üzerinde durulmuştur. Elektrokoagülasyon yöntemi ile florür giderim mekanizması açıklanıp, literatürde sulardan elektrokoagülasyon metodu kullanılarak yapılan florür arıtma

uygulamaları anlatılmıştır. Üçüncü bölümde deneysel çalışmanın yürütülüşü verilmiş, içme sularından alüminyum elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon prosesi ile yapılan florür gideriminde optimum işletme koşulları belirlenmiştir. Dördüncü bölümde ise tartışma ve yorum açıklanmıştır.

FLUORIDE REMOVAL WITH ELECTROCOAGULATION USING STEEL ELECTRODES

SUMMARY

Fluoride ion is one of the basic components that must be present in the body. However, when high amount of this ion is found in water, it has negative effects on human health; so it needs to be treated.

World's Health Organization (WHO) and Turkish Standards Institution 266 have been limited fluoride concentration with 1.5 mg/L. In this case, to control fluoride at the drinking water sources, some treatment methods have been developed over the history. Chemical precipitation, adsorption, coagulation-flocculation, ion exchange, membrane processes are some of these treatment methods. At the beginning of twenty first century, there was a big need to develop a new technology for especially to treat micropollutants but also can be used for the conventional pollutants. At this point electrooxidation and electrocoagulation processes are investigated because of their advantages according to the other treatment options.

Electrocoagulation process is one of the electrochemical methods that has been developed for water and wastewater treatment in recent years. It is an easy and effective method for the removal of organic and inorganic pollutants.

Treatment of wastewater and wash water by electrocoagulation has been practiced for most of the 20th century with increasing popularity. In the last decade, this technology has been increasingly used in the United States, South America and Europe and also Turkey for treatment of industrial wastewater containing metals. It has also been noted that in North America electrocoagulation has been used primarily to treat wastewater from pulp and paper industries, mining and metal-processing industries. In addition, electrocoagulation has been applied to treat water containing foodstuff waste, oil wastes, dyes, marinas, public transit, wash water, ink, suspended particles, chemical and mechanical polishing waste, organic matter from landfill leachates, defluorination of water, synthetic detergent effluents, and solutions containing heavy metals.

In its simplest form, an electrocoagulation reactor is made up of an electrolytic cell with one anode and one cathode. When connected to an external power source, the anode material will electrochemically corrode due to oxidation, while the cathode will be subjected to passivation.

An electrocoagulation system essentially consists of pairs of conductive metal plates in parallel, which act as monopolar electrodes. It furthermore requires a direct current power source, a resistance box to regulate the current density and

a multimeter to read the current values. The conductive metal plates are commonly known as "sacrificial electrodes." The sacrificial anode lowers the dissolution potential of the anode and minimizes the passivation of the cathode. The sacrificial anodes and cathodes can be of the same or of different materials.

The arrangement of monopolar electrodes with cells in series is electrically similar to a single cell with many electrodes and interconnections. In series cell arrangement, a higher potential difference is required for a given current to flow because the cells connected in series have higher resistance. The same current would, however, flow through all the electrodes. On the other hand, in parallel or bipolar arrangement the electric current is divided between all the electrodes in relation to the resistance of the individual cells, and each face on the electrode has a different polarity.

During electrolysis, the positive side undergoes anodic reactions, while on the negative side, cathodic reactions are encountered. Consumable metal plates, such as iron or aluminum, are usually used as sacrificial electrodes to continuously produce ions in the water. The released ions neutralize the charges of the particles and thereby initiate coagulation. The released ions remove undesirable contaminants either by chemical reaction and precipitation, or by causing the colloidal materials to coalesce, which can then be removed by flotation. In addition, as water containing colloidal particulates, oils, or other contaminants move through the applied electric field, there may be ionization, electrolysis, hydrolysis, and free-radical formation which can alter the physical and chemical properties of water and contaminants. As a result, the reactive and excited state causes contaminants to be released from the water and destroyed or made less soluble.

In this study, experimental work was carried out about the removal of fluoride for which electrocoagulation method was applied to the samples of synthetic solution containing fluoride using steel electrodes. In the first part; the meaning, importance, purpose and scope of the study were stated. In the second part, properties, usage areas and sources of fluoride were explained. In this part, it was mentioned about the effect of fluoride on human health and some researches made about water containing fluoride in Turkey. Drinking water standards according to Turkish Standards Institution 266 and World Health Organization and fluoride standards set by different corporations were demonstrated.

Methods for the removal of fluoride from water were mentioned and examples from the applications in literature were given. Definition of electrocoagulation, factors affecting this process and mechanism for removal of fluoride with this process were stated, applications about this process found in literature were evaluated.

In the third part, outline of experimental work was given and optimum conditions for the removal of fluoride ion from drinking water by electrocoagulation method using steel electrodes were stated. First part of the study was to determine current density effect on electrocoagulation process. The effects of current density on electrocoagulation process is determined by the interval of $0.75 - 15.16 \text{ mA/cm}^2$ current density. It is observed that optimum current density was 3.79 mA/cm^2 and experiments are carried out with this value of current density. Then, electrolyte type and concentration effect is observed. NaCl and KCl electrolytes were used and determined that NaCl is more effective than KCl as an electrolyte on fluoride removal by electrocoagulation process. Beginning concentration of fluoride is effective on removing fluoride with electrocoagulation. At this point, to evaluate the

effect of beginning concentration of fluoride on electrocoagulation, 2 – 5 mg/L fluoride containing samples are prepared and experiments are performed. With 3.79 mA/cm² applied current density and 2 and 3 mg/L fluoride concentration, at the end of 240 minutes electrocoagulation, results showed that 1.5 mg/L fluoride standards were achieved. To investigate pH effect on fluoride removal by electrocoagulation, pH level is changed between 3 and 6. pH 3 was the most effective pH value as an starting pH of fluoride removal by electrocoagulation.

In this study, steel electrodes are used as electrodes of electrocoagulation process for the removal of fluoride and with the beginning of 5 mg/L fluoride concentration, 50 mg/L NaCl concentration, 3.79 mA/cm² current density and starting pH value as 3 is observed as the optimum condition.

In the last part of this study, discussion, comments and suggestions were stated.

1. GİRİŞ

1.1 Çalışmanın Anlam ve Önemi

İçme sularında florür giderimi, çevre ve insan sağlığına olumsuz etkileri nedeniyle gün geçtikçe önem arz eden konular arasında yer almaktadır. Flor insanlar açısından vazgeçilmez elementler arasında yer almaktadır. Doğada 13. sırada yer alan flor elementi diğer bütün maddelerle reaksiyona girdiği için flor ve bileşikleri su, hava ve toprakta yaygın olarak bulunabilmektedir. İçme suyu için Dünya Sağlık Örgütü (WHO) tarafınca florür için belirlenen sınır 1.5 mg/L'dir. Florür doğal bir bileşen olarak içme suyu kaynaklarında, 1-10 mg/L aralığında bulunabilmekte ve bunun sonucunda arıtma ihtiyacı ortaya çıkmaktadır. Flor iyonu insan vücudunda bulunması gereken temel bileşenlerden biridir ve sularda bulunan florür miktarına bağlı olarak insan sağlığı için faydalı veya zararlı olabilmektedir. Florür insan vücuduna solunum, gıda ve sıvı alım yoluyla girebilmektedir. 0.5 mg/L florürün dişler için faydalı olduğu ve diş çürümelerini azalttığı otoritelerce belirtilmektedir. Bununla beraber 2 mg/L florür içeren suyun dişlerde kahverengi lekeler bıraktığını, 4 mg/L florür içeren suyun ise kemik bozukluklarına sebep olduğu söylenmektedir. Örneğin yüksek miktarda flor alınması sonucu şekillenen flor zehirlenmesi “florozis” olarak adlandırılmaktadır (McDowell ve diğ., 1983; Walton, 1988, Karagül, 2008). Walton (1988), florozisle ilgili ilk bilgilerin yaklaşık 900 yıl kadar önce İzlanda’da volkanik patlamalara bağlı olarak ortaya çıktığını ve koyunlara ilişkin olduğunu rapor etmektedir (Karagül, 2008). Genel olarak florozis oluşumunda toprak, su ve bitkilerin doğal olarak içerdikleri flor konsantrasyonu önemli rol oynamaktadır. Ayrıca endüstriyel faaliyetlerin bunlar üzerindeki etkileri de üzerinde durulması gereken önemli bir diğer faktördür (Maylin ve Krook, 1982, WHO, 1984; McDowell, 1985; Eckerlin ve diğ., 1986; Ergun ve diğ., 1987; Fidancı ve diğ. 1994; Fidancı ve diğ. 1998; Altıntaş ve diğ., 2000; Fidancı ve Sel 2001, Karagül, 2008). Türkiye’de de özellikle volkanik bölgelerde florür konsantrasyonu yüksek olan sulara rastlanmaktadır.

Bu da içme sularından florür gideriminin önemini arttırmaktadır. İç Anadolu bölgesinde bazı flor rezervleri ve fabrikalar çevresindeki yüzey sularında insan ve hayvan sağlığına tehdit oluşturabilecek düzeyde florür konsantrasyonun bulunduğu yapılan çalışmalar sonucu belirtilmiştir (Fidancı ve diğ., 1996). Dolayısıyla doğal olarak flor zengini su kaynaklarının bulunduğu bölgelerde ve florca zengin topraklarda yetişen yem bitkilerinin hayvanlara verildiği alanlarda gerekli tedbirler alınmalı, florür ortadan kaldırılmaya çalışılmalıdır. Tüm bu nedenlerden florür gideriminin gerek doğal su kaynaklarından gerekse atıksulardan arıtımı daha da önem arz etmektedir. Bu sorunun çözümü için yapılan çalışmalar ve uygulamalar, arıtma yöntemleri geliştirme konusunun ne kadar önemli olduğunu göstermektedir. Bu konuda yapılan çalışmalardan elde edilen genel bilgiler son yıllarda pek çok kirleticinin elektrokoagülasyon ile arıtımı çalışmaları yapıldığını göstermektedir.

1.2 Amaç ve Kapsam

Sulardan florür gideriminde kimyasal çöktürme ve adsorpsiyon proseslerini bir arada içeren ve son yıllarda gittikçe önem kazanan elektrokimyasal bir yöntem olan elektrokoagülasyon ile florür arıtım çalışmaları literatürde yer bulmaktadır. Elektrokoagülasyon, elektroliz sonucu anotun çözünmesi ile temizlenecek atıksu içerisinde metal hidroksit floklarının oluşturulmasından ibaret olan bir prosestir. Elektrokoagülasyon prosesinin prensibi koagülasyon, adsorpsiyon, çöktürme ve flotasyon giderme mekanizmalarının biri veya bir kaçına dayandığı, alüminyum ve demir gibi metal anotların anodik çözünmeye uğraması ve hidrolizi ile çok az çözünen $Al(OH)_3$, $Fe(OH)_2$ ve $Fe(OH)_3$ gibi metal hidroksitlerin oluşması şeklindedir (Özyonar ve Karagözoğlu,2011).

Elektrokoagülasyon metodu ile içme suyundan florür arıtma çalışmaları ile ilgili literatürde yer alan deneysel çalışmalarda, distile suya florür tuzu ilaveli sentetik örnekler kullanılmıştır. Bu noktadan hareketle bu çalışma kapsamında; florürün içme sularından giderimini gerçekleştirmek için çelik elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon prosesi ile arıtılabilirliğinin incelenmesi, bu proseslere etki eden değişkenlerin arıtma performansına etkilerinin belirlenerek uygulanan arıtma yöntemi için optimum işletme koşullarının tanımlanması hedeflenmiştir.

2. FLOR

Yer kabuğunda yaklaşık 0,3 g/kg kadar bulunan flor, toprak, atmosfer, su ve canlıların dokularında yer alan bir halojendir. Flor bilinen tüm elementlerle florür bileşiklerini oluşturarak tüm organik ve inorganik maddeler ile reaksiyon vermektedir (Beyhan, 2003). Flor elementi doğada 13. sırada yer alan; diğer elementler içinde en reaktif ve elektronegatif olan korozif, halojenler ve oksihalojenür tuzlarını içeren mineraller halinde bulunmaktadır. Flor, periyodik sistemin halojenler sınıfından olan VII A grubu elementidir. Atom numarası 9, atom ağırlığı 19, proton ve elektron sayısı 9, nötron sayısı 10'dur. Kristal yapısı kübiktir ve 1886 da Joseph Henri Moisson tarafından bulunmuştur (Küçükırmak, 2007). Çizelge 2.1'de flor elementinin özellikleri verilmiştir.

Çizelge 2. 1: Florun özellikleri.

Özellik	Birim	Değer
Bulunuş tarihi	-	1886
Atom numarası	-	9
Atom ağırlığı	g/ mol	18,998
Erime noktası	°C	-219,62
Kaynama Noktası	°C	-188,14
Yoğunluğu	g/L	1,696

2.1 Florürün Çevredeki Önemi, Bulunuşu ve Genel Arıtım Uygulamaları

Flor elektronegatifliği en yüksek, en reaktif ametaldir. Bu sebepten doğada element durumunda bulunmamaktadır. Flor, oksijen ve soy gazlar hariç tüm elementler ile birleşmektedir. Doğal sularda fluosilikat iyonu SiF_2^- olarak da bulunmaktadır. Flor çoğu metal ile kompleks oluşturabilmektedir. Flor bileşiklerinden NaF kokusuz beyaz toz veya renksiz kristal şeklide bulunmaktadır.

pH 7.4'de 15°C'de suda çözünürlüğü % 4'dür (WHO, 2000). HF ise renksiz gaz şeklinde veya rahatsız edecek şekilde kuvvetli kokusu olan buharlaşmış sıvı şeklinde bulunmaktadır. Aşırı korozif bir madde olan hidroflorik asitin, sudaki çözünürlüğü çok yüksek, buhar basıncı 1 atm'den fazla, tahriş edici konsantrasyonu ise 4.17 mg/m³'tür (WHO, 2000).

Birçok su kaynağında eser miktarda florür bulunmakla birlikte, florür yeraltı kaynaklarında yüksek konsantrasyonlara ulaşabilmektedir. Yağmur suyunda 10 µg/L ve deniz suyunda 1.3 mg/L seviyelerinde florür bulunurken, florür içeren minerallerce zengin bölgelerde 10 mg/L, en yüksek seviyenin ise 2800 mg/L olabileceği rapor edilmiştir (Chapman, 1996). Nehirlerde de endüstriyel deşarjlardan kaynaklanan florür girdisi meydana gelebilmektedir. Yeraltı sularında, florür konsantrasyonu 10 mg/L civarındadır ve suyla sürüklenen kayanın tipine bağlı olarak değişkenlik gösterebilmektedir. Çok yüksek konsantrasyonlara volkanik akiferlerde, Doğu Afrika ve Hawaii'deki göllerde rastlanmaktadır. Doğal sularda ise florür konsantrasyonu, 0.05-100 mg/L arasında değişmekle birlikte genelde 0.1 mg/L'nin altında kalmaktadır (Chapman, 1996; WHO, 2003).

2.1.1 Florür Kaynakları

Doğal ve antropojenik kaynaklar ile alıcı ortamlara yayılan florür organik ve inorganik formlarda bulunmaktadır. Flor yeryüzünde serbest halde değil halojenler ve oksihalojenür tuzlarını içeren mineraller halinde bulunmaktadır. Flor iyonu doğada florspar (CaF₂), kriyolit (Na₃AlF₆) ve florapatit (Ca₁₀F₂(PO₄)₆) bileşikleri formunda bulunabilmektedir (WHO, 2003). Flor yoğunluğu %3-4 olan fosfat kayalarının bulunduğu Cezayir, Çin, İzlanda, Kuzey-Güney Amerika, Hindistan, Yeni Zelanda, Moldova, Utah, Idaho, Meksika gibi geniş bölgelerdeki flor içeriği %0,05 ve özellikle yeraltı sularında 15 ppm'e kadar yükselebilmektedir (Küçükırmak, 2007).

Florür ayrıca, döşeme cilalarında, petrol ve alüminyum endüstrilerinde, cam oyma ve kereste koruma, diyet takviye ürünleri, diş macunu (>1mg/g florür), diş tozu, gargara ve ek vitaminler gibi bazı tüketim ürünlerinde ve böcek (insektisit) ve kemirgen hayvan öldürücülerde (rodentisit) bulunmaktadır. Hidrojen florür

(hidroflorik asit), yarı iletken endüstrisinde, kimyasal solvent ve plastik üretiminde ve çamaşırhanelerde kullanılmaktadır (WHO, 2000, Dursun ve diğ. 2005).

Çoğunlukla endüstriyel kullanım kaynaklı, hidroflorik asit (HF) atmosferdeki en önemli florür bileşiğini oluşturmaktadır. Volkanik aktivitelerden kaynaklanan florür dağılımının dünya atmosferindeki miktarı yıllık 1.7×10^6 ton'dur (Samuk, 2011). Türkiye'de de özellikle volkanik arazilerde florür konsantrasyonu yüksek olan sulara rastlanmıştır (Fidancı ve diğ., 1996).

Yerleşik alanlarda havadaki florür kaynağının çoğu endüstriyel kaynaklardan gelmektedir. Bunun yaklaşık olarak %10'u alüminyum endüstrisinden kaynaklanmakla birlikte, çelik üretimi, fosfatlı gübre üretimi, cam işleme ve yağ rafineleri, kömür yakma enerji tesisleri de en önemli kaynaklar arasında yer almaktadır. Flor bileşikleri endüstriyel alanda önemli olmakla birlikte genellikle yarı iletken, alüminyum, gübre üretiminde ve nükleer uygulamalarda kullanılmaktadır (Sujana, 1998). Alüminyum eritme cevheri, fosfat cevheri, fosforik asit, hidrojen florür üretimi, cam üretimi gibi bazı endüstriyel atıksularda tespit edilen florür konsantrasyonları Çizelge 2.2'de verilmiştir.

Çizelge 2. 2: Bazı endüstriyel atıksularda florür iyonu konsantrasyonları (Beyhan, 2003).

Florür Konsantrasyonları (mg/L)		
Kaynak	Aralık (mg/L)	Ortalama (mg/L)
Alüminyum eritme cevheri	10-1400	148
Alüminyum üretimi (Gaz yıkama atıksuyu)	-	<1000
Fosfat cevheri cüruf söndürme fırını	73-270	-
Fosforik asit üretimi	4000-12000	-
	30-150	-

Hidrojen florür	-	13
üretimi	-	193
Cam üretimi:		
-Televizyon resim	-	143
tüpü	-	2800
-Akkor ampul	94-1980	-
soğutma		
-Preslenmiş ve		
şişirilmiş cam		
Alüminyum	-	2250
oksidasyonu		
önleme banyosu		
Çelik alaşımı	16000-39600	-
kireçlenmeyi		
önleme banyosu		

2.1.2 Florürün Sağlık Üzerine Etkileri

İnsan vücudunda florür kemiklerde, dişlerde, tiroid bezinde ve deride eser miktarda bulunmaktadır. İnsan için en önemli florür kaynağını su oluşturmaktadır (Hapcıoğlu ve diğ., 1992). Bu iyonun insan sağlığına hem olumlu hem de olumsuz etkileri görülmektedir (Drouiche ve diğ., 2008). İskelet sistemi ve diş gelişiminde büyük öneme sahip olan florürün, özellikle diş çürümelerinin önlenmesi için alınacak günlük miktarı 0,1 mg/kg'ı aşmamalıdır (Küçükırmak, 2007). Sulara bulunan florür konsantrasyonunun 1,5 mg/L'yi aşması dental florozis hastalığına neden olmaktadır (WHO, 2003).

Florür, inhalasyon, içme suyu ve yiyecek yolu ile organizmalara girebilmektedir. Havada florür partikül ve gaz halinde bulunması ile birlikte inhalasyon ile akciğerlerdeki alveollere ulaşarak problemlere neden olmaktadır (WHO, 2000). İçme sularındaki 1mg/L' lik florür ile insanların florür ihtiyacı karşılanmaktadır (WHO, 2000). Suların kaynatılması ile birlikte florür oranında azalma görülmektedir. Yiyeceklerde bulunan florür miktarı 0,01-1 mg/kg arasındadır. Deniz ürünleri ve çayda en yüksek oranda florür bulunurken, İngiltere'de yapılan

arařtırmada pořet ayda 0,4-2,8 mg/L florr bulunduėu tespit edilmiřtir (Kkırnak, 2007).

Maruz kalınan gnlk florr seviyesi bařlıca blgenin coėrafisine de baėlıdır. Hollanda’da gnlk florr girdisi 1.4–6.0 mg arasında deėiřmektedir. Bu girdinin %80-85’i yiyeceklerden, 0.03–0.68 mg/gn’ ime sularından, 0.2-0.3 mg/gn’lk deėer ise diř macunlarından kaynaklanmaktadır. ocukların gnlk su tketimi az olduėundan bunlar iin genelde kaynak yiyeceklerdir. Ayrıca vcoda florr girdisi vcut aėırlıėına baėlıdır. Vcutta bulunan florrn yaklařık %90’ı kemiklerde ve diřlerde bulunmaktadır (Dursun ve diė. 2005).

Florr insan vcudunda 5-10 mg/kg arasında bulunduėunda akut etkilere yol aarken, 16 mg/kg konsantrasyonuna ykseldiėinde ise lme neden olabilmektedir (WHO, 2000). Dřk miktardaki florr deėeri zellikle ocukların diř geliřimi ve saėlıėı aısından olumsuz etkiler gsterirken, yksek miktardaki florr diř ve kemiklerde birikmekte ve flororzis olarak bilinen hastalıėa yol amaktadır. Florrl suyun uzun vadede kullanımı kemikleri olumsuz etkilemekte ve aėır iskelet problemlerine yol amaktadır (Browne ve diė., 2004). izelge 2.3’te florr konsantrasyonlarının yol atıėı insanlar zerindeki biyolojik etkileri belirtilmiřtir.

izelge 2. 3: Florr konsantrasyonları ve biyolojik etkileri (Rao, 2003).

Florr konsantrasyonu, mg/L	Ortam	Etki
0,002-1	Su	Diř rmelerinde azalma
>2	Su	Diřlerde lekeli mine tabakası
8	Su	%10 Osteoskleroz hastalıėı
50	Yiyecek ve su	Tiroid bozuklukları
100	Yiyecek ve su	Byme geriliėi
120	Yiyecek ve su	Bbrek bozuklukları

Florür insan vücuduna solunun yoluyla veya yiyecek ve içeceklerle birlikte alındığında vücutta yayılımı çok hızlı bir şekilde gerçekleşerek dokularda birikmektedir ve idrar, dışkı ve ter yolu ile atılmaktadır (WHO, 2000).

2.1.3 Florür Arıtma İhtiyacı ve Standartları

Amerika Birleşik Devletleri Çevre Koruma Ajansı (EPA) tarafından içme suyu standartları, birincil standartlar yani sağlıkla bağlantılı olanlar ve ikincil standartlar yani estetik amaçlı olanlar şeklinde sınıflandırılmaktadır. Florür, birincil standartlarda toksik inorganik kimyasal olarak yer almaktadır (Pickards ve Reynold, 1996).

İçme sularındaki florür standardı, maksimum hava sıcaklığının yıllık ortalamasına bağlı olarak, 0.7-2.4 mg/L aralığında değişmektedir. Eğer sıcaklık 26.3-32.5°C arasında ise standart 0.7 mg/L, sıcaklık 4.4-12.1°C arasında ise bu değer 1.2 mg/L olarak değişmektedir (Pickards ve Reynold, 1996). Sıcak iklim kuşağında yaşayanların soğuk iklim kuşağında yaşayanlara nazaran daha fazla su tüketmesi sıcaklığa bağlı olarak içme suyu standartlarının farklılık göstermesinin temelidir. İçme suyu ile fazla florür tüketiminin, rahatsızlıklara sebep olması nedeniyle, florür standardını dengelemek ya da azaltmak gerekmektedir. Sular için bu özellikleri sağlamak ve suda bulunması istenilmeyen maddelerin belirli bir değerin altında tutmak için çeşitli standartlar geliştirilmiştir. Çizelge 2.4'te belirli kuruluşlarca içme suyu için belirlenmiş florür standartları verilmiştir.

Dünya Sağlık Teşkilatı (WHO) tarafından belirlenen içme suyu standartları tüm ülkelerde kabul görmektedir. Türkiye için kabul edilen içme suyu standardı ise Türk Standartları (TS 266) olup; burada içme suyu tanımı “kaynağına bakılmaksızın orijinal haliyle veya arıtıldıktan sonra bu standartta belirtilen özellikleri sağlayan genel olarak içme, yemek yapma, gıda maddelerinin hazırlanması (gıda maddelerinin hazırlanmasında gıda maddesi ile doğrudan temas eden sular) ve benzeri amaçlar için kullanılan sular” şeklinde yapılmaktadır. TS 266 standardı kapsamına giren sular kaynak suları ve kaynak dışı insani tüketim amaçlı sular olarak Sınıf 1 ve Sınıf 2 isimleriyle sınıflandırılmaktadır. Sınıf 1 sular tek tiptir, Sınıf 2 sular ise; işlem görmüş

kaynak (memba) suları (Tip 1) içme ve kullanma suları (Tip 2) olarak gruplandırılmaktadır.

Çizelge 2. 4: İçme suyu için florür standartları (İstanbul Su Kalitesi Raporu, 2004).

	Florür Konsantrasyonu, mg/L
Türk Standartları, TS 266, 1997	1.5
Dünya sağlık Teşkilatı (WHO), 1999	1.5
ABD Çevre Koruma Ajansı (EPA), 2002	0.7 – 2.4
Avrupa Birliği (AB), 1998	1.5

Su Kirliliği Kontrol Yönetmeliği (SKKY)'de Kıta İçi Su Kaynaklarının Sınıflarına Göre Kalite Kriterleri Çizelge 2.5'te verilmiştir.

Çizelge 2. 5: Kıta içi su kaynaklarının sınıflarına göre florür için kalite kriterleri (SKKY, 2004).

	Florür konsantrasyonu (mg/L)
1. Sınıf	1.0
2.Sınıf	1.5
3.Sınıf	2.0
4.Sınıf	>2.0

Çizelge 2.4 ve 2.5'ten içme sularında, sağlık açısından risk oluşturmayacak, florür konsantrasyonu için belirlenen standart değerin 1.5 mg/L olduğu görülmektedir. Bu amaç kapsamında florür konsantrasyonun yüksek olduğu su kaynaklarında florür giderimi için belirli metotlar geliştirilmiştir.

2.2 Florür Giderme Yöntemleri

Florür giderme yöntemleri koagülasyon, adsorpsiyon, iyon değişimi, elektrokimyasal ve membran prosesler olarak sınıflandırılabilir. Koagülasyon koagülanlar ekleyerek kolloid parçacıkların destabilizasyonu olarak tanımlanan durağan hallerinin bozulması ve bunun sonucunda tek başlarına

çökmeyen bu parçacıkların bir araya gelerek kolayca çökebilene kümeler haline dönüştürülmesidir. Koagülasyon prosesi ile florür giderimi kalsiyum ve magnezyum tuzları, polialüminyum klorür, alüminyum ve alum, kullanılarak gerçekleştirilmektedir.

Adsorpsiyonda çeşitli doğal ve sentetik maddeler kullanılarak su ve atıksulardan florürün giderimi gerçekleştirilmektedir. Bir katının veya bir sıvının sınır yüzeyindeki konsantrasyon değişimi olayı adsorpsiyon olarak tanımlanmıştır. Adsorpsiyon olayı maddenin sınır yüzeyinde moleküller arasındaki kuvvetlerin denkleşmemiş olmasından kaynaklanmaktadır. Adsorpsiyona etki eden faktörler olarak; adsorbatın ve adsorbanın yapısı, pH, sıcaklık, yarışan iyonlarının varlığı ve temas süresinin etkisi sıralanabilmektedir. Kömürleştirilmiş kemik, perlit, aktif karbon, bentonit, zeolit, aktif magnezyum, aktif alumina, granül demir oksit ve ağartma toprakları florür gideriminde kullanılan başlıca adsorbanlardır.

Elektrokimyasal yöntemler elektrokoagülasyon ve diğer elektrosorpsiyon proseslerini kapsamaktadır. Elektrokoagülasyon, elektroliz sonucu anotun çözünmesi ile arıtılacak atıksu içerisinde metal hidroksit floklarının oluşturulması esasına dayanan bir prosestir (Karagözoğlu ve Özyonar, 2011). Elektrosorpsiyon ise , elektrik alan uygulaması ile florür iyonlarının adsorpsiyonuna dayanan bir yöntemdir.

Membran tekniği; ters ozmoz, nanofiltrasyon, nano-ultrafiltrasyon, elektrodializ yöntemlerini içermektedir (Ayoob ve diğ., 2008).

İçme sularından ve atıksulardan florür gideriminde kullanılan yöntemler karşılaştırıldığında; bu proseslerin başında aktif alümina, kömürleşmiş kemik adsorbanlarının kullanıldığı adsorpsiyon yöntemi gelmektedir (Tetik, 2011). Adsorpsiyon etkin bir yöntem olmasına karşın kullanılan adsorbanların zor bulunması, pahalı olması ve uygulamadaki güçlükler nedeni ile bu prosesten dışında çeşitli metodlar da geliştirilmiştir. Koagülasyon yönteminde ise, kullanılan ekipmanlar kolay bulunur ve uygun işletme koşullarında florür giderimi fazladır; ancak yüksek florürlü sularda fazla miktarda kirletici içerdiğinde prosesin verimi düşüktür. Örneğin sülfat iyonu bu verimi düşüren bir kirleticidir. Elektrodializ, ters ozmoz, nanofiltrasyon gibi metodlar florür gideriminde etkilidirler. Ancak florür iyonu dışında birçok iyonu da giderdikleri için işletme maliyetleri

yüksektir. Florür arıtımında yüksek giderim verimlerinin elde edildiği bir metot elektrokoagülasyondur (Zuo ve diğ., 2008).

Literatürde su ve atıksulardan florür artımı ile ilgili yer alan çeşitli araştırmalar aşağıda özetlenmiştir:

Sollo ve diğerleri (1985) koagülasyon yöntemi ile başlangıç florür konsantrasyonu 5 mg/L olan suda giderim verimini etkileyen en önemli iki parametrenin alum dozunun başlangıç florür iyonu konsantrasyonuna oranı ve pH olduğunu belirtmişlerdir. Bu çalışmada 200mg/L alum dozu ile %60 verim sağlayan optimum pH'nın 6 civarında olduğu vurgulanmıştır.

Srimurali ve diğerleri (1998) florür iyonu gideriminde maliyeti düşük alternatifler üzerinde çalışmışlardır. Çalışmada başlangıç florür konsantrasyonu 5 mg/L olan bir çözeltide; bentonit, kömür tozu, kaolin, linyit materyalleri, florür arıtımı için kullanılmış ve bu adsorbanların 2 g/L dozunda florür giderim verimlerini sırasıyla % 33, % 19, % 18,2, % 7,9 ve % 5,9 olarak tespit edilmiştir. pH, adsorban dozu ve temas süresi gibi ortam şartlarının optimize edilmesiyle bentonit ile en yüksek florür giderim verimini % 40 olarak bulunmuştur.

Huang ve Liu (1999) yapmış oldukları çalışmada yarı iletken endüstrisinden kaynaklanan florür içeriği yüksek atıksu üzerinde çöktürme ve flotasyon uygulaması ile florür giderimini incelemişlerdir. Çalışmalarında CaCl_2 , $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$, $\text{Ca}(\text{OH})_2$ gibi üç farklı kalsiyum tuzu kullanılmıştır. CaCl_2 , $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ ve $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 'in giderim verimlerinin sırasıyla %88, %84 ve %64 olduğunu ve iyonik gücün artması ile birlikte CaF_2 çöktürme verimi ile flotasyon veriminin azaldığını tespit etmişlerdir.

Raichur ve Basu (2001) nadir toprak elementlerinden oluşan bir materyalle adsorpsiyon yöntemi ile florür giderimini araştırmışlardır. pH, adsorban miktarı, ortamda bulunan diğer iyonların etkisi gibi parametrelerin florür giderimi üzerinde etkilerini zamana bağlı olarak incelemişlerdir. Adsorpsiyonun maksimum olduğu pH değeri 6.5 olarak bulunmuştur. Deneylerde başlangıç florür iyonu konsantrasyonu 50 mg/L ve pH değeri 6.5 iken 60 dakikalık bir karıştırma işlemi sonucunda % 95-100 florür giderme verimine ulaşılmıştır. Adsorpsiyon kinetiğine göre florür iyonunun adsorplanmasının karıştırma işleminin

başlangıcından 5-10 dakika sonra tamamlandığı belirtilmiştir. Adsorpsiyonun Langmuir izotermine uyduğu saptanmıştır.

Mahramanlioğlu ve diğerleri (2002) asit ile muamele edilmiş gıda endüstrisi atık ağartma toprağı ile yaptıkları florür giderim çalışmasında giderme veriminin; temas süresi, pH, ve adsorban dozuna bağlı olduğunu belirtmişlerdir. Florürün adsorpsiyon mekanizmasını da materyal yüzeyine tutulma ve partiküllerarası difüzyon ile açıklamışlardır. Ortamda bulunan anyonlardan florür iyonu giderimi üzerinde olumsuz etki gösteren iyonları sırasıyla fosfat > sülfat > nitrat olarak tespit etmişlerdir. Bu çalışmada maksimum florür giderimi pH 3.5'ta gerçekleştirilmiştir.

Zhang ve diğerleri (2005) yürüttükleri çalışmada membran koagülasyon reaktörü kullanarak içme suyunda florür giderimini incelemişlerdir. Jar-Test denemeleri ile florür giderimi için optimum pH aralığını pH 6–6.7 olarak tespit etmişlerdir. Bu pH aralığında reaktöre sodyum hidroksit ve alüminyum sülfat ilave edince florür konsantrasyonun 4 mg/L'den 1 mg/L'nin altına düşmüştür.

Meenakshi ve Maheshwari (2006) florürün asıl kaynağının yeraltı suları olduğunu ve konsantrasyonun 1 ile 35 mg/L arasında değiştiğini vurgulamışlardır. Florürün insan sağlığına olumsuz etkilerinden dolayı içme suyundaki üst limit değerini 1 mg/L ve bu değerın sıcaklığa bağlı olarak değişeceğini rapor etmişlerdir. Florür giderimi araştırmalarında bazı prosesleri karşılaştırmışlardır. Bu çalışmada başlangıç florür konsantrasyonu 4 mg/L ile 9 mg/L ile değişen sentetik olarak hazırlanmış numunelerde aktif alümina ile adsorpsiyon ve Nalgonda tekniğinin (kireç ve alum ile ön çöktürme) kullanıldığı deneylerde florür giderimi % 70 civarında iken, ters ozmozda bu değerin % 90'lara çıktığı rapor edilmiştir.

Islam ve Patel (2007) yürüttükleri çalışmada aktif sönmemiş kireç (CaO) kullanarak sulu ortamdan adsorpsiyon ile florür giderimini incelemişlerdir. Çalışmada kullanılan CaO, dolamitin ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) parça boyutu 150 μm 'den küçük olacak şekilde öğütülmesi ve 450°C'de 4 saat bekleterek aktifleştirilmesiyle elde edilmiştir. Çalışma sonucunda 50 mg/L florür içeren sulu çözeltiye 5 g/L termal olarak aktifleştirilmiş CaO eklenerek % 80.5 oranında florür adsorpsiyonunu sağlanmıştır. Ancak düşük florür içeren sularda (10 mg/L) giderimin % 27.5 ile sınırlı kaldığı görülmüştür. Çalışmada florür giderimi için

optimum pH olarak 12.7, optimum temas süresi ise 75 dakika olarak rapor edilmiştir.

Sujana ve diğerleri (2009) amorf yapıdaki Fe/Al hidroksitin florür giderimindeki etkisi üzerinde çalışmışlardır. Fe ve Al tuzlarını pH 7,5'ta farklı oranlarda karıştırıp çöktürmüşler ve bu malzemenin kullanıldığı florür arıtımında pH, sıcaklık, başlangıç florür konsantrasyonunun proses verimi üzerine etkilerini incelemişlerdir. Başlangıç florür konsantrasyonu 20 mg/L, 30°C sıcaklıkta, adsorban dozu 0.5 g/L ve pH 4'te gerçekleşen deneylerde 2 saat sonunda en yüksek florür giderimin Fe:Al oranı 1 olduğunda gerçekleştiği belirlenmiştir.

Tang ve diğerleri (2009) yürüttükleri deneysel çalışmada granül demir hidroksitin (GFH) florürü adsorplama kapasitesinin belirlenmesinde iyonik güç, pH ve yabancı iyonların proses verimi üzerine etkisini incelemişlerdir. Yapılan çalışmalar sonucunda florür adsorpsiyonunun iyonik güçten etkilenmediği; ancak ortam pH'nın florür gideriminde büyük rol oynadığı sonucuna varmışlardır. GFH ile florür giderimini Freundlich izotermine ve pseudo-ikinci derece kinetiğine uyum gösterdiğini bulmuşlardır. Deneysel çalışmalar 25°C sıcaklıkta 10 g/L adsorban dozunda yürütülmüş olup 24 saat süre sonunda, başlangıç florür konsantrasyonu 10 mg/L olması durumunda 1 mg/g adsorpsiyon giderim kapasitesini elde edilmiştir.

Gao ve diğerleri (2009) sulu çözeltide sentetik olarak hazırlanan hidroksiapatit (HAP) ile florür giderimini araştırmışlardır. Deneysel çalışmalar 25°C sıcaklıkta yürütmüştür. Florür giderim kinetiği pseudo-ikinci dereceye oldukça iyi uyum sağlamakla birlikte Freundlich izotermine uyum göstermiştir. Çalışmada; en iyi giderim performansının düşük partikül çapında gerçekleştiği vurgulanmış ve florür giderim veriminin florür konsantrasyonu ve pH azaldıkça arttığı belirlenmiştir. Maksimum proses verimine pH 5, 0.5g/25mL adsorban dozunda ve 120 dakikada ulaşılmıştır. Bu işletme koşullarında başlangıç 5 mg/L florür konsantrasyonu için yaklaşık % 99'luk bir giderim verimi elde edilmiştir.

2.3 Elektrokoagülasyon

Elektrokimyasal yöntemler sırasıyla; elektrokoagülasyon, elektroflotasyon ve elektrooksidasyon olarak farklı kirletici giderme mekanizmalarını kapsayan su ve

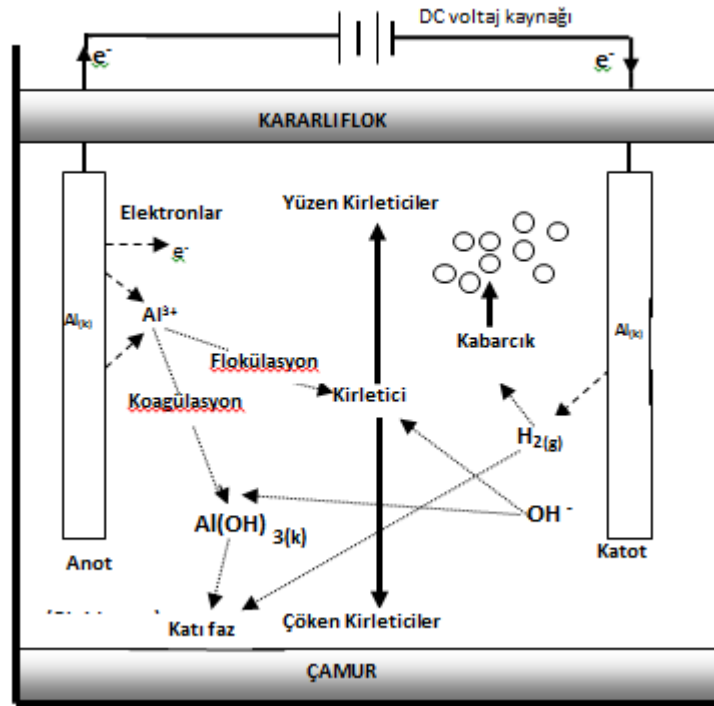
atıksu arıtma prosesleri sıralanabilmektedir. Elektroflotasyon suyun elektrolizi ile oluşturulan hidrojen ve oksijen gazlarının kabarcıkları ile kirleticileri su yüzeyine taşıyan bir prosestir (Chen, 2004).

Elektrooksidasyon uygulamasında ise anodik olarak oluşturulan klor ve hipoklorit kirleticilerin oksidasyonunda kullanılmaktadır (İlhan ve diğ. 2007). Elektrooksidasyon ve elektroflotasyon uygulamalarında çözünmeyen (inert) elektrotlar kullanılırken, elektrokoagülasyon prosesinde çözünen elektrotlar kullanılmaktadır. Elektrokoagülasyon uygulamalarında demir ve alüminyum elektrotların kullanımı oldukça yaygındır. Son yıllarda su ve atıksu arıtımında çoğu organik ve inorganik kirleticilerin gideriminde kullanılan elektrokoagülasyon basit ve etkili bir arıtma yöntemidir (Mollah ve diğ., 2001). Elektrokoagülasyon prosesi kirleticilerin atıksulardan arıtımını maksimuma çıkarmayı ve enerji tüketimini minimuma indirmeyi hedefleyen bir arıtma uygulaması olarak gündeme gelmektedir. Elektrokoagülasyon yöntemi atıksuda iyon oluşturmak üzere elektrotların kullanıldığı birçok fiziksel ve kimyasal prosesi birlikte içermektedir (Vardar, 2006). Böylelikle oluşan reaksiyonlar sonucunda su ve atıksu arıtımında, elektrokimya, adsorpsiyon, flotasyon ve koagülasyon reaksiyonları arasında bir etkileşim söz konusudur (Holt ve diğ. 2005).

Elektrokoagülasyon prosesinde koagülan, elektrokoagülatör içerisinde elektrolitik oksidasyon ile uygun anot materyalinde üretilerek, atıksu içinde bulunan (metal ya da diğerleri) zıt yüklü iyonlarla reaksiyona girerek ya da oluşan metal hidroksitlerin flokları üzerine adsorbe olarak giderilmektedir (Mollah ve diğ. 2001). Şekil 1’de elektrokoagülatör içerisinde alüminyum elektrotlarının kullanılması ile meydana gelen reaksiyonlar şematik olarak gösterilmiştir (Emamjomeh ve Sivakumar, 2006). Anotta oksidasyon ile metal iyon üretimi gerçekleşirken, katotta hidrojen gazı açığa çıkmaktadır. Bu proses; elektrolitik oksidasyon esnasında çözünen elektrot ile koagülan türlerin oluşumu, kirleticilerin destabilizasyonu, partikül süspansiyonu ve emülsiyonların parçalanmasıyla stabilize olmuş partiküllerin flok oluşturmak üzere yumaklaşması şeklinde, üç adımda gerçekleşmektedir. Kirleticilerin destabilizasyonu, partikül süspansiyonu ve emülsiyonların parçalanması, kurban anodun oksidasyonu sonucu oluşan iyonların etkileşimi ile çift tabakanın etrafındaki yüklü türlerin bastırılmasıyla, elektrokimyasal olarak çözünen elektrotlar tarafından üretilen zıt yüklü iyonlar ile sudaki mevcut iyonik türlerin yük nötralizasyonu,

flok oluşumuyla, gerçekleşmektedir (Vardar, 2006). Bunların dışında elektrokoagülasyon pilinde;

- atıksuda bulunan kirleticilerin katotta indirgenmesi,
 - kolloid partiküllerinin koagülasyonu,
 - çözeltideki iyonların elektroforetik göçü,
 - elektrotlarda oluşan O_2 ve H_2 kabarcıkları ile koagüle olmuş partiküllerin elektroflotasyonu,
 - metal iyonlarının katotta indirgenmesi,
 - diğer elektrokimyasal ve kimyasal prosesler,
- gibi fiziko-kimyasal prosesler de meydana gelmektedir (Emamjomeh ve Sivakumar, 2006).



Şekil 2. 1: Elektrokoagülasyon ile giderim prosesi (Emamijomeh, 2006).

Elektrokoagülasyon prosesinin diğer kimyasal arıtma sistemlerine kıyasla, atıksu karakterine bağlı olarak daha az kimyasal madde kullanılması ve daha az çamur oluşumu gibi üstünlükleri bulunmaktadır. Atıksuyun içerisinde elektrik akımı geçirilerek metaller, hidrokarbonlar ve organik maddeler de dahil olmak üzere askıdaki ve çözünmüş katılar destabilize olmaktadır (Vardar, 2006). Destabilize

olan iyonlarda, farklı elektrik yüklü parçacıklar ile birleşerek (koagüle olarak) çökelti oluşturmakta ve oluşan çökelti çeşitli çöktürme yöntemleri ile sıvı fazdan ayrılmaktadır (Samuk, 2011).

Metal oksitlerden oluşan çamur çökmeye elverişli ve suyunun alınması kolaydır. Ayrıca oluşan çamur ve köpük kurutulup yakma fırınlarında yakıt olarak kullanılabilir.

2.3.1 Elektrokoagülasyonun Uygulama Alanları

Elektrokoagülasyon prosesi, birçok avantajından dolayı farklı endüstriyel atıksuların arıtılmasında etkili bir yöntem olarak kullanılmaktadır. Literatürde elektrokoagülasyon prosesinin arıtmada sıkça kullanıldığı görülmektedir. Elektrokaplama atıksuları, ağır metal içeren atıksular, maden ocağı atıkları, tekstil endüstrisi atıksuları, çöp sızıntı suları, yüzey aktif maddeler içeren atıksular, tarım sanayi atıksuları, mandıra atıksuları, gibi spesifik inorganik/organik kirleticiler içeren atıksuların arıtımında ve yeraltı suları ile içme suyu arıtımında da kullanılmaktadır (Tetik, 2011).

Elektrokoagülasyon prosesi farklı karakterdeki atıksulardan kirleticilerin gideriminde etkili olabilmekle birlikte aynı zamanda yeraltı ve yüzeysel suların arıtımında da etkin bir şekilde kullanılmaktadır. Bu prosesin kullanıldığı bazı alanlar;

- yeraltı suyu arıtımı,
 - içme suyu arıtımı,
 - evsel atıksu arıtımı,
 - temaslı soğutma kuleleri kirlenmiş suları,
- olarak sıralanabilmektedir (Samuk, 2011).

2.3.2 Elektrokoagülasyon Yönteminin Avantajları ve Dezavantajları

Elektrokoagülasyon proseslerinin diğer arıtma yöntemlerine nazaran üstünlükleri ve zayıf kaldığı durumlar söz konusudur. Örneğin, elektrokoagülasyon prosesi uygulama sonrası yüksek kaliteli arıtılmış su elde edilebildiği durumlarda arıtılmış su yeniden tesis içinde veya diğer amaçlar için kullanılabilir. Ayrıca

elektrokoagülasyon prosesi ile arıtılmış sular, temiz ve renksiz olması sebebiyle alıcı ortam deşarj standartlarını rahatlıkla sağlamakta ve arıtım sonrası deşarj maliyetinin düşmesine sebep olmaktadır. Elektrokoagülasyon ile oluşan floklar, kimyasal floklara benzerlik göstermekle birlikte bu flokları daha büyük, daha az su bağılı, daha stabil ve bununla birlikte filtrasyonla daha hızlı ayrılabilen türdedir. Kimyasal koagülasyon uygulaması ile yüksek hacimli ve suyunu kolay veremeyen arıtma çamuru oluşmasına karşın elektrokoagülasyon sonunda oluşan çamur genellikle metal oksit ya da metal hidroksitlerden meydana gelmektedir. Dolayısıyla elektrokoagülasyon ile daha düşük hacimli ve suyunu daha kolay verebilen çamur üretilmektedir. Elektrokoagülasyonda işletme giderleri birçok standart arıtma yöntemine nazaran daha ekonomik olabilmekte, sadece güç kaynağı ve elektrokoagülatörden oluştuğu için bakımı da kolay olan bir yöntemdir.

Diğer arıtma yöntemlerine kıyasla dezavantajlarının başında ise elektrotların oksidasyon sonucu atıksu içerisine çözünmelerinden dolayı düzenli aralıklarla yenilenmesi gereksinimi sayılabilir. Ayrıca elektrik kullanımı söz konusu olduğundan maliyete etkilidir. Atıksuyun yüksek iletkenliğe sahip olabilmesi için bünyesinde elektrolit bulundurması gerekmektedir. Ayrıca katotta üretilen H₂ gazı çökelmeyi engellemektedir. Bunlara ilave olarak bazı durumlarda arıtılmış su ve atıksularda elektrotların çözünmesinden kaynaklı demir ve alüminyum konsantrasyonları standartların üstünde olabilmektedir. Elektrotlararası uygun aralıklar seçilmez ise metal hidroksitler elektrotlar arasında birikebilmektedir (Mollah ve diğ. 2001; Veressina ve diğ. 2001; Uğurlu, 2004; Özgürses, 2003; Samuk,2011).

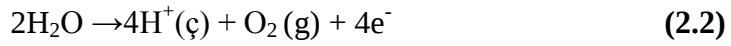
2.3.3 Elektrokoagülasyon Proses Mekanizmasının İncelenmesi

Elektrokoagülasyon yöntemi bir dizi kimyasal reaksiyonlar ile meydana geldiğinden bu yöntemi açıklayabilmek için proses sırasında meydana gelen kimyasal reaksiyonların incelenmelidir. Elektrokoagülasyon yönteminin temelinde elektrokimyasal pil oluşumu yatmaktadır. Bu sistemde elektrolit içine daldırılmış bir anot ve katot yer almaktadır. Dışarıdan elektrik enerjisi nakledilerek akım verildiğinde; katotta indirgenme oluşurken anotta yükseltgenme meydana gelmektedir (Mollah, 2004).

Elektrokoagülasyon prosesinde atıksudaki mevcut kirleticiler katodik olarak indirgenmektedir. Bu oluşumla partikül koagülasyonu ve çözeltideki iyonların elektroforik göçü gerçekleşirken, elektrotlarda oluşan O₂ ve H₂ gazları elektroflotasyonu ve çeşitli elektrokimyasal ve kimyasal prosesler gerçekleşmektedir. Bir dış güç kaynağıyla sağlanan elektrik akımı sonucunda anotta oksidasyon, katotta redüksiyon reaksiyonları meydana gelmektedir.

Anotun elektrokimyasal olarak çözünmesi katodun ise pasivasyonu sırasında elektrotların geniş yüzey alanına sahip olmaları gerekmektedir. M metali ile anot ve katottaki elektrokimyasal reaksiyonlar;

Anotta:

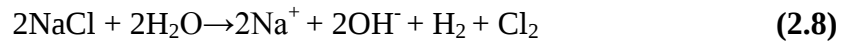


katotta ise:



şeklinde özetlenebilmektedir (Mollah ve diğ., 2004). Anotta suyun hidrolizi elektrik akımının hareketi sonucu gerçekleşmektedir. Katotta gerçekleşen redüksiyon reaksiyonlarının sonucunda ise hidrojen gazı oluşmaktadır. Elektrik akımını sağlamak amacıyla elektrokoagülasyon prosesinde NaCl yaygın olarak kullanılan bir elektrolittir.

NaCl sulu çözeltide sodyum ve klorür iyonlarına dönüşmektedir. Denklem 2.5 – 2.8 ile NaCl elektrolitinin elektrokoagülasyon sırasında gerçekleştirdiği reaksiyonlar verilmiştir.



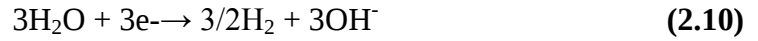
Alüminyum elektrotlar ve demir elektrotlar ucuz olmaları ve kolay temin edilmeleri nedeniyle elektrokoagülasyon prosesinde yaygın olarak kullanılmaktadır. Elektrotlarda meydana gelen proses mekanizmaları aşağıda özetlenmiştir.

Elektrokoagülasyon prosesinde düşük pH'da alüminyum anotunun çözünmesi sonucu, Al^{3+} , $Al(OH)_2^+$ gibi türler oluşmaktadır. Ardından, uygun pH aralığında önce $Al(OH)_3$, sonrada polimerize olmuş $Al_n(OH)_{3n}$ bileşiği meydana gelmektedir.

Alüminyum anotunda,



katodunda,



reaksiyonları gerçekleşmekte ve toplam reaksiyon;



Olarak elde edilmektedir. Bununla birlikte pH'a bağlı olarak $Al(OH)^{2+}$, $Al_2(OH)_2^{4+}$ ve $Al(OH)_4^-$ gibi türler de ortamda bulunabilmektedir (Bazrafshan ve diğ., 2012).

Demir elektrotlar kullanıldığında, Fe^{3+} iyonları çözelti pH'sına bağlı olarak $Fe(OH)_3$ katı fazı ve $Fe(H_2O)_6^{3+}$, $Fe(H_2O)_5(OH)^{2+}$, $Fe_2(H_2O)_6(OH)_4^{4+}$ gibi polimerik hidroksi kompleksler oluşmaktadır. Demir anotunun elektrolitik çözeltideki ürünleri düşük pH'ta $Fe(OH)_4^-$ gibi türlerdir. Bunlar uygun pH değerlerinde önce $Fe(OH)_3$ 'e sonuçta ise $Fe_n(OH)_{2n-3n}$ 'e polimerleşmektedir (Uygun, 2003).

Demir anodunda;



katodunda ise;



reaksiyonları gerçekleşmektedir. Anot ve katotta gerçekleşen toplam reaksiyon;



şeklindedir. Bu reaksiyonlar sonucu açığa çıkan Al^{3+} ve Fe^{2+} iyonları koagülan olarak, partiküllerin flokülasyonu için oldukça verimlidir. Hidrolize olmuş iyonlar geniş zincir ağları kurarak, su veya atıksu içerisindeki kirleticileri adsorplamaktadır (Bazrafshan ve diğ., 2012).

2.3.4 Elektrokoagülasyon Proses Verimine Etki Eden Faktörler

Elektrokoagülasyon uygulamasında proses verimi üzerinde etkili olan parametreler;

- arıtılacak kirleticinin başlangıç konsantrasyonu,
- elektrot malzemesinin cinsi,
- akım yoğunluğu,
- başlangıç pH'sı,
- elektrolitin cinsi,
- çözeltinin iletkenliği,
- yabancı iyonların mevcudiyeti,
- sıcaklık,
- süre,

olarak sıralanabilmektedir (Samuk, 2011).

Elektrokoagülasyon prosesinde kullanılan elektrot malzemelerinin seçiminde düşük maliyete ve düşük oksidasyon potansiyeline sahip olması önemli bir faktördür. Karbon, yumuşak çelik, demir, grafit titanyum ve alüminyum genellikle kullanılan elektrot malzemelerindendir (Ghosh ve diğ. 2008). Halojen organik bileşikleri oksitlemede test edilmiş bir yeteneğe sahip olan demir elektrot, tuz içeriği yüksek atıksularda başarılı kullanımı ve elektrooksidasyon için diğer malzemelere kıyasla daha düşük maliyetli olması nedeniyle tercih edilmektedir (Bejankiwar, 2005). Elektrotların kullanım ömrünü uzatmak için, deneyler sonrasında uygun çözelti ile yıkanması ve durulanması faydalıdır. Alüminyum elektrotunun demir elektrota karşılık tercih edilmektedir.

Bu durumun bir sebebi de kalıntı demirin hava ile çok çabuk reaksiyona girerek oksidasyonu sonucu arıtılmış suyun renkli olmasına sebep olmasıdır (Hu ve diğ. 2008). Suda önemli miktarda Ca^{2+} veya Mg^{2+} iyonları bulunuyorsa katot malzemesi olarak paslanmaz çelik kullanılması tavsiye edilmektedir (Chen, 2004).

Elektrokoagülasyon prosesinde uygulanan akım, elektrotlardan açığa çıkacak olan iyonların miktarını belirlemektedir. Akım yoğunluğunun çok yüksek uygulanması akım veriminde düşüğe neden olabilmektedir (Chen, 20004). Elektrotların uzun süre kullanılabilmesi için akım yoğunluğunun $2.0\text{-}2.5 \text{ mA/cm}^2$ aralığında seçilmesi önerilmektedir (Chen, 2004). Aynı zamanda uygun akım yoğunluğunun seçimi arıtılacak su veya atıksuyun debisinin yanı sıra pH ve sıcaklık parametreleri dikkate alınarak yapılmalıdır (Chen, 2004). Bununla birlikte yüksek yük yüklemesi ile daha fazla gaz baloncukları oluşarak, arıtılmış suda oluşan çamurun uzaklaştırılmasının kolaylaşacağı bilinmektedir (Samuk, 2011).

Su veya atıksuyun pH'sı elektrokoagülasyon esnasında oluşan metal hidroksitlerin çözünürlüğünü belirleyici bir parametredir. pH, metal hidroksitlerin yanı sıra akım verimini de etkilemektedir. (Chen, 2004). Örneğin, alüminyum elektrotlarının akım verimi, nötral şartlardan ziyade alkali ya da asidik şartlarda daha yüksektir. Çok asidik ve bazik pH değerlerinde metal hidroksit çözünürlüklerinde artış meydana gelecek ve buna bağlı olarak koagülasyona dayalı flok oluşumunda azalmalar söz konusu olacaktır. Elektrolit olarak NaCl kullanılması durumunda;



reaksiyonları meydana gelmektedir. Bu reaksiyonlar uyarınca asidik pH'larda kuvvetli oksidan olan HOCl oluşumu, nötr veya hafif alkali pH'larda OCl^- oluşumu meydana gelmektedir. Çok yüksek pH'larda ($\text{pH} > 11$) ise OCl_3^- ve OCl_4^- oluşumu nedeniyle oksidan gücünde önemli düşüşler söz konusu olabilmektedir. Elektrokoagülasyon sonrası çıkış suyunun pH'sı asidik atıksular için artma, alkali atıksular için azalma eğiliminde olması elektrokoagülasyon prosesin avantajlarından

bir tanesi sayılabilmektedir. Asidik koşullarda pH'daki bu artışın nedeni katotlarda oluşan hidrojen gazı olduğu tespit edilmiştir (Vardar, 2006).

Elektrokimyasal prosesler için çözeltinin iletkenliği önemli bir faktördür. Sentetik olarak hazırlanan çözeltilerin iletkenliği elektrolit çözeltisinin tipine ve konsantrasyonuna bağlıdır. Elektrokoagülasyonda elektrolit kaynağı olarak, oldukça yüksek iletkenlik ve yüksek çözünürlüğe sahip, düşük maliyetli ve aktif klorün güçlü oksitleme özellikleri nedeniyle genellikle NaCl kullanılmaktadır (Kim ve diğ. 2002). Klorür iyonu su veya atıksuyun iletkenliğini artırarak enerji tüketimini düşmesine ve suda mevcut bulunan HCO_3^- veya SO_4^{2-} iyonlarının olumsuz etkilerinin azalmasına imkan tanımaktadır. Bununla birlikte klorür iyonu, oyuk korozyonu oluşturarak daha fazla $\text{Al}(\text{OH})_3$ floklarının oluşmasına yardım etmektedir.



Karbonat veya sülfat iyonlarının bulunması ayrıca, Mg^{2+} ve Ca^{2+} iyonları ile çözünürlüğü düşük katı faz oluşumu nedeniyle elektrot yüzeyinde ayrı bir tabaka meydana getirmektedir. Bu oluşumda elektrotlar arasında potansiyeli artırarak, akım veriminin azalmasına sebep olmaktadır.

Literatürde elektrokoagülasyon teknolojisinin kullanımının uzun yıllardır var olmasına karşılık sıcaklığın bu proses üzerindeki etkisinin çok fazla araştırılmadığı görülmektedir. Su arıtımında alüminyum elektrot kullanıldığında akım veriminin başlangıçta sıcaklık ile arttığı, 60°C'de maksimum akım verimine ulaşıldığı ve devamında artışın durduğu saptanmıştır. 60°C'den sonraki sıcaklık artışları akım veriminde düşüşe neden olmaktadır. Sıcaklık ile akım veriminin artması elektrot yüzeyi üzerindeki alüminyum oksit tabakasının parçalanması sonucu aktivitenin artması ile gerçekleşmektedir. Sıcaklık çok yüksek iken elektrot yüzeyinde birikme eğilimi fazla olan flokların meydana gelmesi ile sonuçlanan gözenekli $\text{Al}(\text{OH})_3$ oluşumu gerçekleşmektedir (Chen, 2004).

2.4 Elektrokoagülasyonda Kullanılan Reaktör Tipleri

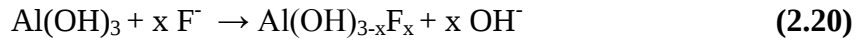
Elektrokoagülasyonda reaktörlerde tek kutuplu elektrokoagülasyon pillerinin, paralel veya seri bağlanması sonucu performansın arttığı görülebilmektedir. Elektrokoagülasyon reaktörlerindeki iletken metal plakalar “kurban elektrotlar”

olarak adlandırılmaktadır. Anot elektrotların çözünmesi veya tükenmesi sonucu anodun çözünme potansiyeli azalmakta ve katodun pasivasyonu minimuma düşmektedir. Tek kutuplu elektrotların seri bağlanması ile içteki çözünen anot elektrotların en dıştaki monopolar anot veya katot ile bir bağlantısı bulunmamaktadır. Seri bağlı elektrotların kullanıldığı sistemlerde direncin yüksek olması sebebiyle ortama verilecek akımın geçmesi için daha yüksek bir potansiyel fark uygulamak gerekmektedir. (Mollah ve diğ. 2004).

Elektrotların paralel çift kutuplu bağlandığında, güç kaynağına bağlı olan monopolar anot elektrot ile monopolar katot elektrot arasına birbiri ile bağlantısı olmayan çözünen anot elektrotlar yerleştirilmektedir. Reaktördeki sıvı çözeltiye elektrik akımı uygulandığında, ortamdaki çözünen bağımsız anot elektrotların bir yüzü anot diğer yüzü katot gibi davranmaktadır. Bu reaktör düzeni kurulumu basit olup, kullanım sırasında bakımı kolaydır. Elektrokoagülasyon sisteminin basit olması için elektrot plakaları genellikle çift kutuplu mod esas alınarak düzenlenmektedir (Mollah ve diğ. 2004, Samuk, 2011).

2.5 Elektrokoagülasyon ile Florür Giderimi

İçme suyunda olduğu kadar birçok endüstriyel atıksuyun arıtımında elektrokoagülasyon prosesi tercih edilmektedir. Buna rağmen elektrokoagülasyonun florür gideriminde kullanımı ile ilgili literatürde yer alan çalışmalar oldukça kısıtlıdır. Bu çalışmalarda çoğunlukla alüminyum elektrotunun elektroliz ile defloridasyon prosesinde kullanımı üzerine odaklanmıştır. Alüminyum anotunun ayrışması sonucu oluşan Al^{3+} iyonu, polimerize olarak ve $Al(OH)_3$ katı fazına dönüşmekte ve Denklem (2.20)'de görüldüğü üzere $Al(OH)_{3-x}F_x$ bileşiğini oluşturmaktadır (Shen ve diğ. 2003).



Bununla beraber, Ming ve diğ. (1983) tarafından yapılan çalışmada Al^{3+} iyonunun AlF_6^{3-} formuna dönüşebileceği ve sodyum tuzu ilavesi ile de suda çözünmeyen Na_3AlF_6 bileşiğini oluşturabileceği de rapor edilmiştir.

Bu bölümde elektrokoagülasyon uygulamaları ile florür gideriminin incelendiği literatür özetlenmiştir.

Emamjomeh ve Sivakumar (2009) monopolar alüminyum elektrotlar kullanarak elektrokoagülasyon prosesiyle florür giderimini inceledikleri çalışmalarında, sürekli sistemde başlangıç pH değeri 4-7, başlangıç florür konsantrasyonu 5-25 mg/L, akım yoğunluğu 1.25-5 mA/cm² ve akış hızı 150-400 mL/dk gibi farklı işletme parametrelerinin proses verimi üzerine etkilerini araştırmışlardır. Deneysel çalışma kapsamında, 950×200×3 mm boyutunda 2 alüminyum elektrot kullanılmıştır. Bu çalışmada kullanılan numune NaF ve NaCl tuzlarının distile suda çözülmesi ile hazırlanmıştır. Numunenin iletkenliği 0,005 M NaCl ile yükseltilmiştir. Elektrokoagülasyonda akım yoğunluğunun ve koagülan dozunun florür giderim hızını etkileyen önemli parametreler olduğu rapor edilmiştir. Toplam alüminyum miktarının artan akım ile arttığını ve bu çalışmada maksimum alüminyum konsantrasyonu olan 355 mg/L'ye 5 mA/cm² akım yoğunluğu ve 150 mL/dk hızında ulaşıldığını tespit etmişlerdir. 150 mL/dk hızında ve 10 mg/L giriş florür konsantrasyonunda, akım 1.25 mA/cm²'den 5 mA/cm²'ye çıkarıldığında çıkış florür konsantrasyonu sırasıyla 1.37 mg/L ve 0.12 mg/L olurken, giriş florür konsantrasyonu 25 mg/L'ye yükseltildiğinde ise bu değerler 8.8 mg/L ve 2.5 mg/L olarak elde edilmiştir. Florür giderimi için optimum pH değerinin 6-8 arasında olduğu saptanmıştır. Bu deneysel çalışmada giriş florür konsantrasyonu 10 mg/L ve pH 6 olduğunda, çıkış florür konsantrasyonu 0.74 mg/L olarak elde edilirken, başlangıç pH değeri 8'e yükseltildiğinde çıkış florür konsantrasyonunun da 1.04 mg/L'ye yükseldiği belirlenmiştir.

Rao ve diğerleri (2003) alüminyum bipolar elektrotlar kullanarak elektrokoagülasyon yöntemi ile sulardan florür giderim mekanizmasını incelemişlerdir. Sentetik olarak hazırladıkları numunelerle yürüttükleri deneysel çalışmada; elektrotlar arası mesafenin, başlangıç florür konsantrasyonunun, sıcaklığın ve pH'nın florür giderim verimi üzerinde etkili olduğunu belirtmişlerdir. Bu çalışmada giderim mekanizması, anottaki alüminyumun suda çözünerek alüminyum hidroksit olarak çökmesi, florürün bu bileşik üzerine adsorplanarak sudan uzaklaşması şeklinde açıklanmıştır. 5-10 mg/L florür içeren numunelerde elektrokoagülasyon prosesinin 1000 L başına 0.3 ile 0.6 kwh elektrik harcadığı rapor edilmiştir. Anot sürekli olarak tükendiği için deneysel çalışmalar sırasında alüminyum elektrotlar yenilenmiştir. Proses sonucunda oluşan çamurun 1000 L numune için 80 ile 100 mg arasında değiştiği belirtilmiştir.

Yang ve Dluhy (2002) elektrokoagülasyon ile florür gideriminin incelendiğini çalışmalarında, elektrolit olarak NaCl çözeltisinin bulunduğu ortamda elektrokoagülatöre paralel olarak yerleştirilmiş alüminyum elektrotların anodik çözülmesiyle oluşan Al-adsorbanları ile florür arıtımı gerçekleştirmişlerdir. Bu çalışmada pH, akım yoğunluğu, NaCl dozu, reaksiyon süresi ve voltaj gibi işletme parametrelerinin florür giderimi üzerine etkisi araştırılmıştır. Beş alüminyum elektrot reaktöre paralel olarak yerleştirilmiş, elektrotlararası mesafe 4 mm olarak ayarlanmış ve reaktör hacmi 560 cm³ olarak seçilmiştir. Düşük iletkenlikte, 0.75 mA/cm² akım yoğunluğu oluşturmak için 14 V'a ihtiyaç duyulurken, işletme sırasında bu akımı koruyabilmek için 27 V'a kadar çıkmak gerektiği saptanmış, bu şartlar altında pH 6.2'de ve 12 dakika sonunda Al adsorbanlarının (8mL/L) oluştuğu tespit edilmiştir. Bu çalışmada akım yoğunluğunun artması ile anot yüzeyinin oksit film tabakası ile kaplanarak pasivize olduğu gözlemlenmiştir. Bu sebeple iletkenliğin artırılması yönünde deneylere devam edilmiş ve 50 mg/L NaCl çözeltisi ile 0.75 mA/cm² akım yoğunluğuna ulaşabilmek için sadece 7.2 V ihtiyaç duyulduğu belirlenerek hem enerji tüketiminin azalması hem de adsorban oluşumunun artması sağlanmıştır. 1.5 mA/cm² akım yoğunluğunun olduğu reaktör içerisinde, 150 mg/L NaCl çözeltisi ile 12 dakika sonunda 80 mL/L Al adsorbanı oluşturulmuş ve bu taze oluşturulan adsorbanlar ayrı bir kap içerisine alınarak florür gideriminde kullanılmıştır. 17 mg/L'lik florür konsantrasyonunun 2 dakika sonunda, pH 8'de 2 mg/L'ye kadar düştüğü tespit edilmiştir. Çözeltinin pH değeri HCl ile 6.3'e getirildiğinde florür konsantrasyonunun 0.1 mg/L'ye kadar düştüğü deneysel çalışmalarla belirlenmiştir.

Ghosh ve diğerleri (2008) içmesularından elektrokoagülasyon ile florür giderimi üzerinde yaptıkları çalışmada başlangıç florür konsantrasyonunu 4–10 mg/L arasında alarak, alüminyum elektrotların farklı bağlanmaları durumunun proses performansını incelemişlerdir. Deneysel çalışmalar 25°C'de, 25 – 62.5 mA/cm² akım yoğunluğu aralığında, 40 cm² aktif yüzey alanı olan ve birbirlerine mesafesi 5 mm olacak şekilde, boyutları 150×100×2 mm olan alüminyum elektrotlar kullanılarak yürütülmüştür. Monopolar bağlamada 2 elektrot, bipolar bağlamada ise 4 elektrot kullanılmıştır. Monopolar bağlama ile yürütülen deneysel çalışmada 25 mA/cm² akımda 4 mg/L giriş florür konsantrasyonunda 35 dakika sonunda florür konsantrasyonunun 1 mg/L'ye indiği görülmüş, giriş değerlerinin sırasıyla 6, 8 ve 10 mg/L'ye çıkarılması durumunda 45 dakika sonunda sırasıyla, çıkış florür

konsantrasyonlarının 1.4- 1.8 ve 2.2 mg/L değerlerine yükseldiği rapor edilmiştir. Bipolar bağlama durumunda ise 10 mg/L başlangıç florür konsantrasyonunda 25 mA/cm² akım ve 45 dakika sonunda çıkış florür konsantrasyonu 1.7 mg/L olarak ölçülmüştür. Bipolar bağlamada daha fazla florür giderimi elde edilmesi, kullanılan fazla elektrot sayısına bağlı olarak daha fazla yüzey alan olması ve uygulanan akım yoğunluğunun daha yüksek olması ile açıklanmıştır.

Zuo ve diğerleri (2008) yürüttükleri deneysel çalışmada, elektrokoagülasyon-flotasyon prosesi ile içme suyundan florür giderimini başlangıç pH'sının ve suda bulunan diğer iyonların etkisini incelemiştir. Deneysel çalışmalarda aktif alanı 64 cm² olan, 160×47×4 mm boyutunda, aralarındaki mesafe 4 mm olan bipolar bağlı 3 alüminyum elektrot kullanılmıştır. Başlangıç florür konsantrasyonu 4-6 mg/L arasında seçilmiş, başlangıç pH değeri düştükçe florür gideriminin arttığı tespit edilmiştir. Başlangıç pH değerlerinin 4-7 aralığında olduğunda 0.55-0.87 mg/L F⁻ değerine ulaşıyor iken, pH 8 ve üzerine çıkıldığında çıkış florür konsantrasyonun 1.6 mg/L'ye yükseldiği saptanmıştır. Diğer iyonların etkileri incelendiğinde, numunede hiç sülfat (SO₄²⁻) iyonu bulunmadığı durumda çıkış F⁻ konsantrasyonu 0.87 mg/L iken, sülfat konsantrasyonu 250 mg/L olduğunda, çıkış F⁻ konsantrasyonu 1.85 mg/L'ye yükselmiştir. Çalışmada klorür iyonunun iki farklı şekilde florür gideriminde etkisi olduğu belirlenmiştir. İlk etki alüminyum elektrotlarının üzerindeki pasif film oluşumunu bozması şeklinde ortaya çıkmaktadır. Bu etkiyle klorür konsantrasyonu arttıkça elektrokoagülasyon veriminde de bir artış meydana gelmektedir. İkinci etkisi ise klorür iyonunun sülfat iyonunda olduğu gibi, florür gideriminde engelleyici bir rol oynamadığını, sülfat gibi iyon yarısına girmediğini göstermiştir. Kalsiyum (Ca²⁺) iyonunun etkisi, CaF₂ katı fazının oluşumu ile florür giderim verimindeki artış olarak tespit edilmiştir. Zira ortamda Ca²⁺ olmadığı şartlarda çıkış florür konsantrasyonu 0.87 mg/L iken, Ca²⁺ konsantrasyonu 250 mg/L olduğunda florür konsantrasyonunun 0.23 mg/L'ye düşmesi, CaF₂ katısının oluşumu ile açıklanmıştır. Ancak kalsiyum konsantrasyonu 150 mg/L'nin altında iken CaF₂ oluşmadığı da saptanmıştır. Deneysel çalışmaların sonucunda, elektrokoagülasyon ile florür giderimi için optimum pH değerinin 6-7 olduğu, giriş F⁻ konsantrasyonu 4 mg/L iken, yük yükleme 3 F/m³ ve 2.2 mA/cm² akım yoğunluğu ile bu değer 1mg/L'nin altına indirildiği, sülfat iyonunun florür gideriminde olumsuz, kalsiyum iyonunun da olumlu etkiye sebep olduğu sonucuna varılmıştır.

Literatürde Hu ve diğerleri (2003 ve 2005), Shen ve diğerleri (2003) ve Drouiche ve diğerleri (2008) elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderimi üzerine suda mevcut bulunan Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , Br^- , PO_4^{3-} , HCO_3^- gibi iyon türlerinin etkilerini incelemişlerdir. Hu ve diğerleri (2003) gerçekleştirdikleri çalışmada, suda yabancı iyon bulunmaması durumunda anot yüzeyinin yapısı defloridasyon öncesi ve sonrası incelemişlerdir. Bu çalışmada elektrokoagülasyon reaksiyonu sonunda anot yüzeyinde %70'in üzerinde serbest alüminyum biriktiği ve jelatinimsi bir tabakanın oluştuğu belirtilmiştir. Suda yabancı iyon bulunması durumunda ise bu iyonların Al^{3+} iyonuna olan ilgisi sebebiyle, florürün alüminyum hidroksit üzerinde tutulmasının engellenerek florür giderim veriminin azaldığı belirtilmiştir. Al^{3+} iyonun seçiciliği $F^- > SO_4^{2-} > Cl^- > NO_3^-$ sırası ile verilmiştir. Suda hiçbir iyon bulunmaması durumunda verimin %100 yakın olduğu, ancak florür iyonu ile sülfatın bulunması durumunda bu değer %20-60'lara düştüğü ve klorür ya da nitrat olması durumunda ise verimin %80-90 arasında olduğu rapor edilmiştir. Shen ve diğerleri (2003) klorür iyonunun, elektrot üzerinde meydana getirdiği oyuk korozyonu sebebiyle daha fazla $Al(OH)_3$ flokları oluşturduğunu, bu sebeple de giderim verimini artırdığını, fosfat iyonlarının elektrokoagülasyonda hidroliz olması sebebiyle ortamın pH'sını artırdığını, bromür ve sülfat iyonları ile fosfatların da florür iyonları ile yarıştıkları için giderim verimini azalttığını rapor etmişlerdir. Hu ve diğerleri (2005) çalışmalarında sülfat konsantrasyonu 0.001 M'a kadar artırıldığında, çıkış florür ve askıda katı madde (AKM) konsantrasyonunun yaklaşık 5 kat arttığı belirtmişlerdir.

Mameri ve diğerleri (2001) gerçekleştirdikleri çalışmada farklı debilerde, sürekli akımda çalışabilen bir elektrokoagülasyon reaktöründe florür giderimini incelemişlerdir. Yürütülen deneysel çalışmada anot yüzey alanı/reaktör hacim oranı $46 \text{ m}^2/\text{m}^3$ olacak şekilde 8 adet bipolar alüminyum elektrot kullanılmıştır. $0.47 \text{ mA}/\text{cm}^2$ akım yoğunluğunda, $1.25 \text{ m}^3/\text{saat}$ ve $0.9 \text{ m}^3/\text{saat}$ debide yürütülen deneysel çalışmalarda $3 \text{ mg}/\text{L}$ giriş florür konsantrasyonu, $1.5 \text{ mg}/\text{L}$ 'nin altında olması gereken (WHO tarafından belirlenen) çıkış florür değerine indirilememiştir. $0.2-0.3 \text{ mA}/\text{cm}^2$ gibi daha düşük akım yoğunluğunun ve $0.6-0.8 \text{ m}^3/\text{saat}$ gibi daha düşük debinin uygulandığı diğer deneysel çalışmalarda, reaktörün ilk 5 dakika içerisinde çıkış florür konsantrasyonunu istenilen seviyeye indirdiği belirlenmiştir. Bu uygulama sonucunda 12 dakika içerisinde WHO tarafından belirlenen çıkış florür limitlerine ulaşıldığı saptanmış ve istenilen limitlerde çıkış florür konsantrasyonunu

elde etmek için Al/F ağırlık oranının kullanımının uygun akım yoğunluğunun belirlenmesinde iyi bir yaklaşım olabileceği belirtilmiştir. Akım yoğunluğunun artırılması ile bu tip reaktörlerde florür giderim veriminin azalacağı ifade edilmiştir.

Zhu ve diğerleri (2007), elektrokoagülasyon ile florür gideriminde farklı bir yaklaşım kullanarak florür giderim mekanizmalarını, elektrotlar tarafından giderim ve alüminyum hidroksit flokları tarafından adsorplama olmak üzere 2 gruba ayırmışlardır. NaF kullanılarak hazırlanan numuneler üzerinde yürütülen deneysel çalışmada, işletme parametreleri olarak; elektrotlar arası mesafe, başlangıç pH değeri, yük yükleme, akım yoğunluğu, elektrot alan/hacim oranı (A/V) ve giriş florür konsantrasyonu ele alınmıştır. Numuneler giriş konsantrasyonu 3-15 mg F⁻/L ve iletkenlik 500-750 µs/cm olacak şekilde hazırlanmıştır. 2 adet monopolar alüminyum elektrot aralarındaki mesafe 10 mm olacak şekilde seçilmiştir. A/V oranı 18 m²/m³ olarak alınmıştır. Bu çalışmada optimum başlangıç pH değeri, maksimum florür gideriminin sağlandığı 6.5 olarak belirlenmiş, daha yüksek pH değerlerinde ise, katotta hidrojen gazının üretimi ile birlikte, Al(OH)₃ floklarından hidroksil iyonlarının florür iyonu ile yer değiştirdiği tespit edilmiştir. Yük yükleme 1.55 F/m³'e ulaştığında florür gideriminin %91'lere ulaştığı ancak bu değer daha da artması durumunda anot yüzeyinde yüksek konsantrasyonda Al³⁺ iyonunun bulunması ile florür iyonunun elektrot üzerinde birikerek flok üzerinde adsorpsiyon verimini düşürdüğü rapor edilmiştir. 0.926 mA/cm²'lik akım yoğunluğunda ise 10 dakikalık zaman periyodunda adsorpsiyonun gerçekleştiği belirlenmiştir. Florür konsantrasyonu 3 mg/L'den 15 mg/L'ye çıktığında giderme veriminin %92'den %80'e düşmesi nedeniyle artan florür konsantrasyonu ile proses veriminin olumsuz yönde etkilendiği rapor edilmiştir.

Emamjomeh ve Sivakumar (2006) tarafından yapılan çalışmada, hem monopolar hem de bipolar alüminyum elektrotların kullanılması durumunda, akım yoğunluğu, elektrot mesafesi ve giriş florür konsantrasyonu gibi işletme parametrelerin florür giderimi üzerine etkileri, elektrokoagülasyon/flotasyon prosesi için araştırılmıştır. Deneysel çalışmalar, 25°C sıcaklıkta 10-25 mg/L aralığında değişen florür içeren sentetik olarak hazırlanmış numuneler üzerinde yürütülmüştür. Elektrokimyasal hücre içerisinde 5 alüminyum anot ve katot elektrotu, aralarındaki mesafe 5-15 mm aralığında olacak şekilde bağlanmış ve 0.04-0.1 mA/cm² aralığında akım uygulaması yapılmıştır. Yürütülen deneysel çalışmalardan elde edilen sonuçlar ışığında, düşük

akım uygulamalarında anottan açığa çıkacak olan alüminyum iyonu daha düşük miktarda olacağı ve florür gideriminin de buna paralel olarak düşük olacağı rapor edilmiştir. Elektrotlar arası mesafenin 5mm'den 15 mm'ye çıkması durumunda, elektrotlar arasındaki direncin artacağı dolayısıyla giderim veriminde düşüşe sebep olacağı belirtilmiştir. Bununla birlikte, uygulanan akımın, sadece koagülan dozunu belirlemediği aynı zamanda reaktör içerisindeki karıştırma hızı üzerinde de etkili olduğu ifade edilmiştir. Yürütülen bu çalışmada akım yoğunluğu sabit tutularak başlangıç florür konsantrasyonunun artırılması durumunda, yeterli alüminyum hidroksit formu oluşamayacağından çıkış florür konsantrasyonunun da yükseleceğini ve başlangıç florür konsantrasyonunun artması durumunda reaksiyon hızının azaldığı ifade edilmiştir. Yapılan değerlendirmeler sonucunda en iyi florür giderim veriminin, giriş florür konsantrasyonunun 10 mg/L, akımın 1.5 A, elektrotlar arası mesafenin 5 mm ve bekleme süresinin de 55 dakika olduğu şartlarda gerçekleştiği belirtilmiştir. Al^{3+}/F^{-} oranının ise elektrokoagülasyon/flotasyon sisteminde monopolar ya da bipolar olması durumunda önemli bir fark yaratmadığı rapor edilmiştir.

Hu ve diğerleri (2007) elektrokoagülasyon prosesini bipolar elektrotların yer aldığı 1 L hacmindeki reaktörde gerçekleştirmişlerdir. 5 mM klorür konsantrasyonu içeren örnek için giriş florür konsantrasyonları 25, 20, 15 mg/L seçilmiştir. Uyguladıkları akımlar 4, 3, 2, 1, 0.5 ve 0.25 A'dır. Langmuir denkleminde türetilmiş oldukları değişken derece kinetik (Variable Order Kinetic – VOK) modelini elektrokoagülasyon ile florür giderim kinetiğine uygulamışlardır. Bu kapsamda proses kinetiğinde başlangıç florür konsantrasyonu, akım ve başlangıç asiditesinin etkilerini incelemişlerdir. Elektrokoagülasyon prosesinde giderim hızı kinetiği birinci dereceden denkleme uygulandığında;

$$[F^{-}]_{(t)} = [F^{-}]_0 \exp (-k_1.t) \quad (2.21)$$

denklemini elde etmişlerdir. Bu denklemde k_1 birinci dereceden hız sabitini t ise reaksiyon süresini göstermektedir. Başlangıç florür konsantrasyonun florür giderim kinetiğine olan etkisi incelediklerinde k_1 'in konsantrasyon arttıkça azalmış olduğunu bulmuşlardır. Böylece hız kinetiğinin pseudo birinci dereceden hız kinetiğine uygun olduğunu kabul etmişlerdir. Çalışmada defloridasyon gerçekleştirilirken açığa çıkan OH^{-} iyonları sebebiyle pH'yı kontrol etmenin oldukça zor olduğu belirtilmiştir. VOK

modelinin elektrokoagülasyon ile florür giderimini uygulanan farklı akım yoğunluklarında doğru bir şekilde modellediği deney sonuçları ile açıklanmıştır.

Hu ve diğerleri (2005) yaptıkları deneysel çalışmada, alüminyum elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon-flotasyon prosesi ile yüksek florür içeren atıksuların arıtılma performansını incelemeyi hedeflemişlerdir. Sodyum florür ve kalsiyum klorür (10 g F, ve 42,6 g $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) içeren 20 L'lik numuneler hazırlanarak analizlerde kullanılmıştır. Başlangıç pH'sı 5.6, başlangıç florür konsantrasyonu 27.8 mg/L ve başlangıç askıda katı madde konsantrasyonu ise 832 mg/L olarak seçilmiştir. Çeşitli miktarlarda SDS (sodyum dodesil sülfat) stok çözeltisini hazırladıkları numuneye ekleyerek, elektrokoagülasyon-flotasyon prosesi performansı üzerinde etkisi incelenmiştir. Çalışmada SDS konsantrasyonunun etkisi, sisteme verilen elektriksel yükün etkisi ve debinin etkisi araştırılmıştır. Bipolar bağlantılı elektrokoagülasyon-flotasyon sisteminde yüksek doz SDS ile kalsiyum çöktürmesi yapıldığında verimin yüksek olabildiği tespit edilmiştir. Sistemin kesikli ve sürekli çalıştırılmasında benzer verimler alınmıştır.

Shen ve diğerleri (2003) florür iyonunun elektrokoagülasyon ve onu takip eden elektroflotasyon ile giderimi konusunda çalışmışlardır. Başlangıçta 15 mg/L olan florür konsantrasyonları kireç çöktürmesinden sonra 2 mg/L'ye kadar indirilmiştir. Deneysel çalışma pH'nın 6 civarında olduğu, 4,97 F/m³ yük ile 20 dk'lık bekletme süresinde yürütülmüştür. Daha yüksek giderim ile daha düşük çıkış florür konsantrasyonu Fe^{3+} ve Mg^{2+} iyonları koagülasyon ünitelerine eklendiğinde elde edilebilmiştir. Klorür haricinde anyonların genellikle florür giderim verimini düşürdüğü belirtilmiştir. Çamur karakterizasyonu sonucu defloridasyonun kimyasal adsorpsiyon prosesi olduğu, florür iyonunun $\text{Al}_n(\text{OH})_{3n}$ floklarındaki OH^- grupları ile yer değiştirdiği çıkarımı elde edilmiştir.

Elektrokoagülasyon ile endüstriyel atıksulardan florür gideriminin araştırıldığı Shen ve diğerlerinin bir diğer çalışmasında (2003) 55 mm × 100 mm × 3 mm boyutunda aktif yüzey alanı 50 cm² ve elektrotlar arası açıklığı 4mm olan 3 adet bipolar alüminyum elektrotlar kullanılmıştır. Florür ölçümünde iyon seçici elektrot TISAB II ile birlikte kullanılmıştır. NaF ilavesi ile hazırlanan numuneye, 2.5-8.5 M sodyum klorür anot üzerinde alüminyum oksit tabakasının oluşturabileceği pasivasyon probleminin önüne geçilebilmesi amacıyla eklenmiştir. 15 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu ve 4.97 Faraday/m³ akım yoğunluğunda ve pH 6'da yürütülen

deneylerde çıkış florür konsantrasyonunun 2 mg/L'nin altına düştüğü tespit edilmiştir. Elektrokoagülasyon prosesinde alüminyum iyonlarının uygulanan elektriksel yük miktarı ile artışı görülmüştür. Çamur karakterizasyonu çalışmalarında X-ışınları fotoelektron spektroskopisi (XPS) ve ToF-ikincil iyon kütle spektrometresi (ToF-SIMS) kullanılmıştır. Spektroskopi analizi sonuçlarına göre başlangıç florür konsantrasyonu 15 mg/L olan numunenin kurutulmuş çözelti içerisinde bulunan çamurun yüzey bileşimi % 5.01 C, % 61.11 O, % 4.4 F, % 2.64 Na, % 25.41 Al, % 1.2 Cl olarak bulunmuş ve çamurdaki florür konsantrasyonun artan başlangıç florür konsantrasyonu ile arttığı tespit edilmiştir. Yapılan karakterizasyon sonuçlarına göre defloridasyon prosesinin bir kimyasal adsorpsiyon prosesi olduğu ve F^- ve OH^- iyonlarının yer değiştirmesi suretiyle $Al_n(OH)_{3n}$ yumakları ile gerçekleştiği belirtilmiştir.

Zhao ve diğerleri (2009) elektrokoagülasyon prosesi ile florür gideriminde Ca^{2+} ve Mg^{2+} iyonlarının etkilerini araştırmışlardır. Sabit 1.2 mM alüminyum dozu ile Ca^{2+} ile gerçekleştirilen elektrokoagülasyon mekanizmaları Mg^{2+} ile gerçekleştirilenden farklılık göstermektedir. Ca^{2+} konsantrasyonundaki artış ile florür giderim verimi artmakla beraber OH^- ile F^- arasındaki optimal molar oran (r_{OH+F}) değişmemektedir. En yüksek verim r_{OH+F} 'ın 3 olduğu zaman gerçekleşmektedir. Mg^{2+} içeren sistemde ise r_{OH+F} oranı magnezyum konsantrasyonu arttıkça artmaktadır. Aynı şekilde Mg^{2+} ile de en yüksek verimin r_{OH+F} 'ın 3 civarında olduğunda gerçekleşmekte ve toplam Mg^{2+} 'nın %50-70'inin floklara geçtiği belirtilmektedir. Yapılan analizler sonucu Al elektrolizinde Mg-Al-F içeren çift hidroksitler gözlenmiş ve ilk defa bu hidroksitlerin florür ve magnezyumlu elektrokoagülasyonun mekanizmalarında yer aldığı belirtilmiştir.

Mameri ve diğerleri (2000) çalışmalarında etkin ve düşük maliyetli bir florür giderim prosesi olarak elektrokoagülasyonu önermişlerdir. Elektrokoagülasyonda bipolar alüminyum elektrotlar kullanılmıştır. Pilot ölçekli uygulamada umut verici verimler elde edilmiştir. Proseste 1000 m³ suyun arıtılması için 40 kg alüminyum harcandığı ve teknik bir personel gereksinimi duyulmadığından, maliyetin düşük olduğu belirtilmiştir.

Emamjomeh ve diğerleri (2011) sürekli sistemde florür giderimini ve oluşan çamurun karakterizasyonunu araştıran çalışmalarında monopolar alüminyum elektrotlar kullanmışlardır. İşletme parametreleri olarak; akım yoğunluğu 12.5-50

A/m^2 , başlangıç pH değeri 4-8, başlangıç florür konsantrasyonu 5-25 mg/L, akış hızı 150–400 mL/dak'nın olarak belirlenmiş ve bunların proses verimi üzerine etkileri araştırılmıştır. Elektrolit olarak NaCl kullanılan sentetik numunelerde 10 mg/L florür konsantrasyonunda, 150 mL/dak. akış hızında $12.5 A/m^2$ akım yoğunluğunda %89 ve $50 A/m^2$ akım yoğunluğunda ise %99 florür giderim verim elde edilmiştir. Toplam alüminyum miktarının artan akım yoğunluğu ile birlikte artış gösterdiğini belirlenmiştir. Al/F oranı 13-17.5 arasında iken çıkış alüminyum konsantrasyonunun 0.2 mg/L'nin altında olduğu tespit edilmiştir. Akım yoğunluğu $50 A/m^2$, giriş florür konsantrasyonu 25 mg/L olduğu sistemde akış hızı 150 mL/dak'dan 400 mL/dak' ya çıkarıldığında çıkış florür konsantrasyonu 0.5 mg/L'den 5.9 mg/L'ye yükselmiştir. Çıkış pH'sının 6-8 arasında olduğu sistemlerde maksimum giderim verimine ulaşıldığı belirtilmiştir. Sistemde $Al(OH)_3$ floklarının pH'a duyarlı olduğunu ve bu flokların F^- iyonu adsorplama kapasitelerinin yüksek olduğunu belirtilmiştir. Çıkış pH'sı 6-8 arasında olan ve elektroliz süresi 8 saat olan sürekli sistemde oluşan çamurun XRD analizi sonucunda $Al_nF_m(OH)_{3n-m}$ komplekslerinin oluşumu ve florür gideriminin ana mekanizmasının bu komplekslerin oluşumu olduğu ifade edilmiştir.

Behbahani ve diğerleri (2011) gerçekleştirdikleri çalışmada elektrokoagülasyonda önemli parametrelerden olan başlangıç pH'sı, başlangıç florür konsantrasyonu, akım yoğunluğu ve reaksiyon süresinin florür giderimi ve operasyon maliyeti üzerindeki etkilerini alüminyum elektrotlar kullanarak gerçekleştirdikleri elektrokoagülasyon denemeleri ile incelemişlerdir. Başlangıç florür konsantrasyonunun düşüşü ile florür giderim veriminin arttığı fakat maliyet üzerinde hiçbir etkisinin olmadığı rapor edilmiştir. Öte yandan, akım yoğunluğundaki ve reaksiyon süresindeki artışın proses performansını arttırdığı ve florür giderim verimi ile maliyeti de yükselttiği saptanmıştır. Çalışma sonucu optimum başlangıç pH'sı 7, optimum başlangıç florür konsantrasyonu 25 mg/L, akım yoğunluğu $0.0167 A/cm^2$, reaksiyon süresi 25 dakika olarak belirlenmiştir. Belirtilen bu optimum koşullarda florür giderim verimi %94.5 olarak bulunmuştur.

Bazrafshan ve diğerleri (2012) çalışmalarında elektrokoagülasyon prosesinde demir ve alüminyum elektrotlar kullanarak florür giderim mekanizmasını incelemişlerdir. Çalışmada başlangıç florür konsantrasyonu, pH, uygulanan voltaj, reaksiyon süresi gibi parametreler ele alınmıştır. Bipolar kesikli reaktörlerde hem demir hem alüminyum elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon uygulamaları

gerçekleştirilmiştir. Elektrokoagülatörde 4'er adet elektrot paralel bağlı olarak kullanılmıştır. 1, 5 ve 10 mg/L başlangıç florür konsantrasyonlarında numuneler uygun NaF ve distile su kullanılarak hazırlanmıştır. Elektrokoagülasyon deneylerinde çözeltilerde 1.6 mS/cm iletkenlik sağlanması amacıyla numunelere uygun miktarda potasyum klorür ilavesi yapılmıştır. Deneyler 3, 7 ve 10 olmak üzere üç farklı başlangıç pH değerinde başlatılmıştır. Bipolar demir ve bipolar alüminyum elektrotlar ile aynı işletme koşullarında deneysel çalışmalar yürütülmüştür. Analizlerde kullanılan elektrokoagülatörün ebatları 10 cm x 13 cm x 12 cm olmakla beraber 1L'lik etkin hacimde çalışılmıştır. Elektrotlararası mesafe 1.5 cm olarak ayarlanmıştır. Reaktöre maksimum akım 5 A olacak şekilde 10 – 40 V arası potansiyel uygulanmıştır. Deneyler oda sıcaklığında (25°C) yürütülmüştür. 1 saat süren elektrokoagülasyon süresince 15 dakikalık aralıklarla 25 mL'lik numuneler alınarak florür giderimi incelenmiştir. Analiz sonuçları alkali pH değerlerinde, asidik ve nötral pH değerlerine göre daha etkin florür gideriminin gerçekleştiğini göstermiştir. Başlangıç pH'sı asidik tarafta ise, reaksiyonlar sonucu pH'nın yükselmekte olduğu görülmüş, alkali tarafta başlatılan elektrokoagülasyonlar sonucunda ise ufak düşüşler ile benzer çıkış pH'larının elde edildiği rapor edilmiştir. Elektrokoagülasyon sonucu pH'nın nötral seviyede olmasıyla alıcı ortamlara deşarj yapılabilme ihtimalinin güçlendiği yorumu getirilmiştir. Deneysel çalışmalar başlangıç pH'sının, uygulanan farklı elektrik potansiyellerinde, elektrokoagülasyon prosesi üzerinde çok fazla etkili olmadığını göstermiştir. Demir elektrotlar ile yürütülen tüm elektrokoagülasyon proseslerinde başlangıç pH'sından daha yüksek bir çıkış pH'sı elde edildiği, alüminyum elektrotlar kullanıldığında ise pH 3 ve 7'de başlatılan elektrokoagülasyon uygulamalarında çıkış pH'sının girişten yüksek olduğu, pH 10 ile başlatılan elektrokoagülasyon prosesinde ise çıkışta 10'dan daha düşük bir pH değerinin elde edildiği rapor edilmiştir. Uygulanan elektriksel potansiyelin elektrokoagülasyon ile florür giderimi üzerindeki etkisini belirlemek amacıyla yapılan deneysel çalışmalarda artan akım yoğunluğu ile florür giderim veriminin arttığı tespit edilmiştir. 1mg/L olan başlangıç florür konsantrasyonunun 40 V'luk elektrik potansiyeli ile 15 dakikada % 65'in üzerinde elde edilen en yüksek verimle, en hızlı şekilde giderildiği saptanmıştır. Yük yüklemesinin giderim verimi üzerinde etkili olduğu, elektrokoagülatöre uygulanan akım azaldıkça benzer giderim verimlerine ulaşılmasının daha uzun zaman aldığı belirtilmiştir. Elektrokoagülasyon yönteminin 40 V'luk optimal elektrik potansiyeli ile, en düşük maliyet ile, en yüksek

giderim verimini sağladığı rapor edilmiştir. Başlangıç florür konsantrasyonunun elektrokoagülasyon proses verimi üzerindeki etkisini belirlemek amacıyla gerçekleştirilen deneysel çalışmalarda sürenin etkili olduğu tespit edilmiştir. Çalışmada düşük konsantrasyonda florür içeren numunelerde giderimin sağlanması için, yüksek konsantrasyonda florür içeren numunelere kıyasla daha uzun reaksiyon süresine ihtiyaç duyulduğu sonucuna varılmıştır. Hem demir hem de alüminyum elektrotlar ile 15 – 30 dakikalık elektrokoagülasyon uygulaması sonunda %30 ile %85 arasında değişen florür giderimlerinin sağlandığı, 60 dakikalık reaksiyon sonunda da florür konsantrasyonunun 1 mg/L'nin altına indirilebildiği tespit edilmiştir. Ayrıca 0.0008 - 0.0336 kWsaat arasında enerji sarfıyatı rapor edilen demir elektrotlar ile gerçekleştirilen elektrokoagülasyon prosesinde 0.36 g/L ile 2.31 g/L elektrot tüketilirken, alüminyum elektrotların 0.29 ile 1.67 g/L arasında tüketildiği ve proseslerde 0.000775 ile 0.0349 kWsa arasında enerji sarfedildiği belirtilmiştir. Elde edilen verilerden hareketle elektrokoagülasyon prosesinin düşük maliyetli etkin bir yöntem olarak kullanılabileceği her iki çeşit elektrot tipi için de doğrulanmıştır.

Drouiche ve diğerleri (2008) yaptıkları çalışmada elektrokoagülasyon ile florür gideriminde çamur karakteristiği ve işletme maliyeti üzerinde yoğunlaşmışlardır. Deneysel çalışmalar 1L'lik kesikli reaktörde 100 x 85 mm uzunluklarında % 99,5 saflıkta bipolar demir elektrotlar kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Çalışmada Cezayir'de bir arıtma tesisinden alınan ön işlem görmüş atıksu numunesi ve laboratuvar ortamında hazırlanan numuneler birlikte kullanılmıştır. Deneysel çalışmalarda kalsiyum çöktürmesinden geçirilmiş fotovoltaiik endüstrisi atıksuyu ile benzer florür konsantrasyonu sağlamak amacıyla distile su, sodyum florür ile desteklenerek, numuneler hazırlanmıştır. Atıksu numunesinin pH'sı yüksek HF muhtevası nedeniyle 2.18 olup, bu numunenin pH'sını istenilen değere ayarlamak için Ca(OH)_2 ilavesi yapılmıştır. Çalışmada kullanılan atıksu tam karışım sağlanması için, elektrokogülatöre santrifüj pompa ile enjekte edilerek alınmıştır. Elektrokoagülasyon uygulamasında 10 dakikada bir numune alınmış, 3 saatlik testler ile belirlenen çökeltme karakteristikleri ve su kalitesi rapor edilmiştir. Florür ölçümü için iyon seçici elektrotlar kullanılmış ve iyon girişimlerini önlemek amacı ile TISAB II çözeltisi florür tayini yapılacak örneklere ilave edilmiştir. Hazırlanan numune ile gerçekleştirilen 20 V ve 30 V'luk akımlarda 40 dakikalık elektrokoagülasyon sonucunda %34 ve %40 florür giderimi ile Cezayir deşarj

standartlarına göre florür konsantrasyonu sağlanmıştır. Arıtma tesisinden alınan kalsiyum çöktürmesinden geçirilmiş fotovoltaiik endüstrisi atıksuyunun elektrokoagülasyonu sonucu, florür deşarj standartlarının, hazırlanan numune ile gerçekleştirilen elektrokoagülasyon prosesinden daha uzun sürede sağlanabildiği rapor edilmiştir. Bu farkın sebebi olarak da atıksudaki, florür ile birlikte yarışa giren, SO_4^{2-} , HCO_3^- , H_2PO_4^- gibi iyonların varlıkları gösterilmiştir. 80 dakikalık elektrokoagülasyonda demir anodunun 30 V elektrik akımı uygulandığında 12.2 mg/dk hız ile %3.61'inin tüketildiği, 35 saatlik elektrokoagülasyon ile tamamen tüketileceği rapor edilmiştir. Anodun tüketiminin Faraday Kanunu'na uygun olarak uygulanan elektriksel potansiyel ile doğru orantılı olduğu fakat demir katodunun elektrokoagülasyon süresince herhangi bir etkiye uğramadığı belirtilmiştir. Elektrokoagülasyon sonucu oluşan çamur ile ilgili yapılan EDAX analizlerinde, % 25 F, % 3 Na, % 2 Si, %1.5 K ve % 47 oranında Fe içeren bir çamur oluşumu rapor edilmiştir. Elektrokoagülasyon prosesi ile 1 L numune arıtmak için 0.976 g demir tüketilmiştir. 1L atıksuyun arıtılması için işletme maliyeti ise 0.059 \$ olarak hesaplanmıştır.

Ün ve diğerleri (2009) yaptıkları çalışmada, distile su, NaF ve Na_2SO_4 ile hazırlanan sentetik numuneler üzerinde demir elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderimini incelemişlerdir. Bu çalışmanın temel amacı akım yoğunluğu, başlangıç pH'sı, destekleyici elektrolit dozajı gibi işletme parametrelerinin florür giderim verimi üzerindeki etkilerinin belirlenmesidir. Çalışmada bütün deneyler 0.5 L hacimde yürütülmüştür. Elektrokoagülasyon uygulamaları 5 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu ile oda sıcaklığında gerçekleştirilmiştir. Çalışmada kullanılan elektrokimyasal sistem, anot görevi gören 10 cm çapındaki demir silindirik reaktör ile katot görevi gören iki yapraklı demir manyetik karıştırıcı ile oluşturulmuştur. Akım yoğunluğu 0.5 - 3 mA/cm^2 arasında değiştirilmiştir. 30 dakika boyunca sürdürülen elektrokoagülasyon prosesinde 5 dakikada bir numune alınarak ölçümler yapılmıştır. Florür Standart Metotlar'da yer alan SPANDS yöntemi ile, iletkenlik ve pH da akımölçer ve pHmetre ile ölçülmüştür. Başlangıç pH'sının elektrokoagülasyon ile florür giderimi üzerindeki etkisini belirlemek amacıyla, 1 mA/cm^2 akım yoğunluğunda, 0.01 M Na_2SO_4 elektrolit konsantrasyonunda, 5 mg/L florür ile başlatılan elektrokoagülasyon uygulamaları pH 5 – 9 arasında gerçekleştirilmiştir. Florür giderim veriminin pH'nın

5'ten 6'ya yükseltilmesi ile % 77.2' den % 83.6 ya yükseldiği ve pH 6 ile başlatılan uygulamada maksimum olduğu belirtilmiştir. pH 9'da ise florür gideriminin en düşük seviyede olduğu rapor edilmiştir. Akım yoğunluğunun florür giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek amacıyla 0.5 - 3 mA/cm² arasında değişen akım yoğunluklarında pH 6'da elektrokoagülasyon prosesi gerçekleştirilmiştir. Tüm akım yoğunluklarında florür giderim veriminin ilk 10 dakikalık elektrokoagülasyon süresinde % 50'ye ulaştığı ilerleyen zaman periyotlarında ise azalarak arttığı görülmüştür. 0.5 mA/cm² akım yoğunluğunda % 79.4 giderim elde edilirken, 3 mA/cm² akım yoğunluğunda bu verimin % 85.9 değeri ile maksimum olduğu belirlenmiştir. Elektrolit konsantrasyonunun elektrokoagülasyon ile florür giderimi üzerine etkisinin incelendiği deneysel çalışma, 1 mA/cm² akım yoğunluğunda, pH 6'da, 5 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu ile farklı miktarlarda Na₂SO₄ elektroliti kullanılarak yürütülmüştür. 0.005 ile 0.03 M arasında değişen Na₂SO₄ konsantrasyonlarında gerçekleştirilen elektrokoagülasyon uygulamalarında % 76.2 ile % 87.4'e kadar yükselen florür giderim verimleri elde edilmiştir. Florür gideriminin tüm elektrolit konsantrasyonlarında ilk 10 dakika içerisinde hızlı olduğu uzatılan elektrokoagülasyon süreleri ile azaldığı rapor edilmiştir. Bu çalışmada, optimum pH'nın 6 olduğu, florür giderim veriminin akım yoğunluğu ile orantılı olarak arttığı belirlenmiştir. Bu çalışmada 3 mA/cm² akım yoğunluğunda 5 mg/L florür 0.70 mg/L'ye indirilmiştir.

Sailaja ve diğerleri (2014) yeraltı suyundaki florürün elektrokoagülasyon ile giderilmesi konusunda çalışmışlardır. Çalışmalarında demir ve alüminyum elektrotlar kullanılmıştır. Yüksek florür giderim verimleri elde edebilmek için, florür konsantrasyonu, başlangıç pH'sı, uygulanan akım ve temas süresi, elektrotlararası mesafe, yabancı iyonların varlığı gibi parametreler araştırılmıştır. Musluk suyu ve analitik saflıktaki NaF ile başlangıç florür konsantrasyonları 1 - 10 mg/L arasında değişen numuneler hazırlanmıştır. Deneysel çalışmada pH ayarlamaları 1N sülfürik asit ve 1 N sodyum hidroksit kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Elektrokoagülasyon prosesi, kesikli olarak, 5 cm x 10 cm uzunluğunda etkin hacmi 200 mL olan reaktörde, elektrotlararası mesafe 4 cm olacak şekilde ayarlanarak yürütülmüştür. Çalışmada kullanılan güç kaynağı 0 - 40 V akım verebilecek kapasitede seçilmiştir. Florür giderim verimlerini incelemek amacı ile Standart Metotlar'da (APHA, 2005) yer alan spektrofotometrik metot kullanılmıştır. Reaksiyon süresinin

elektrokoagülasyon ile florür giderimi üzerindeki etkisini belirlemek amacıyla yapılan çalışmalarda, % 50 - % 87 oranında florürün ilk 10 – 30 dakikada giderildiği hem demir hem de alüminyum elektrotlar kullanılarak gerçekleştirilen elektrokoagülasyon uygulamalarında gözlenmiştir. Florür giderimi için optimum reaksiyon süresinin 20 dakika olduğu, daha uzun reaksiyon sürelerinde florürün floklardan geri desorplandığı için verimin düştüğü rapor edilmiştir. Başlangıç florür konsantrasyonunun proses verimi üzerindeki etkisini belirlemek amacı ile 2 – 10 mg/L arasında değişen konsantrasyonlarda deneysel çalışmalar yürütülmüştür. 8 mg/L'ye kadar artan florür konsantrasyonu ile giderim veriminin % 87 oranına kadar arttığı, 10 mg/L florür konsantrasyonunda ise % 80 verim elde edilebildiği belirlenmiştir. Akım yoğunluğunun etkisi araştırılırken gerçekleştirilen elektrokoagülasyon proseslerine 10 – 40 V arasında elektriksel potansiyel uygulanmıştır. Florür giderim veriminin artan akım yoğunluğu ile etkilendiği, maksimum giderimin 30 V'luk elektriksel potansiyel uygulandığında elde edildiği tespit edilmiştir. 30 V'un üzerine çıkıldığında defloridasyon veriminde kayda değer bir artış görülmediğinden 30 V'luk elektriksel potansiyel uygulanmasının yeterli olduğu, enerji tasarrufu sağlamak açısından da gerekli olduğu belirtilmiştir. Çalışmada başlangıç pH'sının etkisini belirlemek amacıyla pH 5, 7 ve 9'da elektrokoagülasyon uygulamaları gerçekleştirilmiştir. Nötral pH'ta çalışıldığında, asit ve alkali pH'lara göre daha yüksek florür giderim verimi elde edildiği rapor edilmiştir. Sailaja ve diğerleri (2014) deneysel çalışmalarında elektrokoagülasyon ile florür giderim prosesi üzerinde yabancı iyonların etkisini de incelemişlerdir. Bu doğrultuda 100 – 500 mg/L arasında değişen konsantrasyonlarda SO_4^{2-} , NO_3^- ve Cl^- iyonlarının etkileri araştırılmıştır. NO_3^- ve Cl^- iyonlarının elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderimi üzerinde çok fazla bir etkiye sahip olmadığı, fakat SO_4^{2-} iyonunun florür giderimine oldukça negatif etki ettiği rapor edilmiştir. Çalışmada ayrıca elektrot yüzey alanı ile elektrotlararası mesafenin elektrokoagülasyon ile florür giderim verimi üzerine etkileri araştırılmıştır. Elektrot yüzey alanı 40 cm²'den 10 cm²'ye kadar azaldığında florür giderim veriminin de düşüş gösterdiği tespit edilmiştir. Benzer şekilde elektrotlararası mesafe ile giderim verimi arasında bir doğru orantı söz konusu olduğu, elektrotlar arasındaki mesafe 4 cm'den 1 cm'ye indirildiğinde florür giderim veriminin % 87'den % 92'ye çıktığı saptanmıştır. Deneysel çalışmaların sonucunda, numunelerden elde edilen en yüksek giderim veriminin 30 V'luk elektriksel potansiyel ve 8 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu

ile mümkün kılındığı, optimum başlangıç pH'sının 7 olduğu ve aynı işletme koşulları altında alüminyum elektrotlar ile gerçekleştirilen elektrokoagülasyonun demir elektrotlar ile gerçekleştirilen elektrokoagülasyondan daha etkin bir florür giderimi sağladığı rapor edilmiştir.

Drouiche ve diğerleri (2009) ön arıtmadan geçmiş fotovoltaiik endüstrisi atıksuyu örnekleri ve hazırlanan fotovoltaiik endüstrisi atıksuyuna eşdeğer sentetik olarak hazırlanmış numuneler üzerinde demir elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon ile florür gideriminde rol oynayan işletme parametrelerini incelemişlerdir. Deneysel çalışmalarda fotovoltaiik endüstrisi atıksuyunu simüle etmek üzere 25 mg/L florür eşdeğeri NaF ile numuneler hazırlanmıştır. 1L'lik reaktörlerde, 100 x 85 mm uzunluklarında aralarındaki mesafe 1 cm olan bipolar demir elektrotlar ile elektrokoagülasyon prosesi gerçekleştirilmiştir. Hazırlanan numunenin iletkenliği 1960 $\mu\text{S}/\text{cm}$ olarak belirlenmiştir. Florür analizleri Standart Metotlar'a uygun olarak iyon seçici elektrot ile yapılmıştır. Ölçümlerde iyon girişimlerini önlemek amacıyla numunelere TISAB II çözeltisi ilave edilmiştir. Etkin bir florür giderimi elde etmek amacıyla, başlangıç pH'sı, uygulanan elektriksel potansiyel ve akım yoğunluğu, elektrotlararası mesafe gibi işletme parametrelerinin optimum koşullarının saptanması hedeflenmiştir. 29.41, 44.11 ve 58.82 A/m^2 akım yoğunluklarında, başlangıç florür konsantrasyonu 25 mg/L olan numunelerin 170 cm^2 elektrot yüzey alanında gerçekleştirilen 60 dakikalık elektrokoagülasyon uygulamalarının sonunda 9, 12 ve 17 mg/L florürün sıvı fazdan çamura geçtiği belirlenmiştir. 15 mg/L olan Cezayir florür deşarj standardının 58.85 A/m^2 akım yoğunluğunda 30 dakika elektrokoagülasyon ile ve 44.11 A/m^2 akım yoğunluğunda 40 dakika elektrokoagülasyon ile sağlanabildiği rapor edilmiştir. Artan akım yoğunluğu ile elektrokoagülasyon ile florür giderim veriminin arttığı belirtilmiştir. 60 A/m^2 akım yoğunluğunda 25 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu ile gerçekleştirilen elektrokoagülasyon prosesi ile 40 dakikalık reaksiyon süresinin deşarj standartlarını sağlamada yeterli olduğu, 80 dakikanın üzerinde süren elektrokoagülasyon sonucu florür gideriminin sabit kaldığı sonucu tespit edilmiştir. Deneysel çalışmalarda, atıksu numunelerinin hazırlanan numunelere göre daha uzun reaksiyon süresine ihtiyaç duyduğu sonucuna varılmıştır. Bunun nedeni atıksu içerisinde bulunan yabancı iyonların florür giderimine negatif etkisi olarak izah edilmiştir. Çamur analizlerinde, fotovoltaiik endüstrisinde atıksularına uygulanan kimyasal-mekanik

cilalama işlemlerinde kullanılan solventlerden kaynaklanan organik maddelere rastlanmıştır. Yapılan elektron mikroskopu ve elementel analizler ile Fe, O, Na, Mg, Al, F, Cr, Mn ve Ca gibi inorganiklerin çamurda bulunduğu belirlenmiştir.

3. DENEYSEL ÇALIŞMA

3.1 Deneysel Çalışmanın Planlanması

Yapılan çalışma kapsamında sentetik olarak hazırlanan numunelerden çelik elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon yöntemi ile florür giderimi amaçlanmıştır. Literatürde yer alan çalışmaların hemen hepsinde florür giderimi, alüminyum elektrotlar ile gerçekleştirilmektedir. Bölüm 2’de verilen literatür değerlendirmesi ışığında, çelik elektrotlar ile gerçekleştirilen elektrokoagülasyon ile florür giderimi konusunda yapılan çalışmaların kısıtlı olduğu sonucuna varılmaktadır. Bu noktadan hareketle deneysel çalışmalarda çelik elektrotlar ile yürütülen elektrokoagülasyon uygulamasında optimum işletme koşullarının belirlenmesi hedeflenmiştir.

Bu amaç doğrultusunda çelik elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulaması ile florür gideriminde proses verimi üzerinde etkili olabilecek işletme parametreleri

- akım yoğunluğu
- elektrolit cinsi ve elektrolit konsantrasyonu
- başlangıç florür konsantrasyonu
- başlangıç pH’sı
- süre

olarak seçilmiştir. Akım yoğunluğunun proses verimi üzerinde etkisi literatür bilgileri de göz önünde tutularak $0.75 - 15.16 \text{ mA/cm}^2$ arasında değişen akım yoğunluklarında yürütülen elektrokoagülasyon uygulamaları ile belirlenmiştir. Elektrokoagülasyon prosesinde kullanılan elektrolit cinsinin ve konsantrasyonunun etkisini belirlemek amacıyla KCl ve NaCl tuzları kullanılmıştır. 50 – 150 mg/L klorür eşdeğeri sodyum klorür ile 50 – 150 mg/L klorür eşdeğeri potasyum klorür

içeren numuneler hazırlanmış, elektrokoagülasyon prosesi üzerinde elektrolit konsantrasyonunun etkileri belirlenmiştir.

Başlangıç florür konsantrasyonunun çelik elektrotlar ile gerçekleştirilen elektrokoagülasyon prosesi üzerinde bulunan etkisini belirlemek amacıyla 2 – 5 mg/L florür eşdeğeri NaF ile numuneler hazırlanarak elektrokoagülasyon uygulamaları yürütülmüştür. Başlangıç pH'sının proses verimi üzerindeki etkisi pH 3 – 6 arasında değişen pH değerleri ile başlatılan elektrokoagülasyon uygulamaları ile saptanmıştır. Sürenin elektrokoagülasyon prosesi üzerindeki etkisini belirlemek amacıyla 180 ve 240 dakikalık elektrokoagülasyon uygulamaları gerçekleştirilmiş, ilk 60 dakikalık dilime kadar 15'er dakikada bir, 60. dakikadan itibaren 30 dakikada bir elektrokoagülatörden numuneler alınarak pH ve florür değerleri ölçülmüştür.

3.2 Materyal ve Metot

Elektrokoagülasyon deneyleri 3L'lik efektif hacimde çalışılan 10L toplam hacimli bir elektrokoagülatör kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Monopolar olarak bağlı 4 tanesi anot ve 4 tanesi katot olarak çalışan 8 silindirik çelik elektrot kullanılmıştır (Şekil 3.1). Her bir elektrotun yüzey alanı 32,97 cm²'dir. Elektrotlar arası açıklık ise 5 mm'dir. Güç kaynağı olarak maksimum 60 volt ve 20 A akımda çalışan XFR 60-20 1200 Watt serisi akım üretici kullanılmıştır (Şekil 3.2).

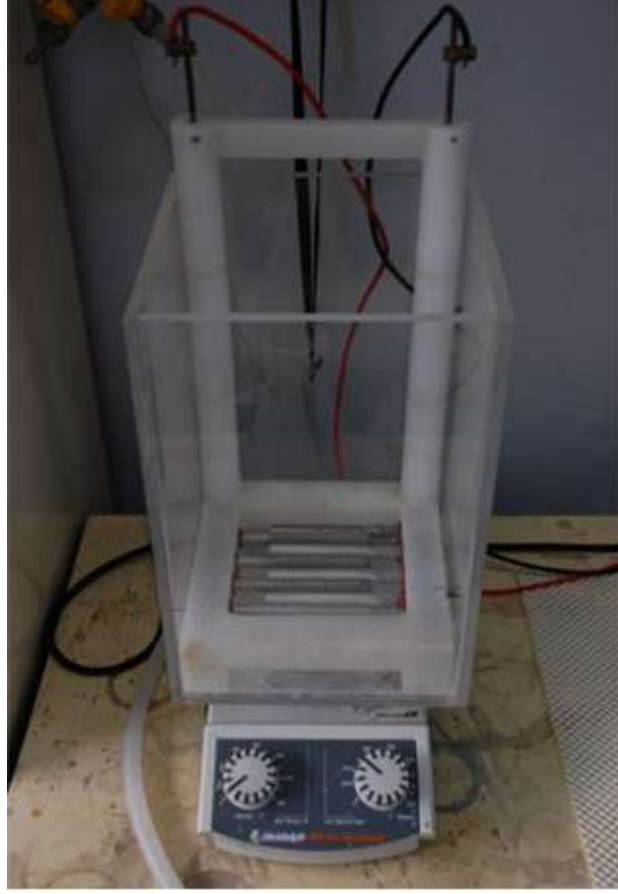
Elektrokoagülasyon uygulaması sırasında reaktör 250 rpm hız ile elektrokoagülasyon prosesi süresince reaktörün altına yerleştirilen bir manyetik karıştırıcı vasıtasıyla karıştırılmış, belirli süre aralıklarında tam karışımdan numuneler alınmıştır.

Deneyisel çalışmada kullanılan numuneler taze üretilmiş distile su kullanılarak hazırlanmıştır. İstenilen başlangıç florür konsantrasyonunun sağlanması için numunelere NaF ilave edilmiştir.

Elektrokoagülasyon deneyi sırasında iletkenliği sağlamak amacı ile elektrolit olarak NaCl ve KCl kullanılmıştır. Klorür ölçümleri Standart Metotlarda (APHA, 2005) yer alan "Arjantometrik metot" kullanılarak yapılmıştır.

Başlangıç pH'sının etkilerinin araştırıldığı elektrokoagülasyon uygulamalarında, pH'nın istenilen değere getirilmesi için NaOH ve HCl çözeltileri kullanılmıştır.

pH ölçümleri 0.001 duyarlıklı Orion 720 marka pH metre ile yapılmıştır. Florür analizleri, alınan numuneler 0.45 μm 'lik Sartorius AG marka selüloz asetat filtre kağıdından süzildükten sonra gerçekleştirilmiştir. Proses performansı pH, ve florür ölçümleri ile değerlendirilmiştir.



Şekil 3.1 : Elektrokoagülasyonun gerçekleştiği reaktör.



Şekil 3. 2 : Elektrokoagülatör güç kaynağı.

Elektrokoagülasyon prosesi sonunda oluşan çamur miktarı AKM tayini yapılarak belirlenmiştir. Askıda katı madde tayini için AP40 Milipore marka cam elyafı filtre kullanılmıştır.

Tüm ölçümler Standart Metotlara (APHA, 2005) uygun olarak yapılmıştır. Gerekli başlangıç florür konsantrasyonlarını sağlamak amacıyla kullanılan NaF, elektrokoagülasyon sırasında elektrolit olarak kullanılan NaCl ve KCl tuzları, pH ayarlamalarında kullanılan HCl ve NaOH çözeltileri gibi elektrokoagülasyon uygulamasında kullanılan bütün kimyasallar analitik saflıktadır.

Florür ölçümleri elektrokoagülatörden alınan numunelere girişimleri önlemek amacıyla TISAB II tampon çözeltisi ilave edilerek Orion 720A+ marka iyon seçici elektrot ile yapılmıştır.

3.3 Deneysel Sonuçlar ile İlgili Gerekli Hesaplamalar

Elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı ölçülen florür konsantrasyonları kullanılarak gerçekleştirilen kinetik hesaplamalar florür giderimlerinin görünür birinci derecede reaksiyon kinetiği ile;

$$\ln (F/F_0) = - k \times t \quad (3.1)$$

uyum içerisinde olduğunu göstermiştir. Burada k görünür birinci derece hız sabiti (dk^{-1}) ve t (dk) elektrokoagülasyon uygulama süresini göstermektedir.

3.4 Deneylerin Yürütülüşü

Elektrokoagülasyon deneylerinde hazırlanan stok çözeltide distile suya 50 mg/L florür konsantrasyonunu sağlayacak şekilde NaF ilavesi yapılmış ve başlangıç florür konsantrasyonunun elektrokoagülasyon prosesi üzerindeki etkisinin incelendiği çalışmalar haricinde 5 mg/L florür olacak şekilde seyreltilerek kullanılmıştır. Bu değer florür içeren su kaynakları için tipik bir konsantrasyon olmasının yanında, literatürde verilen deneysel çalışmalarda da sık rastlanan bir konsantrasyon olup, sonuçların literatürle karşılaştırılması olanağını sağlamaktadır.

Başlangıç florür konsantrasyonunun elektrokoagülasyon proses verimi üzerindeki etkileri incelenirken ise stok çözeltiden 2, 3, 4, ve 5 mg/L florür eşdeğeri olacak şekilde seyreltmeler yapılarak numuneler hazırlanmıştır.

Elektrokoagülasyon prosesleri gerçekleştirilirken NaCl ve KCl elektrolitleri kullanılarak iletkenlik sağlanmıştır. NaCl ve KCl yardımcı elektrolitleri 50 – 150 mg/L klorür eşdeğeri olacak şekilde numunelere eklenmiş ve klorür tayini yapılarak başlangıç klorür konsantrasyonları doğrulanmıştır.

pH'nın elektrokoagülasyon ile florür giderimi üzerindeki etkilerinin araştırıldığı elektrokoagülasyon denemelerinde, yeterli miktarda numunenin pH'sı 0.01 N HCl ile 3'e ayarlanmış, klorür miktarı analiz edilerek, 50 mg/L klorür eşdeğeri olacak şekilde elektrokoagülasyon uygulaması yürütülmüştür. pH 4, 5 ve 6'da yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında ise, hidroklorik asit ile pH'sı 3'e getirilen numunelerin pH'ları NaOH kullanılarak istenilen değere ayarlanmıştır. Elektrokoagülasyon denemeleri başlatılmadan önce klorür ölçümleri yapılmış, 50 mg/L klorür içerecek şekilde gerekli NaCl ilaveleri yapılarak deneyler yürütülmüştür.

Elektrokoagülasyon deneylerinde 3L hacminde hazırlanan örnekler NaF ve NaCl ilavesi yapıldıktan ve istenilen pH'a getirildikten sonra elektrokoagülatöre aktarılmıştır. Güç kaynağı sisteme bağlanarak istenilen akım ayarlaması yapılmıştır. Uygulanan elektriksel potansiyel ile akım yoğunluklarını münferit elektrokoagülasyon uygulamalarında kontrol altında tutulmuştur. Deneyler belirtilen akım yoğunluğu ve süre boyunca 250 rpm karıştırma hızında sürdürülmüş ve öncelikle 15'er dakika aralıklarla, 1 saatten itibaren de 30 dakikada bir 25 mL hacminde numune alınarak pH ölçümü gerçekleştirilmiştir. Alınan numuneler 0.45 µm'lik Sartorius AG marka selüloz asetat filtre kağıdından süzildikten sonra iyon seçici elektrot ile florür ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Elektrokoagülasyon süreci sonucunda oluşan çamur miktarını belirlemek amacı ile AKM tayini yapılmıştır.

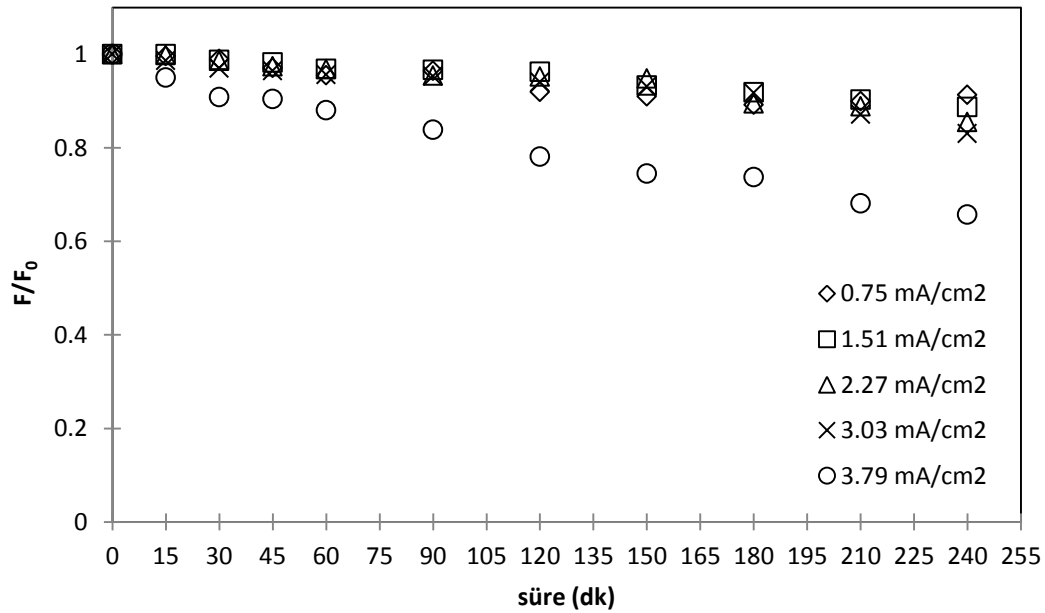
3.5 Deneysel Çalışma Sonuçları

Florürün insan ve çevre sağlığı açısından olumsuz etkilere sahip olmasından dolayı Dünya Sağlık Örgütü (WHO) ve Türk Standartları Enstitüsü (TSE) tarafından içme sularında bulunabilecek maksimum florür konsantrasyonu 1.5 mg/L olarak

sınırlandırılmıştır. Deneysel çalışmada çelik elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulamalarında akım yoğunluğu, elektrolit cinsi ve konsantrasyonu, başlangıç pH'sı, başlangıç florür konsantrasyonu ve süre gibi florür giderim verimi üzerinde önemli rol oynayan işletme parametrelerinin etkilerinin belirlenmesi hedeflenmiştir. Bu amaç doğrultusunda planlanan deneysel çalışmadan elde edilen sonuçlar aşağıda verilmiştir.

3.5.1 Akım Yoğunluğunun Etkisi

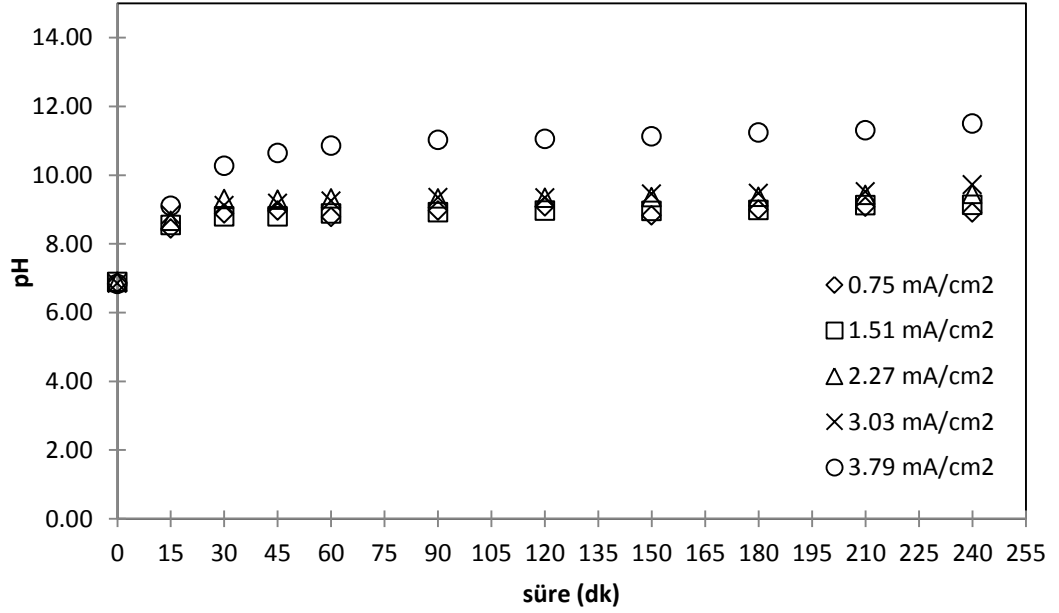
Akım yoğunluğunun elektrokoagülasyon uygulamasında florür giderimi üzerine etkisini belirlemek amacıyla öncelikle $0.75 - 3.79 \text{ mA/cm}^2$ ($0.2 - 1 \text{ A}$) arasında değişen akım yoğunluklarında 5 mg/L florür ve elektrolit olarak 50 mg/L klorür eşdeğeri NaCl içeren numuneler üzerinde yürütülen denemelerden elde edilen sonuçlar EK A'da kapsamlı olarak rapor edilmiştir. Şekil 3.3'te bu denemelerde zamana bağlı olarak normalize florür değişimleri (F/F_0) görülmektedir.



Şekil 3. 3: Farklı akım yoğunluklarında yürütülen denemelerde zamana bağlı normalize florür değişimi (F_0 : 5 mg/L , Cl: 50 mg/L , $\text{pH}_0 \sim 7$).

Şekil 3.4'ten de görüleceği üzere, 0.75 mA/cm^2 akım yoğunluğunda 240 dakika sonunda çözeltinin pH'sı 8.9'a yükselmiştir. Aynı şekilde artan akım yoğunluğu ile bu artış hem daha hızlı olmuş hem de elektrokoagülasyon sonucunda daha yüksek pH değerlerine ulaşılmıştır. Örneğin 3.79 mA/cm^2

akım yoğunluğunda 15. Dakikada 8.85'e 240 dakika sonunda da 11.5'e ulaştığı görülmektedir.

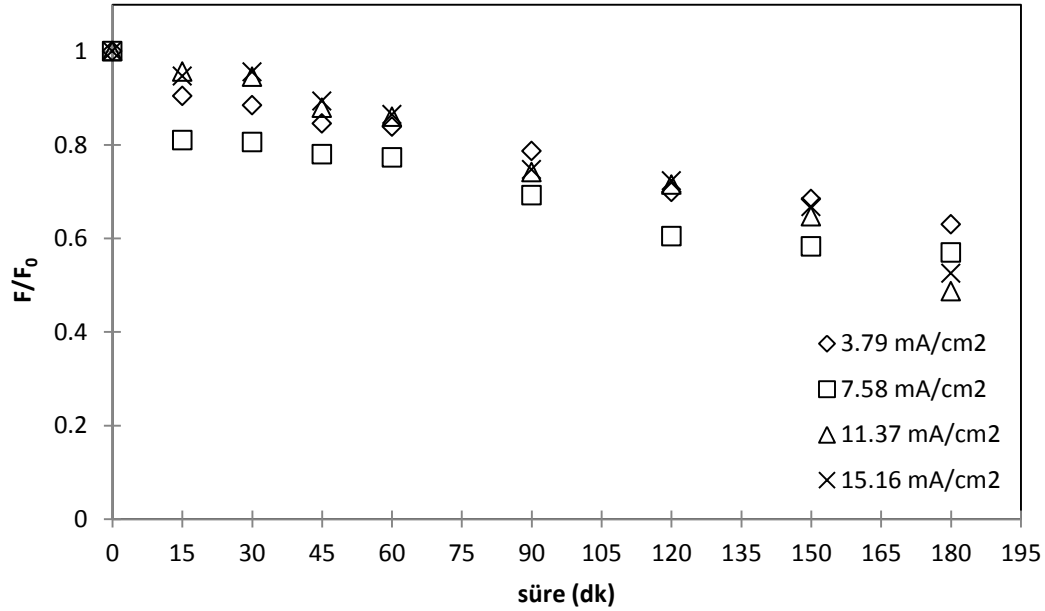


Şekil 3.4 : Farklı akım yoğunluklarında yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi ($pH_0 \sim 7$ $F_0:5$ mg/L, $Cl:50$ mg/L).

3.79 mA/cm^2 akım yoğunluğuna kadar yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde % 35 ile sınırlı florür giderimi elde edilmesinin en önemli nedenlerinden bir tanesi, uygulama sonunda çözelti reaksiyonunun alkali pH değerlerine ulaşmasıdır. Zira oluşan $Fe(OH)_3$ flokları bu pH değerlerinde çözünerek florürün absorplanacağı yumakların azalmasına neden olmuştur. Böylece bu uygulamalarda düşük florür giderimleri elde edilmiştir. Bu görüş, söz konusu elektrokoagülasyon denemeleri sonunda oluşan çamur miktarını belirlemek amacıyla yürütülen AKM deneyleriyle de doğrulanmıştır.

3.79 mA/cm^2 'ye kadar artan akım yoğunluklarında çelik elektrotlarla yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinden Tetik'in (2011) alüminyum elektrotlar kullanarak benzer işletme koşullarında gerçekleştirdiği elektrokoagülasyon deneylerine nazaran daha düşük florür giderimleri elde edilmiştir. Bu noktadan hareketle daha yüksek akım yoğunluklarında florür giderne verimlerinde herhangi bir iyileşme olup olmayacağını tahkik etmek amacıyla 3.79 mA/cm^2 'den 15.16 mA/cm^2 'ye kadar artan akım yoğunluklarında bir seri elektrokoagülasyon denemesi

yürütülmüştür. Bu deneyler 50 mg/L klorür eşdeğeri NaCl ve 5 mg/L florür içeren örnekler üzerinde gerçekleştirilmiştir. Bu seri elektrokoagülasyon deneyinden elde edilen sonuçlar topluca EK B’de verilmiştir. Söz konusu denemelerde zaman bağı olarak ölçülen normalize florür değişimleri şekil 3.5’te sunulmuştur.

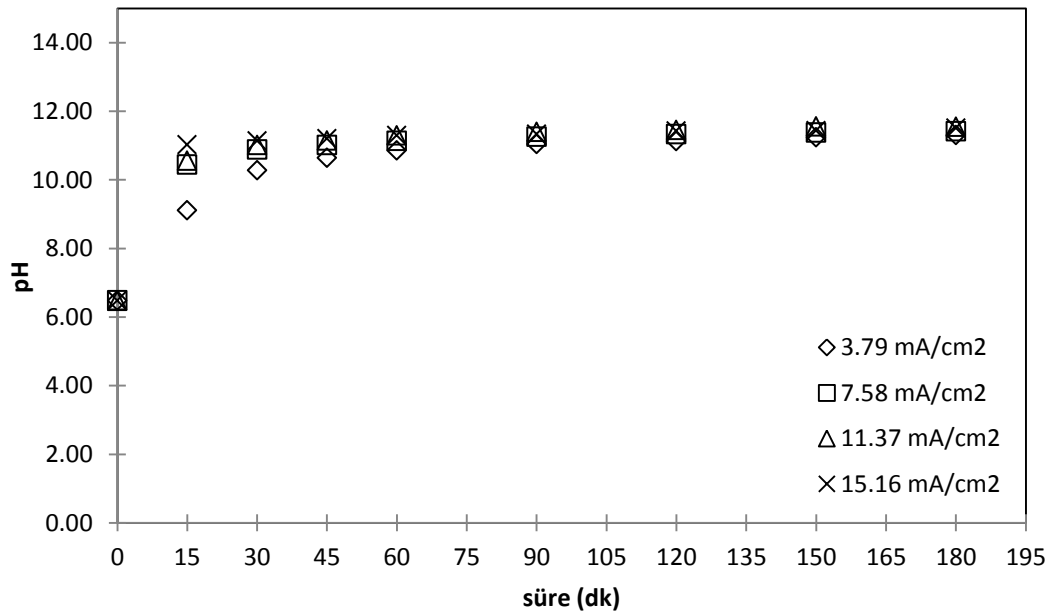


Şekil 3. 5 : 3.79 – 15.16 mA/cm² arasında değişen akım yoğunluklarında zamana bağlı normalize florür değişimi (F₀: 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, pH₀~6.5).

Şekil 3.5 incelendiğinde 11.37 mA/cm²'ye kadar artan akım yoğunluklarında florür giderme verimlerinde artış olduğu görülmektedir. Bu artış çizelge 3.1’de verilen kinetik hesaplamalardan elde edilen hız sabitlerinin karşılaştırılması ile de doğrulanmaktadır. Zira 11.37 mA/cm² akım yoğunluğunda hız sabiti 0.003 dk⁻¹ olarak hesaplanmıştır. Bu akım yoğunluğunda 180 dakikalık reaksiyon sonrasında en yüksek giderme verimi (% 51) elde edilmiştir. Bu akım yoğunluğunun üzerindeki 15.16 mA/cm²'de ise florür giderme veriminde % 4'lük bir azalma söz konusu olmuştur. Şekil 3.6’dan da görüleceği üzere her iki elektrokoagülasyon uygulaması sonunda ulaşılan pH değerleri neredeyse birbirine eşittir. Bu nedenle verimdeki azalma çözelti pH’sı ile ilişkilendirilememektedir. Artan akım yoğunluğuyla çamur oluşumunun da artacağı hususu da dikkate alındığında florür giderimindeki bu düşüş herhangi bir şekilde izah edilememektedir.

Çizelge 3. 1: Farklı akım yoğunluklarında elektrokoagülasyon uygulaması görünür birinci derece reaksiyon kinetiği hız sabitleri.

J (mA/cm ²)	ln (F/F ₀)	R ²
3.79	= -0.0024 x t - 0.0411	0.9756
7.58	= -0.0025 x t - 0.1335	0.9808
11.37	= -0.003 x t + 0.0082	0.9833
15.16	= -0.0027 x t + 0.0085	0.9892



Şekil 3. 6 : 3.79 – 15.2 mA/cm² arasında değişen akım yoğunluklarında zamana bağlı pH değişimi (F₀: 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, pH₀~6.5).

3.79 mA/cm² ile 15.16 mA/cm² arasında değişen akım yoğunluklarında yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında 15 dakikalık zaman dilimi sonunda pH'ta belirgin bir artış meydana gelmiştir. Bu uygulamalar sonunda pH, 11 gibi oldukça yüksek değerlere ulaşmıştır.

Akım yoğunluğunun florür giderimi üzerine etkisini belirlemek amacıyla bu tez kapsamında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinden elde edilen sonuçlar literatür verileri ile karşılaştırıldığında, bu çalışmada daha düşük giderme verimleri elde edildiği söylenebilmektedir.

Bununla birlikte Ün ve diğerleri (2009) çalışmalarında 0.005 – 0.03 M (710 – 4260 mg/L) arasında değişen oldukça yüksek Na₂SO₄ (elektrolit olarak) konsantrasyonları kullanmışlardır. 0.01 M Na₂SO₄ gibi oldukça yüksek bir elektrolit konsantrasyonunda 0.5 mA/cm² akım yoğunluğunda, 5 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu % 79.4 verimle 1 mg/L'ye düşürülmüştür. Bu çalışmadaki benzer işletme koşullarını temsil etmek üzere 0.75 mA/cm² akım yoğunluğu, 5 mg/L florür konsantrasyonu ve başlangıç pH'sı 6 olan numune ile yürütülen elektrokoagülasyon deneyinde % 10'luk florür giderimi elde edilmiştir.

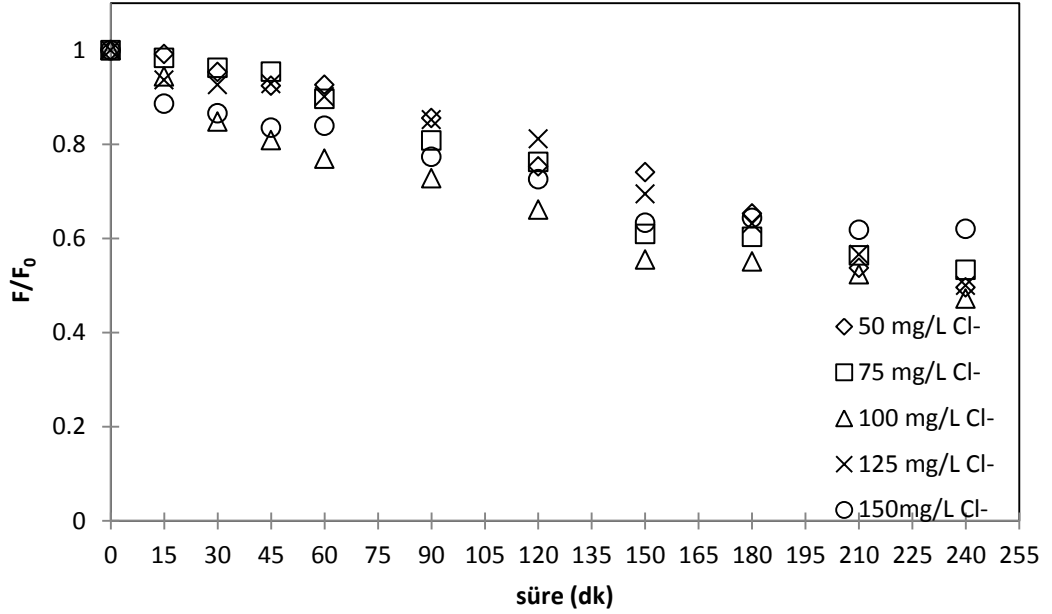
Bu denemenin Ün ve diğerlerinin (2009) çalışmasından farkı, kullanılan elektrolit cinsi ve konsantrasyonudur. Bu çalışma 50 mg/L klorür eşdeğeri NaCl ile gerçekleştirilmi, Ün ve diğerlerinin (2009) çalışmasında ise yukarıdada bahsedildiği üzere 1420 mg/L (0.01 M) Na₂SO₄ kullanılmıştır.

Söz konusu veriler elektrolit konsantrasyonundaki artışın florür giderimi üzerinde etkili olabileceği görüşünü gündeme getirmektedir. Bu çalışma kapsamında içme suyu amacıyla kullanılacak su kaynaklarından florür giderimi hedeflendiği için, içme suyu standartlarının üzerine çıkabilecek katyon ve anyonun ortamda bulunması istenmemektedir. Dolayısıyla elektrolit cinsi ve konsantrasyonu bu hususlar dikkate alınarak seçilmelidir. Bununla birlikte literatür verileri ışığında işletme parametresi olarak hem elektrolit cinsi hem de konsantrasyonunun ele alınma ihtiyacı söz konusudur. Bu nedenle elektrokoagülasyon denemeleri farklı elektrolit ve bunların farklı konsantrasyonlarında yürütülmüştür.

3.5.2 Elektrolit Cinsi ve Elektrolit Konsantrasyonunun Etkisi

Çelik elektrotlar kullanılarak gerçekleştirilen elektrokoagülasyon uygulamalarında önemli bir işletme parametresi olan elektrolit cinsi ve elektrolit konsantrasyonunun proses verimi üzerine etkisini belirlemek amacıyla 5 mg/L florür eşdeğeri NaF ile hazırlanan numuneler üzerinde farklı NaCl ve KCl konsantrasyonlarında bir seri deney yürütülmüştür. Bu denemeler akım yoğunluğunun etkisi araştırılırken en yüksek florür gideriminin sağlandığı değer olan 11.37 mA/cm² akım yoğunluğunda ve numunenin orijinal pH'sında (~7) gerçekleştirilmiştir.

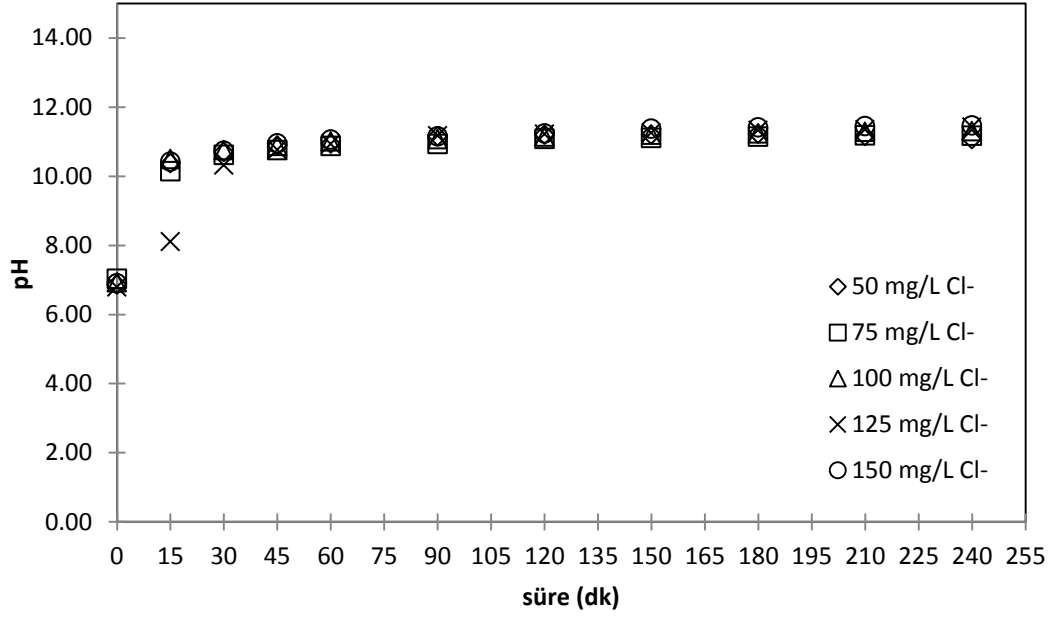
50 ile 150 mg/L klorür konsantrasyonuna eşdeğer farklı NaCl dozajlarında yürütülen denemelerden elde edilen sonuçlar EK C’de topluca verilmiştir. EK D ise yine aynı elektrolit konsantrasyonu aralığında ancak KCl kullanılan elektrokoagülasyon denemelerinin sonuçlarını kapsamaktadır. Elektrolit olarak sodyum klorürün kullanıldığı deneylerde zamana bağlı normalize florür değişimleri şekil 3.7’de verilmiştir.



Şekil 3. 7 : Farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı normalize florür değişimi (F_0 : 5 mg/L $\text{pH}_0 \sim 7$, J : 11.37 mA/cm^2).

Şekil 3.7’deki veriler değerlendirildiğinde NaCl (elektrolit) konsantrasyonundaki artışın, çalışılan reaksiyon koşullarında elektrokoagülasyon ile florür giderimi üzerinde belirgin bir rolü olmadığı söylenebilmektedir. 150 mg/L klorür konsantrasyonunda yürütülen deneme dışında, denenen tüm elektrolit konsantrasyonlarında 240 dakikalık uygulama sonunda % 50’lik bir florür gideriminin sağlanmış olması da bu görüşü doğrulamaktadır. 150 mg/L klorür eşdeğeri elektrolit dozunda ise florür giderme veriminde % 12’lik bir azalma söz konusu olmuştur. Bu denemelerde elektrokoagülasyon uygulamasının ilk 15 dakikalık zaman diliminde çözelti pH’ları ani sıçramalar ile alkali değerlere yükselmiş ve arıtılmış suda 11’in üzerinde pH değerlerine ulaşılmıştır (Şekil 3.8).

Tüm denemelerde birbirine yakın pH değerlerinin elde edildiği ve EK C’den de görüleceği üzere, artan elektrolit konsantrasyonu ile çamur oluşumunun da hızlandığı düşünüldüğünde, artan elektrolit konsantrasyonu ile florür giderim verimlerinin iyileşmesi beklenirken birbirine yakın florür giderimlerinin elde edilmesi, bu işletme parametresinin etkisinin ihmal edilebilecek düzeyde olduğuna işaret etmektedir. Bu görüş Tetik’in (2011) çalışması ile de uyum içerisindedir.

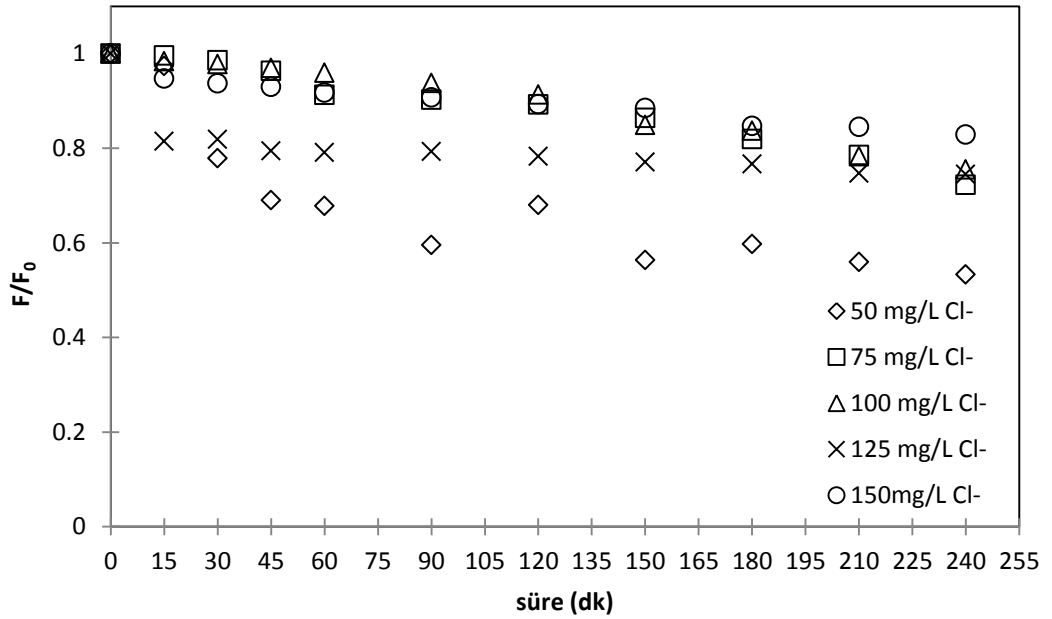


Şekil 3. 8 : Farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı pH değişimi (F_0 : 5 mg/L $pH_0 \sim 7$, J : 11.37 mA/cm²).

Zira Tetik’in (2011) alüminyum elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon ile florür giderimini incelediği deneysel çalışmasında elektrolit konsantrasyonunun proses verimi üzerindeki etkisi araştırılmıştır. Florür ilaveli içme suyu örnekleri ve sentetik olarak hazırlanmış numuneler üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında bir seri deney yürütülmüştür. 0.35 mA/cm² akım yoğunluğunda orijinal klorür konsantrasyonunda (35 mg Cl/L) ve 135 mg Cl/L’ye eşdeğer NaCl ilaveli içme suyu örnekleri (4 mg F/L) üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulaması ile elektrolit konsantrasyonundaki artışın çalışılan reaksiyon koşullarında elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderimi üzerinde önemli bir rol oynamadığı sonucuna varmıştır. Gerek orijinal gerekse klorür ilaveli içme suyu örnekleri üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde her ikisinin de 180 dakika reaksiyon süresi

sonucu florür konsantrasyonu 0.65 mg/L' ye düşmüştür. Bununla birlikte ilk 30 dakikalık reaksiyon süresinde ölçülen florür konsantrasyonları karşılaştırıldığında, içme suyu örneğinin orijinal klorür konsantrasyonunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesinde daha yüksek klorür konsantrasyonu ile yürütülene göre daha düşük florür konsantrasyonlarına ulaştığı görülmüştür. Buna karşılık 30 ile 150 dakikalık reaksiyon süresinde ise yüksek elektrolit konsantrasyonunda yürütülen deneylerde daha yüksek florür giderim verimleri elde edilmiştir.

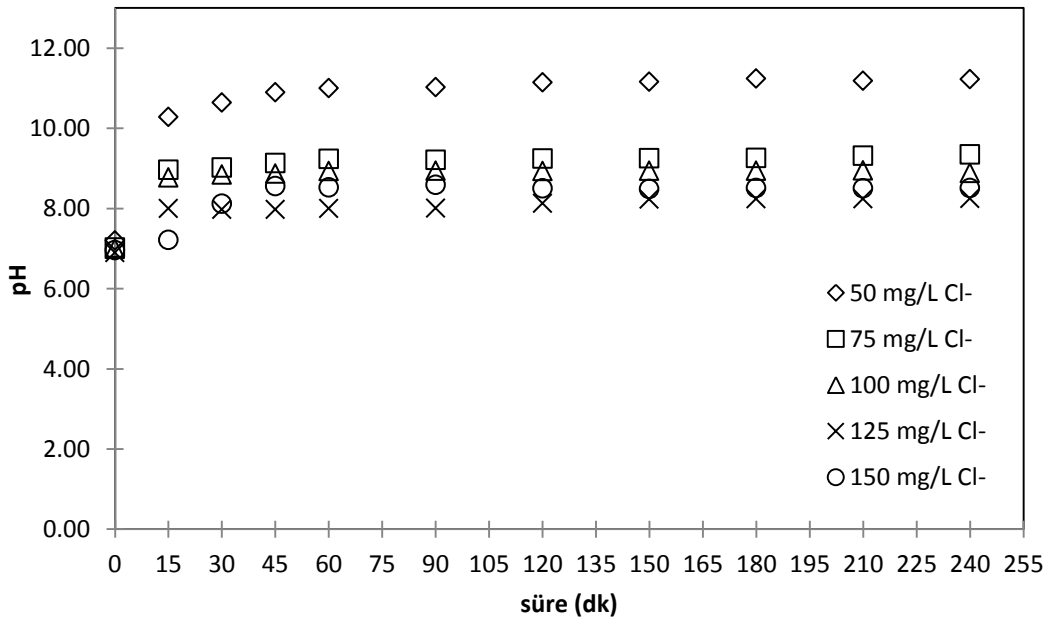
Şekil 3.9 elektrolit olarak potasyum klorürün kullanıldığı elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı ölçülen normalize florür değişimlerini kapsamaktadır. Bu denemeler 5 mg/L başlangıç florür konsantrasyonunda numunenin orijinal pH'sında (yaklaşık 7) ve 11.37 mA/cm² akım yoğunluğunda 240 dakika süresince yürütülmüştür.



Şekil 3.9 : Farklı KCl konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı normalize florür değişimi (F₀: 5 mg/L, pH 0~7, J : 11.37 mA/cm²).

Şekil 3.9 incelendiğinde elektrolit olarak potasyum klorür kullanılması durumunda artan KCl konsantrasyonuyla florür giderme veriminde belirgin düşüşlerin olduğu söylenebilmektedir. Klorür konsantrasyonunun 50 mg/L'den 75 mg/L'ye arttırılması durumunda florür gideriminde yaklaşık % 20'lik bir azalma meydana gelmiştir. En yüksek klorür konsantrasyonu olan 150 mg/L ile yürütülen elektrokoagülasyon

uygulamasında ancak % 17'lik bir florür giderimi elde edilmiştir. 50 mg/L klorür eşdeğeri potasyum klorür ile yürütülen elektrokoagülasyon uygulamasının sonunda oluşan çamur miktarı 6685 mg AKM/L'dir. 75 mg/L klorür eşdeğeri potasyum klorür ile yürütülen uygulama sonunda ise oluşan çamur miktarı 6000 mg AKM/L'dir. Her iki denemede birbirine oldukça yakın çamur oluşumları meydana geldiği düşünüldüğünde florür giderimindeki bu kötüleşme ancak uygulama esnasında meydana gelen pH değişimleri ile izah edilebilmektedir. Şekil 3.10 potasyum klorür ile yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında meydana gelen pH değişimlerini göstermektedir. Bu şekil incelendiğinde 50 mg/L klorür eşdeğeri potasyum klorür içeren deneme haricindeki tüm denemelerde pH'nın oldukça yavaş yükseldiği ve 8 – 9 arasında değişen değerlere ulaştığı görülmektedir. En düşük elektrolit konsantrasyonu ile yürütülen denemede ise reaksiyonun ilk 15. dakikasında pH 10.3'e yükselmiş ve reaksiyon alkali pH değerlerinde devam etmiştir. Bununla birlikte bu düşük pH'lardaki florür giderme verimlerindeki azalmalar tam olarak izah edilememektedir.



Şekil 3. 10 : Farklı KCl konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı pH değişimi (F_0 : 5 mg/L, $pH_0 \sim 7$, J : 11.37 mA/cm²).

Elektrolit olarak sodyum klorür ve potasyum klorür kullanılması durumunda elde edilen deney sonuçları birbiri ile mukayese edildiğinde sodyum klorürün daha etkin

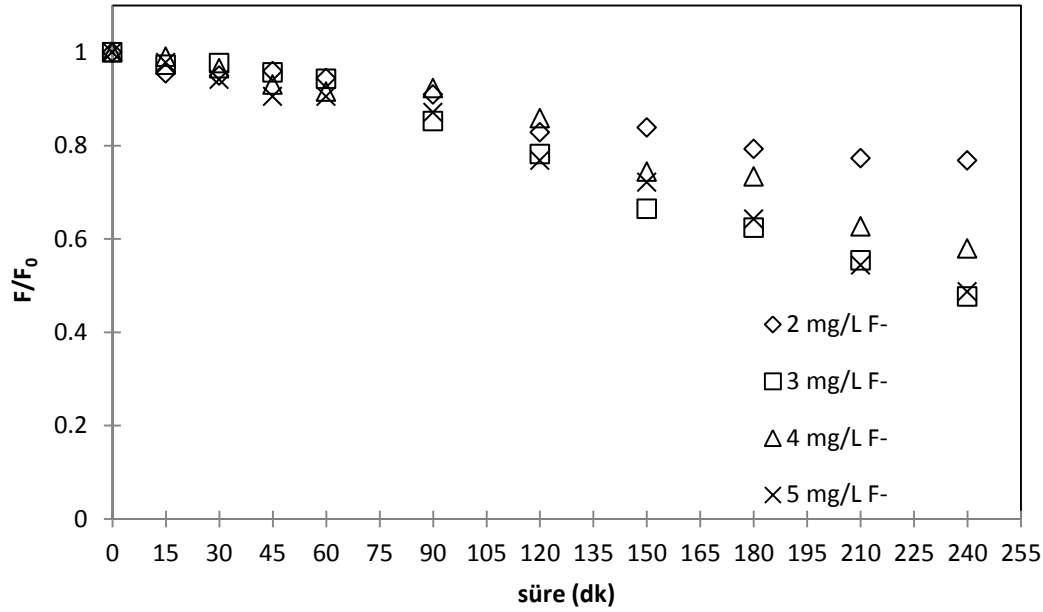
bir elektrolit olarak işlev gördüğü söylenebilmektedir. Bu nedenle çelik elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulaması ile florür gideriminde elektrolit olarak sodyum klorürün kullanılmasının daha avantajlı olacağı söylenebilmektedir. Sodyum klorür ile yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında, artan elektrolit dozajı ile florür gideriminde belirgin bir değişiklik olmamış ve hatta en yüksek görünür birinci dereceden reaksiyon hız sabiti 50 mg/L klorür eşdeğeri sodyum klorür ilaveli elektrokoagülasyon denemesi için elde edilmiştir (Çizelge 3.2). Bu nedenle ilerideki deneysel çalışmanın en düşük elektrolit konsantrasyonu olan 50 mg/L klorür eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülmesine karar verilmiştir. En düşük dozajın seçilmesinin diğer nedenleri ise, bu uygulamanın bir içme suyu arıtımı olacağı noktasından hareketle, hem içme suyunun çözünmüş madde muhtevasını arttırmamak hem de gerek klorür gerekse sodyum konsantrasyonunun standartlara göre belirlenen değerlerin altında kalmasını sağlamaktır.

Çizelge 3. 2 : Farklı klorür dozajları ile yürütülen elektrokoagülasyon uygulaması görünür birinci derece reaksiyon kinetiği hız sabitleri.

Klorür eşdeğeri NaCl (mg/L)	$\ln (F/F_0)$	R^2
50	$= -0.0031 \times t - 0.0743$	0.9775
75	$= -0.0029 \times t + 0.0397$	0.9715
100	$= -0.0003 \times t + 0.0504$	0.9758
125	$= -0.0028 \times t - 0.0355$	0.9593
150	$= -0.0018 \times t - 0.0954$	0.9787

3.5.3 Başlangıç Florür Konsantrasyonunun Etkisi

Başlangıç florür konsantrasyonunun elektrokoagülasyon ile florür giderim verimi üzerine etkisini belirlemek amacıyla 2 – 5 mg/L arasında değişen florür konsantrasyonlarında, numunenin orijinal pH'sında (pH:7), 50 mg/L klorür eşdeğeri sodyum klorür içeren numunelerde 11.37 mA/cm² akım yoğunluğunda bir seri deneme gerçekleştirilmiştir. Bu denemelerden elde edilen sonuçlar EK E'de topluca verilmiştir. Şekil 3.11 söz konusu denemelerde zamana bağlı olarak ölçülen normalize florür değişimlerini içermektedir.



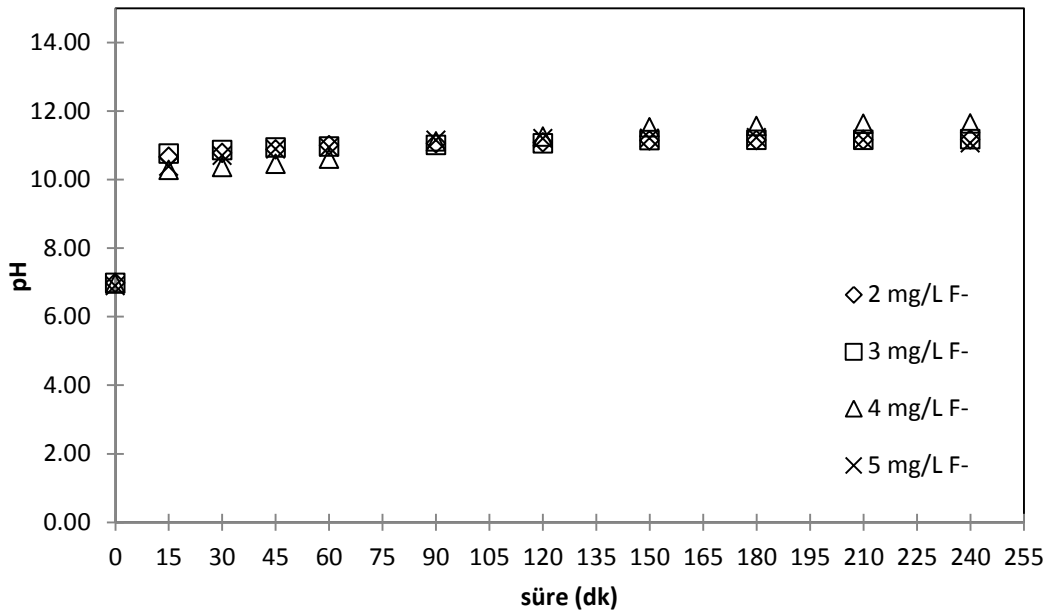
Şekil 3. 11 : Farklı başlangıç florür konsantrasyonlarında yürütülen denemelerde zamana bağlı normalize florür değişimi ($\text{pH}_0 \sim 7$, Cl^- : 50 mg/L, J : 11.37 mA/cm^2).

Şekil 3.11'den de görüldüğü üzere artan başlangıç florür konsantrasyonlarında birbirine yakın florür giderme verimleri elde edilmiştir. Bununla birlikte en düşük florür giderme verimi (% 23), en düşük başlangıç florür konsantrasyonu içeren numune ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesinde saptanmıştır. Bu deneme için hesaplanan birinci derece hız sabiti aynı seri için hesaplanan hız sabitleri arasında en düşük olmaktadır (Çizelge 3.3). Ancak bu denemede çıkış florür konsantrasyonu içme suyu standardı olan 1.5 mg/L'ye eşittir. 3 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu içeren numune ile yürütülen denemede ise çıkış florür konsantrasyonu 1.4 mg/L olarak ölçülmüştür. Bu uygulamada giderme verimi % 52 olarak hesaplanmıştır. 3 ve 4 mg/L florür içeren numuneler üzerinde yürütülen denemelerde ise, 240 dakika reaksiyon sonrası, florür ancak 2.3 mg/L civarına düşürülebilmektedir. Şekil 3.12'den de görüleceği üzere tüm denemelerde birbirine çok yakın pH değişimleri meydana gelmiştir. Bu noktadan hareketle, florür giderimindeki yetersizlik pH ile ilişkilendirilememektedir. Bu deneysel çalışmadan elde edilen sonuçlar literatür verilerinden farklılık göstermektedir. Tetik (2011) alüminyum elektrotlar kullanarak gerçekleştirdiği elektrokoagülasyon uygulamasında proses veriminin başlangıç florür konsantrasyonundan etkilenmediğini rapor etmiştir. Zira başlangıç florür

konsantrasyonu ne olursa olsun hep birbirine yakın çıkış florür konsantrasyonları ölçmüştür.

Çizelge 3. 3: Farklı başlangıç florür konsantrasyonlarındaki elektrokoagülasyon uygulaması görünür birinci derece reaksiyon kinetiği hız sabitleri.

Başlangıç konsantrasyonu (mg/L)	Florür	$\ln (F/F_0)$	R^2
2		$= -0.0012 \times t + 0.0024$	0.9764
3		$= -0.0033 \times t + 0.0953$	0.9752
4		$= -0.0023 \times t + 0.0389$	0.9785
5		$= -0.003 \times t + 0.0662$	0.9621



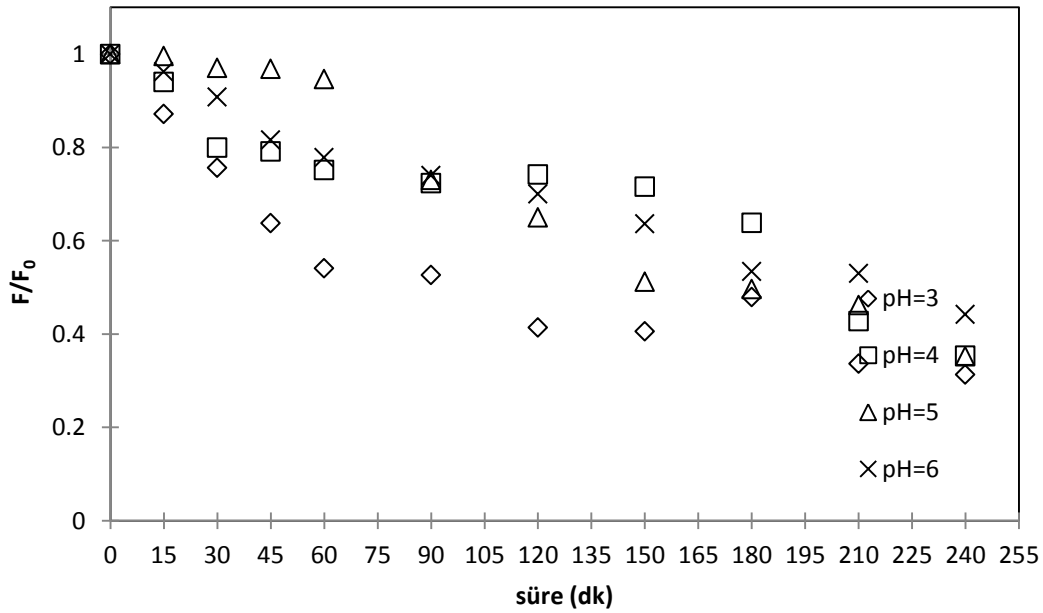
Şekil 3. 12 : Farklı başlangıç florür konsantrasyonlarında yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi ($pH_0 \sim 7$, Cl: 50 mg/L, J: 11.37 mA/cm²).

Farklı konsantrasyonlarda florür içeren numuneler üzerinde gerçekleştirilen denemelerden elde edilen sonuçlardan hareketle başlangıç florür konsantrasyonundaki artış içme suyu florür standartlarını sağlamayan çıkış akımlarının oluşturulabileceğini işaret etmektedir. Bu ise elektrokoagülasyon uygulamasının başlatıldığı pH değerinin proses verimi üzerine etkisinin olup

olmayacağı sorusunu gündeme getirmiştir. Bu hususu açıklığa kavuşturmak üzere farklı pH değerlerinde başlatılan bir seri deneme yürütülmüştür.

3.5.4 Başlangıç pH'sının Etkisi

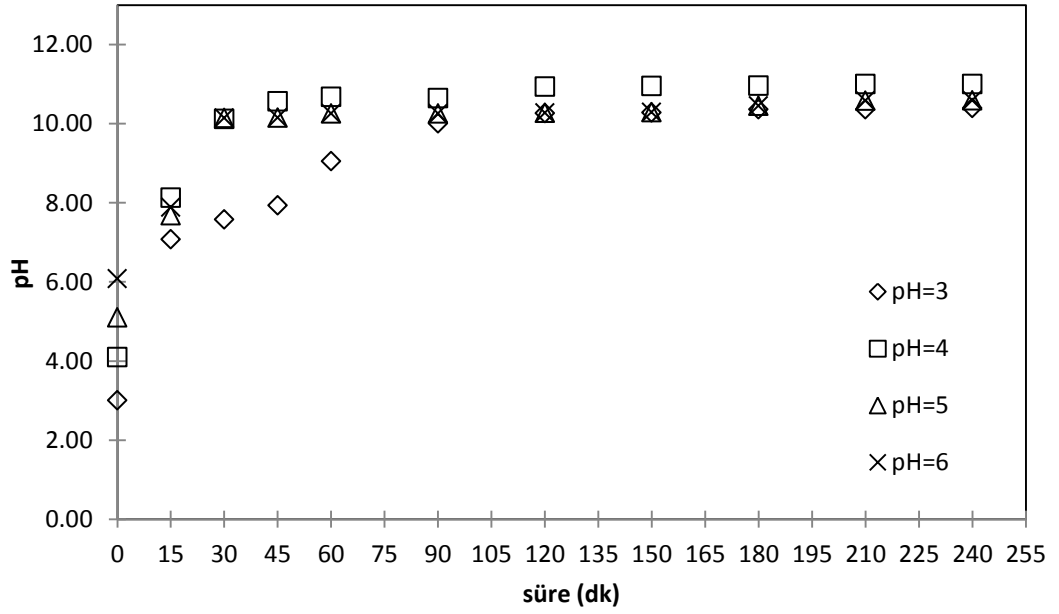
5 mg/L florür, 50 mg/L klorür eşdeğeri sodyum klorür içeren numuneler üzerinde 11.37 mA/cm² akım yoğunluğunda, 3 – 6 arasında değişen farklı başlangıç pH'larında gerçekleştirilen elektrokoagülasyon uygulamalarından elde edilen sonuçlar EK F'de verilmiştir. Şekil 3.13 bu denemelerden elde edilen normalize florür değişimlerini kapsamaktadır. Bu seri elektrokoagülasyon uygulamasında, tüm denemelerde eşit klorür konsantrasyonu sağlanması amacıyla numunelerin pH'sı önce hidroklorik asit ile 3'e düşürülmüş ve klorür ölçümü yapılmıştır. Klorür ilavesi ise numunedeki klorür miktarı dikkate alınarak gerçekleştirilmiştir. Üçten daha büyük pH değerlerinde yürütülen denemelerde ise pH ayarı NaOH kullanılarak gerçekleştirilmiştir.



Şekil 3. 13 : Farklı başlangıç pH'larında 5 mg/L florür ilaveli numunelerde yürütülen denemelerde zamana bağlı normalize florür değişimi (F₀: 5 mg/L , Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm²).

Şekil 3.13 incelendiğinde pH 3'te başlatılan elektrokoagülasyon uygulamasında florür gideriminin % 70 ile maksimum olduğu görülmektedir. pH 4 ve 5'te başlatılan elektrokoagülasyon denemelerinde de % 65'lik bir florür giderimi elde edilmiştir.

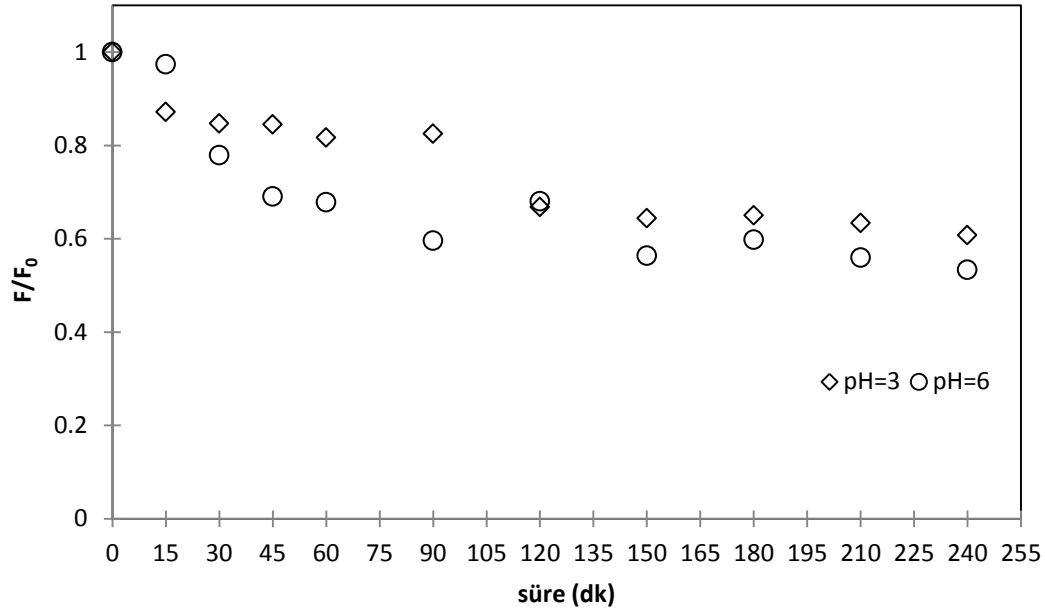
pH'nın 6'ya yükseltilerek başlatıldığı elektrokoagülasyon uygulamasında ise florür gideriminde yaklaşık % 10'luk bir düşüş söz konusu olmuştur. Elde edilen bu sonuçlar 5 mg/L gibi yüksek başlangıç florür konsantrasyonu içeren örneklerde elektrokoagülasyon uygulamalarının düşük pH'larda yürütülmesinin florür standardının sağlanması açısından gerekli olduğuna işaret etmektedir. Bununla birlikte florür standardına ulaşılması için gerekli olan işletim süresinin de 240 dakika olacağı göz ardı edilmemesi gereken bir husustur. Bu uygulamalarda zamana bağlı ölçülen pH değişimleri şekil 3.14'te verilmiştir.



Şekil 3. 14 : Farklı başlangıç pH'larında 5 mg/L florür ilaveli numunelerde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (F_0 : 5 mg/L , Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm²).

Şekil 3.14'ten de görüldüğü üzere farklı pH'larda başlatılan bu denemelerde herhangi bir t anında birbirine yakın çözelti pH'larına ulaşılmıştır. Bununla birlikte pH 3'te başlatılan elektrokoagülasyon denemesinde reaksiyonun ilk 90 dakikasında pH artışı diğerlerine nazaran daha yavaş gerçekleşmiştir. Bu ise florür gideriminin de diğerlerine nazaran daha hızlı bir şekilde cereyan etmesine neden olmuştur. Bu hususlar dikkate alındığında 5 mg/L florür içeren numune üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulaması için florür standardını sağlayabilecek işletme koşulu; J : 11.37 mA/cm², pH₀: 3 ve 50 mg/L klorür eşdeğeri NaCl olarak tanımlanabilmektedir.

Elektrokoagülasyon uygulamasının pH 3'te başlatılmasının florür giderimi üzerinde olumlu rol oynadığı görüşünden hareketle, elektrolit olarak potasyum klorürün kullanıldığı bir deneme gerçekleştirilmiştir. Bu deneme 5 mg/L florür ve 50 mg/L klorür eşdeğeri KCl içeren numune üzerinde 11.37 mA/cm² akım yoğunluğunda ve pH 3'te başlatılarak yürütülmüştür (EK D).



Şekil 3. 15: Farklı başlangıç pH'larında 5 mg/L florür ilaveli numunelerde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (F₀: 5 mg/L , Cl: 50 mg/L (KCl), J : 11.37 mA /cm²).

Şekil 3.15 incelendiğinde elektrolit olarak potasyum klorür kullanılması durumunda başlangıç pH'sının 3'e düşürülmesinin florür giderimi üzerinde sodyum klorür kullanıldığında gibi bir iyileşme sağlamadığı görülmektedir. Elektrolit olarak KCl'nin kullanıldığı denemelerden elde edilen sonuçlar Ün ve diğerlerinin (2009) elde ettiği sonuçlar ile uyum içerisinde. Ancak Ün ve diğerleri (2009) çalışmalarında elektrolit olarak Na₂SO₄ (0.01 M) kullanmış, başlangıç pH'sının florür giderme verimi üzerine etkisini 1 mA/cm² akım yoğunluğunda 5 mg/L florür içeren numuneler üzerinde tespit etmişlerdir. Çalışmalarında florür giderim veriminin pH'nın 5'ten 6'ya yükseltilmesi ile % 77.2'den % 83.6 ya yükseldiği ve maksimum olduğu belirtilmiştir. pH 9'da ise florür gideriminin en düşük seviyede olduğu rapor edilmiştir. pH 6'da en yüksek seviyede elde edilen florür giderim verimi, pH'nın 7, 8 ve 9'a çıkarılması ile % 78.4, % 77.8 ve % 73.6 değerleri ile düşüş göstermiştir.

Elektrolit olarak NaCl kullanılması durumunda elde edilen sonuçlar Tetik'in (2011) alüminyum elektrotlar ile yürüttüğü elektrokoagülasyon denemelerinden elde edilen sonuçlara benzerdir. Tetik (2011) çözelti pH'sının yükseltilmesi ile elektrokoagülasyon prosesinde florür gideriminin çok daha kısa sürelerde gerçekleşmesinin mümkün kılındığını rapor etmiştir.

4. SONUÇ VE ÖNERİLER

Florürün insan ve çevre sağlığı açısından olumsuz etkilere sahip olmasından dolayı Dünya Sağlık Örgütü (WHO) ve Türk Standartları Enstitüsü (TSE) tarafından içme sularında bulunabilecek maksimum florür konsantrasyonu 1.5 mg/L olarak sınırlandırılmıştır. Bu çerçevede florür kontrolü için kimyasal çöktürme, adsorpsiyon, koagülasyon-flokülasyon, iyon değiştirme, membran prosesleri gibi birçok teknoloji geliştirilmiştir. Ancak bu teknolojilerin yüksek konsantrasyondaki florürü giderme verimlerinin düşük olmasından dolayı bu arıtma yöntemlerinin öncesinde kimyasal çöktürme yöntemi kullanılmaktadır. Yaygın olarak kullanılan kalsiyum florür ile çöktürme uygulamasında özellikle endüstrilerden kaynaklanan 300 mg/L ve üzeri florür konsantrasyonuna sahip atıksuların 5 - 10 mg/L florür konsantrasyonuna getirilmesi başarılı ve standart hale gelen bir teknolojidir. Buna karşın bu konsantrasyonların altında özellikle içme suyu standardı olan 1.5 mg/L florür düzeyine inilmesi için çok sayıda proses denenmesine ve uygulanmasına rağmen tam olarak standart hale getirilmiş bir teknolojiden söz etmek güçtür.

20. yüzyılın son yarısı ve 21. yüzyılın başlangıcında başlıca mikrokirleticilere yönelik ancak konvansiyonel kirleticileri de kapsayan yeni ve etkin teknoloji arayışlarına gidilmiştir. Bu noktadan hareketle elektrooksidasyon ve elektrokoagülasyon yöntemleri hem çok yönlü kullanılabilmesi hem de diğer arıtma yöntemlerine nazaran sağladığı avantajlar nedeniyle yaygın araştırmalara konu olmuştur. Bu çerçevede elektrokoagülasyon, özellikle alüminyum elektrot kullanımı ile florür arıtımı için denenmiş ve başarılı olduğu görüldüğünden bu konuda çok sayıda araştırma yapılmıştır. Fakat aynı durum çelik elektrotların kullanımı ile gerçekleştirilen elektrokoagülasyon ile florür giderimi için doğru değildir. Bu konudaki çalışmalar oldukça kısıtlı kalmıştır.

Yapılmış olan araştırmalar elektrokoagülasyonu esas alan geleneksel anlayış çerçevesinde ele alınmış diğer bir deyimle giderilecek kirleticilerin elektrotların çözünmesi ile oluşan alüminyum hidroksit yumakları üzerinde adsorpsiyon ve

kimyasal çöktürme mekanizmaları çerçevesinde bağlanıp sudan uzaklaştırılmasını ve bu şekilde arıtımın gerçekleştirilmesini hedeflemişlerdir. Bu çalışmada çelik elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon prosesi gerçekleştirilmiş olup, çalışma sonucunda elde edilen başlıca bulgular ve bunların değerlendirilmesi aşağıda belirtilmiştir.

Akım yoğunluğunun elektrokoagülasyon uygulamasında florür giderimi üzerine etkisini belirlemek amacıyla öncelikle 0.75 mA/cm^2 ile 3.79 mA/cm^2 arasında uygulanan akım yoğunluklarında elektrokoagülasyon denemeleri yapılmıştır. Artan akım yoğunluğu ile florür gideriminde bir artış söz konusu olmakla birlikte bu uygulamadaki en yüksek akım yoğunluğu olan 3.79 mA/cm^2 'de maksimum %35 florür giderimi gerçekleşmiştir. Florür giderimi için optimum koşulları belirlemek amacıyla, ilk deney serisinde en yüksek giderim veriminin elde edildiği 3.79 mA/cm^2 ile 15.16 mA/cm^2 akım yoğunluğu arasında bir seri elektrokoagülasyon deneyi daha yürütülmüştür. 11.37 mA/cm^2 'ye kadar artan akım yoğunluklarında florür giderme verimlerinde artış olduğu görülmüş ve 180 dakikalık reaksiyon sonrasında % 51'lik oranla en yüksek giderme verimi bu akım yoğunluğunda elde edilmiştir. 15.16 mA/cm^2 akım yoğunluğunda ise florür giderme veriminde % 4'lük bir azalma söz konusu olurken, her iki uygulamada da birbirine yakın pH değerlerine ulaşılmıştır.

Artan elektrolit konsantrasyonu ile florür giderim verimlerinin iyileşmesi beklenirken birbirine yakın florür giderimlerinin elde edilmesi, bu işletme parametresinin etkisinin ihmal edilebilecek düzeyde olduğu belirlenmiştir. Elektrolit cinsinin florür giderme verimi üzerine etkisini belirlemek amacıyla, aynı elektrolit dozunda olmak üzere, potasyum klorür kullanılarak gerçekleştirilen elektrokoagülasyon denemelerinde, artan KCl konsantrasyonu ile florür giderme veriminde belirgin düşüşlerin olduğu görülmüştür. En yüksek klorür konsantrasyonu olan 150 mg/L ile yürütülen elektrokoagülasyon uygulamasında % 17'lik bir florür giderimi elde edilmiştir. Oluşan çamur miktarlarına bakıldığında ise, 50 ve 75 mg/L klorür eşdeğeri potasyum klorür ile yürütülen elektrokoagülasyon denemeleri sonunda birbirine yakın (6000 mg AKM/L civarı) çamur oluşumu söz konusu olmuştur. 50 mg/L klorür eşdeğeri potasyum klorür içeren deneme haricindeki tüm denemelerde pH'nın oldukça yavaş yükseldiği ve $8 - 9$ arasında değişen değerlere ulaştığı göz önünde bulundurulduğunda artan potasyum klorür konsantrasyonu ile florür giderimindeki kötüleşme tam olarak izah edilememektedir.

Başlangıç florür konsantrasyonunun elektrokoagülasyon ile florür giderim verimi üzerine etkisini belirlemek amacıyla 2 mg/L ile 5 mg/L arasında değişen florür konsantrasyonlarında, numunenin orijinal pH'sında, 50 mg/L klorür eşdeğeri sodyum klorür içeren numunelerde 11.37 mA/cm² akım yoğunluğunda bir seri deneme gerçekleştirilmiştir. 2 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu içeren numune ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesinde en düşük florür giderimi saptanmakla beraber bu denemede çıkış florür konsantrasyonu içme suyu standardı olan 1.5 mg/L'ye eşit ölçülmüştür. Bununla birlikte artan başlangıç florür konsantrasyonlarında birbirine yakın florür giderme verimleri elde edilmiştir. 3 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu içeren numune ile yürütülen denemede ise çıkış florür konsantrasyonu standardın altında (1.4 mg/L) ölçülmüştür. 3 ve 4 mg/L florür içeren numuneler üzerinde yürütülen denemelerde, 240 dakika reaksiyon sonrası, florür ancak 2.3 mg/L civarına düşürülebilmektedir. Tüm denemelerde birbirine çok yakın pH değişimleri meydana gelmiş ve bu benzerlik florür giderimlerindeki yetersizlik ile ilişkilendirilememiştir.

3 – 6 arasında değişen farklı başlangıç pH'larında gerçekleştirilen elektrokoagülasyon uygulamaları ile başlangıç pH'sının florür giderimi üzerine etkisi belirlenmiştir. Başlangıç pH'sı 3 olan elektrokoagülasyon uygulamasında florür gideriminin maksimum olduğu saptanmıştır (% 70). pH 4 ve 5'te başlatılan elektrokoagülasyon denemelerinde % 65'lik bir florür giderimi elde edilmiş, pH'nın 6'ya yükseltilerek başlatıldığı elektrokoagülasyon uygulamasında ise florür gideriminde yaklaşık % 10'luk bir düşüş söz konusu olmuştur. Florür standardının sağlanabilmesi için elektrokoagülasyon uygulamasının düşük pH'larda yürütülmesi uygun bulunmuştur. Farklı pH'larda başlatılan bu denemelerde birbirine yakın çözelti pH'ları saptanmıştır. Bununla birlikte pH 3'te başlatılan elektrokoagülasyon denemesinde reaksiyonun ilk 90 dakikasında pH artışı diğerlerine nazaran daha yavaş gerçekleşmiştir. Bu farklılık florür gideriminin diğerlerine kıyasla daha hızlı bir şekilde gerçekleşmesine neden olmuştur. Elektrokoagülasyon uygulamasının pH 3'te başlatılmasının florür giderimi üzerinde olumlu rol oynadığı görüşünden hareketle, elektrolit olarak potasyum klorürün kullanıldığı bir deneme gerçekleştirilmiştir. Bu deneme 5 mg/L florür ve 50 mg/L klorür eşdeğeri KCl içeren numune üzerinde 11.37 mA/cm² akım yoğunluğunda ve pH 3'te başlatılarak

yürütülmüştür. Bu deneme sonunda potasyum klorürün florür giderimi üzerinde sodyum klorür kullanıldığındaki gibi bir iyileşme sağlamadığı görülmüştür.

Bu çalışma kapsamında yürütülen deneysel çalışmadan elde edilen veriler ışığında, çelik elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulamasında 5 mg/L florür içeren numune üzerinde akım yoğunluğu 11.37 mA/cm², başlangıç pH değeri 3 ve 50 mg/L klorür eşdeğeri NaCl elektroliti florür standardını sağlayabilecek optimum işletme koşulları olarak tanımlanmıştır.

Bu çalışma kapsamında sentetik olarak hazırlanan numuneler ile çalışılmıştır, ileride florür içeren atıksu numuneleri ile çalışılması durumunda atıksuda bulunabilecek diğer anyon ve katyonların giderilmesi açısından incelemek mümkün olabilecektir.

Yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde sadece bir tip elektrokoagülatör ve bir tip elektrot cinsi ile (monopolar çelik elektrotlar) çalışılmıştır. Devam eden bir konu olarak farklı polaritede farklı bağlanma şekilleri ile gerçekleştirilecek elektrokoagülasyon ile florür giderimi araştırılabilir.

KAYNAKLAR

- Acar, M. H. ve Yılmaz, P.** (1997). Effect of tetramethylthiuramdisulfide on the cationic polymerization of cyclohexeneoxide, *The 2nd International Conferences on Advanced Polymers via Macromolecular Engineering*, Orlando, Florida, USA, 19-23 Nisan
- Ayoob, S., Gupta, A. K., ve Venugopal, T. Bhat.,** 2008. A Conceptual Overview on Sustainable Technologies for the Defluoridation of Drinking Water, *38*, 401-478.
- Bazrafshan E., Ownaghi K.A., ve Mahvi A.H.,** 2012. Application of Electrocoagulation Process Using Iron and Aluminum Electrodes for Fluoride Removal from Aqueous Environment, *E-Journal of Chemistry*, **9**, 2297-2308.
- Behbahani, M., Moghaddam, M.,R., A ve Arami M.,** 2011. Techno-economical evaluation of fluoride removal by electrocoagulation process: Optimization through response surface methodology, *Desalination*, **271**, 209–218.
- Bejankiwar, R.S.,** 2005. Electrochemical Treatment of Cigarette Industry Wastewater: Feasibility Study, *Water Research*, Article in Press.
- Beyhan, M.,** 2003. Atık Çamurla ve Doğal Malzemeler ile Sulardan Florür İyonu Gideriminin Araştırılması, *Doktora Tezi*, Fen Bilimleri Enstitüsü, Yıldız Teknik Üniversitesi
- Chapman, D.,** 1996. Water Quality Assessments, Second Edition.
- Chen, G.,** 2004. Electrochemical Technologies in Wastewater Treatment, *Separation and Purification Technology*, **38**, 11-41.
- Drouiche N., Lounici, H., Drouiche M., Mameri N., Ghaffour N.,** 2009. Removal of fluoride from photovoltaic wastewater by electrocoagulation and products characteristics, *Desalination and Water Treatment*, **7** , 236-241
- Drouiche, N., Ghaffour, N., Lounici, H., Mameri, N., Maallemi, A., ve Mahmoudi, H.,** 2008, Electrochemical Treatment of Chemical Mechanical Polishing Wastewater: Removal of Fluoride –Sludge Characteristic-Operating Cost, *Desalination*, **223**, 134-142.
- Dursun, Ş., Karataş, M. ve Öztürk, E.,** 2005. Konya İl Merkezinde Kuyu İçme Sularının Florür Seviyelerinin Tespit Edilmesi, *S.Ü. Fen Ed. Fak. Fen Dergisi*, **26**, 63–70

- Emamjomeh, M. M., Sivakumar ve M., Varyani A.S.,** 2011. Analysis and the understanding of fluoride removal mechanisms by an electrocoagulation/flotation (ECF) process, *Desalination*, **275**, 102-106.
- Emamjomeh, M. M., ve Sivakumar, M.,** 2006. An Empirical Model for Defluoridation by Batch Monopolar Electrocoagulation/Flotation (ECF) Process, *Journal of Hazardous Materials*, **B131**, 118-125.
- Emamjomeh, M. M., ve Sivakumar, M.,** 2009. Fluoride Removal by a Continuous Flow Electrocoagulation Recator, *Journal of Environmental Management*, **90**, 1:2, 1204-1212.
- Emamjomeh, M. M., ve Sivakumar, M.,** 2009. Review of pollutants removed by electrocoagulation and electrocoagulation/flotation processes, *Journal of Hazardous Materials*, **90**, 1663-1679.
- Gao, S., Sun, R., Wei, Z., Zhao, H., Li, H., ve Hu, F.,** 2009. Size-Dependent Defluoridation Properties of Synthetic Hydroxyapatite, *Journal of Fluorine Chemistry*, **130**, 550-556.
- Ghosh, D., Medhi, C. R., ve Purkait, M. K.,** 2008. Treatment of Fluoride Containing Drinking Water by Elektrocoagulation Using Monopolar and Bipolar Electrode Connections, *Chemosphere*, **73**, 1393-1400.
- Hapçioğlu, B., Dişçi, R., Demir, L., Başak, E., Güray, Ö., Özer, N.,** 1992. Türkiye İçme Sularında Florürün Bölgesel Dağılımı (I), *İ.Ü. Diş Hekimliği Fakültesi Dergisi*, **26**, 4.
- Holt, P. K., Barton, G. W., ve Mitchell, C. A.,** 2005. The Future for Electrocoagulation as a Localised Water Treatment Technology. *Chemosphere*, **59**, 355-367.
- Hu, C. Y., Lo, S. L., Kuan, W. H., ve Lee, Y. D.,** 2005. Removal of Fluoride from Semiconductor Wastewater by Electrocoagulation-Flotation, *Water Research*, **39**, 895-901.
- Hu, C. Y., Lo, S. L., Kuan, W. H., ve Lee, Y. D.,** 2008. Treatment of High Fluoride-Content Wastewater by Continuous Electrocoagulation-Flotation System with Bipolar Aluminum Electrodes, *Seperation and Purification Technology*, **60**, 1-5.
- Hu, C. Y., Lo, S. L., ve Kuan, W. H.,** 2003. Effect of Co-Existing Anions on Fluoride Removal in Electrocoagulation (EC) Process Using Aluminum Electrodes, *Water Research*, **37**, 4513-4523.
- Hu, C. Y., Lo, S. L., ve Kuan, W. H.,** 2005. Effects of the Molar Ratio of Hydroxide and Fluoride to Al(III) on Fluoride Removal by Coagulation and Electrocoagulation, *Journal of Colloidal and Interface Science*, **283**, 472-476.
- Hu, C. Y., Lo, S. L., ve Kuan, W. H.,** 2007. Simulation The Kinetics of Fluoride Removal by Electrocoagulation Process Using Aluminum Electrodes, *Journal of Hazardous Materials*, **145**, 180-185.
- Huang, J. C., ve Liu, J. C.,** 1999. Precipitate Flotation of Fluoride-Containing Wastewater from a Semiconductor Manufacture, *Water Research*, **33**, No.16, 3403-3412.
- İslam, M., ve Patel, R.,** 2007. Evaluation of Removal Efficiency of Fluoride Removal from Aqueous Solution Using Quick Lime, *Journal of Hazardous Materials*, **143**, 303-310.

İstanbul Su Kalitesi Raporu, 2004

- Karagül H., 2008.** Florozis ve Hayvan Sağlığı, Uluslararası Katılımlı Tıbbi Jeoloji Sempozyumu Kitabı, 109-110.
- Kim, T. H., Park, C., Shin, E. B., ve Kim S., 2002.** Decolorization of Disperse and Reactive Dyes by Continuous Electrocoagulation Process, *Desalination*, **150**, 165-175.
- Küçükırmak, G., 2007.** Florun Fizyolojik ve Toksikolojik Karakteristikleri, *Bitirme Tezi*, Tıp Fakültesi Halk Sağlığı Anabilim dalı, Ege Üniversitesi.
- Mahramanhoğlu, M., Kızılcıklı, I., ve Bicer, I., 2002.** Adsorption of Fluoride From Aqueous Solution by Acid Treated Spent Bleaching Earth*. *Journal of Fluoride Chemistry*, **115**, 41-47.
- Mameri, N., Lounici, H., Belhocine, D., Grib H., Piron, D. L., ve Yahiat, Y., 2001.** Defluoridation of Sahara Water by Small Plant Electrocoagulation Using Bipolar Aluminium Electrodes, *Separation and Purification Technology*, **24**, 113-119.
- Meenakshi, ve Maheshwari, R. C., 2006.** Fluoride in Drinking Water and Its Removal, *Journal of Hazardous Materials*, **137**, Issue 1, 456-463.
- Mollah, Y. M., Schennach, R., Parga, J. R., ve Cocke, D. L., 2001.** Electrocoagulation (EC)-Science and Applications, *Journal of Hazardous Materials*, **B84**, 29-41.
- Mollah, Y., Morkovsky, P., ve Gomes, A.G., 2004.** Fundamentals, Present and Future Perspectives of Electrocoagulation, *Journal of Hazardous Materials*, **B114**, 199-210.
- Özgürses, M.T., 2003.** Elektrokoagülasyon ile Reaktif Tekstil Boya Çözeltilerinin Arıtımı, *Yüksek Lisans Tezi*, Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü Mühendislik ve Fen Bilimleri Enstitüsü, Kocaeli.
- Özyonar F., Karagözoğlu B. (2012).** İçme Sularından Elektrokoagülasyon ve Kimyasal Koagülasyon ile Bulanıklığın Giderimi, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, **27**, 81- 89.
- Pickards, P. A., ve Reynold, T. D., 1996.** Unit Operations and Processes in Environmental Engineering”, Boston, Second Edition.
- Raichur, A.M., Jyoti Basu, M., 2001,** “Adsorption of fluoride onto mixed rare earth oxides”, *Separation and Purification Technology*, Vol: 24, pp. 121-127.
- Sailaja K.B., Jyostna C., Raman N.V. V. S., Himabindu V., Bhagawan D., 2014.** Effective Removal of Fluoride from Ground Water Using Electro-Coagulation, *Journal of Engineering Research and Applications*, 439-445.
- Samuk B., 2011.** Yüksek Konsantrasyonlarda Florür İçeren Endüstriyel Atıksuların Fizikokimyasal Yöntemler ile Arıtımı, *Doktora Tezi*, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul Teknik Üniversitesi.
- Shen, F., Chen, X., Gao, P., ve Chen, G., 2003.** Electrochemical Removal of Fluoride Ions From Industrial Wastewater, *Chemical Engineering Science*, **58**, 987-993.
- Sollo F.W, Thurstone E., Larson ve Mueller H., 1978.** Fluoride Removal From Potable Water Supplies, *Project Report*, Water Resources Center, University of Illionis.

- Srimurali, M., Pragathi, A., ve Karthikeyan, J.,** 1998. A Study on Removal of Fluorides From Drinking Water by Adsorption onto Low-Cost Materials, *Environmental Pollution*, **99**, 285-289.
- Su Kirliliği Kontrol Yönetmeliği, 2004, sayı: 25687.
- Sujana, M. G., Soma, G., Vasumathi, N., ve Anand, S.,** 2009. Studies on Fluoride Adsorption Capacities of Amorphous Fe/Al Mixed Hydroxides from Aqueous Solutions, *Journal of Fluorine Chemistry*, **130**, 749-754.
- Sujana, M. G., ve Thakur, R. S.,** 1998. Removal of Fluoride From Aqueous Solution by Using Alum Sludge, *Journal of Colloid and Interface Science*, **206**, 94-101.
- Tang, Y., Guan, X., Wang, J., Gao, N., McPhail, M. R., ve Chusuei, C. C.,** 2009. Fluoride Adsorption onto Granular Ferric Hydroxide: Effects of Ionic Strength, pH, Surface Loading, and Major Co-Existing Anions, *Journal of Hazardous Materials*, **171**, 774-779.
- Tetik A.,** 2011. İçme sularından Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Florür Giderimi, *Lisansüstü Tezi*, Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul Teknik Üniversitesi.
- Uğurlu, M.,** 2004. The Removal of Some Inorganic Compounds From Paper Mill Effluents by the Electrocoagulation Method, *G.Ü. Fen Bilimleri Dergisi* **17**, 85-89.
- Ün Tezcan Ü., Koparal S. Ve Ögütveren Bakır Ü.,** 2009. Electrochemical Process For The Treatment Of Drinking Water, *Thirteenth International Water Technology Conference*, Hurghada, Mısır
- Uygun, R.,** 2003. Demir ve Alüminyum Elektrotlar Kullanılarak Tekstil Boyalarının Elektrokoagülasyon ile Arıtımı, *Yüksek Lisans Tezi*, Gebze Yüksek Teknoloji Enstitüsü.
- Vardar, B.,** 2006. Tekstil Endüstrisi Reaktif Boya Banyolarının Elektrokimyasal Yöntemler ile Arıtımı, *Yüksek Lisans Tezi*, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Veressinina, Y., Trapido, M., Ahelik, V., ve Munter, R.,** 2001. Fluoride in Drinking Water: The Problem and Its Possible Solutions, *Proc. Estonian Acad. Sci. Chem*, **50**, 2, 81–88.
- WHO, 2000,** Regional Office for Europe, Air Quality Guidelines-Second Edition-Chapter 6.5 Fluorides, Denmark.
- WHO, 2003,** “Fluoride in Drinking Water”, *Background Document for Development of Guidelines for Drinking-Water Quality*, WHO/SDE/WSH/03.04/06.
- Yang, C., ve Dluhy, R.,** 2002. Electrochemical Generation of Aluminum Sorbent for Fluoride Adsorption, *Journal of Hazardous Materials*, **B94**, 239-252.
- Zhang, G., Gao, Y., Zhang, Y., ve Gu, Ping.,** 2005. Removal of Fluoride from Drinking Water by a Membrane Coagulation Reactor (MCR), *Desalination*, **177**, 143-155.

- Zhao, H., Yang, W., Zhu, J., Ni, J.,** 2009. Defluoridation of drinking water by combined electrocoagulation: Effects of the molar ratio of alkalinity and fluoride to Al(III), *Chemosphere*, 74, 1391–1395.
- Zhu, J., Zhao, H., ve Ni, J.,** 2007. Fluoride Distribution in Electrocoagulation Defluoridation Process, *Seperation and Purification Technology*, **56**, 184-191.
- Zuo, Q., Chen, X., Li, W., ve Chen, G.,** 2008. Combined Electrocoagulation and Electroflotation for Removal of Fluoride From Drinking Water, *Journal of Hazardous Materials*, **159**, Issue 2-3, 452-457.

EKLER

EK A

Çizelge A. 1 : 0.75 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 0.75 mA/cm², oluşan çamur : 1250 mg AKM/L) .

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	4.70	6.86	5.09	1
15	4.40	8.44	5.07	0.99
30	4.40	8.88	5.04	0.99
45	4.40	8.96	4.94	0.97
60	4.40	8.78	4.86	0.95
90	4.40	8.96	4.91	0.96
120	4.40	9.08	4.68	0.91
150	4.30	8.82	4.63	0.90
180	4.30	8.99	4.54	0.89
210	4.30	9.07	4.58	0.89
240	4.30	8.90	4.65	0.91

Çizelge A. 2 : 1.51 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 1.51 mA/cm², oluşan çamur : 1835 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	5.60	6.89	5.06	1.00
15	5.50	8.55	5.06	1.00
30	5.50	8.80	5.00	0.99
45	5.50	8.80	4.97	0.98
60	5.40	8.88	4.90	0.97
90	5.40	8.92	4.89	0.97
120	5.40	8.97	4.87	0.96
150	5.30	8.96	4.72	0.93
180	5.40	8.99	4.65	0.92
210	5.30	9.13	4.57	0.90
240	5.30	9.13	4.49	0.89

Çizelge A. 3 : 2.27 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 2.27 mA/cm², oluşan çamur : 2655 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	6.80	6.90	5.04	1.00
15	6.70	8.67	5.03	1.00
30	6.70	9.30	4.97	0.99
45	6.60	9.28	4.91	0.97
60	6.50	9.32	4.88	0.97
90	6.50	9.33	4.81	0.95
120	6.00	9.34	4.80	0.95
150	6.30	9.35	4.78	0.95
180	6.30	9.37	4.51	0.89
210	6.30	9.42	4.48	0.89
240	6.20	9.46	4.31	0.86

Çizelge A. 4 : 3.03 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 3.03 mA/cm², oluşan çamur : 3950 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	8.00	6.85	5.07	1.00
15	7.70	8.85	5.00	0.99
30	7.50	9.12	4.92	0.97
45	7.50	9.18	4.89	0.96
60	7.30	9.25	4.85	0.96
90	7.30	9.35	4.83	0.95
120	7.30	9.34	4.77	0.94
150	7.00	9.45	4.72	0.93
180	7.10	9.47	4.65	0.92
210	7.10	9.51	4.42	0.87
240	7.20	9.73	4.21	0.83

Çizelge A. 5 : 3.79 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 3.79 mA/cm², oluşan çamur : 4700 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	12.90	6.83	5.02	1.00
15	12.80	9.11	4.77	0.95
30	12.20	10.28	4.56	0.91
45	12.00	10.64	4.54	0.90
60	11.50	10.86	4.42	0.88
90	11.20	11.02	4.21	0.84
120	10.70	11.06	3.92	0.78
150	10.50	11.13	3.74	0.75
180	10.30	11.24	3.70	0.74
210	9.90	11.31	3.42	0.68
240	9.80	11.50	3.30	0.66

EK B

Çizelge B. 1 : 3.79 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 3.79 mA/cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	13.30	6.48	4.59	1.00
15	12.80	9.11	4.15	0.90
30	12.10	10.28	4.06	0.88
45	11.40	10.64	3.88	0.85
60	10.90	10.86	3.85	0.84
90	10.60	11.04	3.61	0.79
120	10.30	11.13	3.21	0.70
150	9.80	11.24	3.14	0.68
180	9.60	11.31	2.89	0.63

Çizelge B. 2 : 7.58 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 7.58 mA/cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	21.70	6.49	4.58	1.00
15	20.80	10.45	3.71	0.81
30	19.20	10.88	3.69	0.81
45	18.20	11.02	3.57	0.78
60	17.50	11.14	3.54	0.77
90	16.40	11.26	3.17	0.69
120	15.70	11.34	2.77	0.60
150	15.30	11.38	2.67	0.58
180	15.20	11.42	2.61	0.57

Çizelge B. 3 : 11.37 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 11.37 mA/cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	34.10	6.47	4.56	1.00
15	27.20	10.56	4.36	0.96
30	24.80	11.02	4.31	0.95
45	22.60	11.14	4.01	0.88
60	21.40	11.29	3.92	0.86
90	20.00	11.40	3.38	0.74
120	19.50	11.46	3.26	0.71
150	19.50	11.56	2.95	0.65
180	20.10	11.55	2.22	0.49

Çizelge B. 4 : 015.16 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀ : 5 mg/L, Cl:50 mg/L (NaCl), J: 15.16 mA/cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	45.10	6.48	4.51	1.00
15	33.70	11.03	4.27	0.95
30	29.60	11.14	4.31	0.96
45	26.80	11.21	4.03	0.89
60	25.50	11.30	3.90	0.86
90	24.10	11.34	3.37	0.75
120	24.30	11.42	3.26	0.72
150	24.70	11.44	3.01	0.67
180	25.10	11.51	2.37	0.53

EK C

Çizelge C. 1 : 50 mg/L Cl⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀: 5 mg/L, pH₀~7, Cl: 50 mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 6085 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	37.10	6.86	4.78	1.00
15	29.30	10.38	4.74	0.99
30	26.30	10.69	4.56	0.95
45	24.00	10.88	4.42	0.92
60	22.20	10.94	4.43	0.93
90	20.60	11.15	4.09	0.86
120	19.70	11.19	3.60	0.75
150	19.90	11.20	3.54	0.74
180	20.50	11.22	3.12	0.65
210	21.70	11.16	2.57	0.54
240	23.20	11.06	2.37	0.50

Çizelge C. 2 : 75 mg/L Cl⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀: 5 mg/L, pH₀~7, Cl: 75 mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 6005 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	35.30	7.03	4.84	1.00
15	24.80	10.14	4.76	0.98
30	22.00	10.62	4.66	0.96
45	20.20	10.75	4.62	0.95
60	19.00	10.88	4.34	0.90
90	17.40	10.93	3.91	0.81
120	16.60	11.08	3.69	0.76
150	16.30	11.10	2.95	0.61
180	16.50	11.14	2.92	0.60
210	16.80	11.18	2.73	0.56
240	18.10	11.17	2.58	0.53

Çizelge C. 3 : 100 mg/L Cl⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F0: 5 mg/L, pH0~7, Cl⁻: 100 mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 15335 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	24.70	6.93	4.81	1.00
15	20.90	10.50	4.54	0.94
30	18.60	10.75	4.08	0.85
45	17.50	10.87	3.89	0.81
60	16.40	11.00	3.70	0.77
90	15.10	11.07	3.50	0.73
120	14.40	11.14	3.18	0.66
150	14.10	11.20	2.67	0.56
180	14.20	11.23	2.65	0.55
210	15.20	11.28	2.52	0.52
240	17.00	11.30	2.27	0.47

Çizelge C. 4 : 125 mg/L Cl⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F0: 5 mg/L, pH0~7, Cl⁻: 125 mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 20880 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	16.90	6.79	4.88	1.00
15	15.70	8.10	4.57	0.94
30	14.10	10.32	4.52	0.93
45	12.80	10.76	4.53	0.93
60	12.20	10.93	4.40	0.90
90	11.20	11.17	4.16	0.85
120	10.70	11.22	3.96	0.81
150	10.30	11.25	3.39	0.69
180	10.00	11.33	3.08	0.63
210	10.20	11.34	2.76	0.57
240	10.40	11.41	2.44	0.50

Çizelge C. 5:150 mg/L Cl⁻ eşdeğeri NaCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀: 5 mg/L, pH₀~7, Cl:150 mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 20055 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	14.70	6.90	4.85	1.00
15	12.90	10.42	4.30	0.89
30	11.80	10.73	4.20	0.87
45	11.20	10.95	4.05	0.84
60	10.80	11.05	4.07	0.84
90	10.10	11.15	3.75	0.77
120	9.60	11.24	3.52	0.73
150	9.30	11.37	3.07	0.63
180	9.20	11.41	3.12	0.64
210	9.30	11.45	3.00	0.62
240	9.60	11.47	3.01	0.62

EK D

Çizelge D. 1 : 50 mg/L Cl⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀: 5 mg/L, pH₀~7, Cl⁻: 50 mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 6685 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	34.30	7.20	4.97	1.00
15	28.60	10.28	4.84	0.97
30	25.70	10.64	3.87	0.78
45	23.50	10.90	3.43	0.69
60	21.90	11.00	3.37	0.68
90	20.50	11.02	2.96	0.60
120	20.00	11.15	3.38	0.68
150	20.10	11.16	2.80	0.56
180	20.30	11.24	2.97	0.60
210	20.80	11.19	2.78	0.56
240	21.30	11.23	2.65	0.53

Çizelge D. 2 : 75 mg/L Cl⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀: 5 mg/L, pH₀~7, Cl: 75mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 6005 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	32.10	7.02	4.94	1.00
15	27.80	8.97	4.92	1.00
30	26.52	9.02	4.87	0.99
45	22.40	9.13	4.76	0.96
60	22.30	9.24	4.51	0.91
90	21.70	9.21	4.46	0.90
120	19.80	9.25	4.41	0.89
150	19.60	9.26	4.27	0.86
180	19.60	9.26	4.05	0.82
210	19.50	9.32	3.88	0.79
240	19.40	9.35	3.57	0.72

Çizelge D. 3 :100 mg/L Cl⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀: 5 mg/L, pH₀~7, Cl: 100 mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 5335 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	25.70	7.00	4.98	1.00
15	21.90	8.78	4.90	0.98
30	19.60	8.85	4.87	0.98
45	17.80	8.87	4.83	0.97
60	16.20	8.93	4.78	0.96
90	15.50	8.94	4.67	0.94
120	14.80	8.94	4.55	0.91
150	14.70	8.94	4.23	0.85
180	14.70	8.94	4.17	0.84
210	14.60	8.95	3.90	0.78
240	14.30	8.89	3.76	0.76

Çizelge D. 4 :125 mg/L Cl⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀: 5 mg/L, pH₀~7, Cl: 125 mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 3800 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	18.90	6.90	5.02	1.00
15	16.70	8.00	4.09	0.81
30	15.10	7.98	4.11	0.82
45	13.20	7.98	3.99	0.79
60	12.40	8.00	3.97	0.79
90	12.20	8.01	3.98	0.79
120	11.80	8.13	3.93	0.78
150	11.60	8.23	3.87	0.77
180	10.50	8.24	3.85	0.77
210	10.50	8.24	3.75	0.75
240	10.40	8.25	3.74	0.75

Çizelge D. 5 :150 mg/L Cl⁻ eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀: 5 mg/L, pH₀~7, Cl: 150 mg/L, J: 11.37 mA/cm², oluşan çamur: 3850 mg AKM/L).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	14.70	6.96	4.97	1.00
15	12.90	7.22	4.71	0.95
30	11.80	8.12	4.66	0.94
45	11.20	8.56	4.62	0.93
60	10.80	8.53	4.56	0.92
90	10.10	8.59	4.51	0.91
120	9.60	8.51	4.44	0.89
150	9.30	8.49	4.40	0.89
180	9.20	8.51	4.21	0.85
210	9.30	8.50	4.20	0.85
240	9.60	8.51	4.12	0.83

Çizelge D. 6 : 50 mg /L klorür eşdeğeri KCl dozajı ile yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F₀: 5 mg/L, pH₀=3, J: 11.37 mA/cm²)

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	34.90	3.00	4.97	1.00
15	38.90	3.15	4.33	0.87
30	37.80	3.22	4.21	0.85
45	36.60	3.35	4.20	0.85
60	35.30	3.36	4.06	0.82
90	32.30	3.36	4.10	0.82
120	28.40	3.40	3.32	0.67
150	27.30	3.55	3.20	0.64
180	26.80	3.59	3.23	0.65
210	27.50	4.41	3.15	0.63
240	27.90	4.57	3.02	0.61

EKE

Çizelge E. 1 : Başlangıç florür konsantrasyonu 2 mg/L olarak hazırlanan numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları(pH~7, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	31.20	6.98	1.98	1.00
15	27.80	10.66	1.89	0.95
30	24.90	10.78	1.88	0.95
45	22.40	10.88	1.90	0.96
60	21.10	11.00	1.87	0.94
90	19.60	11.05	1.80	0.91
120	19.20	11.08	1.64	0.83
150	18.80	11.14	1.66	0.84
180	18.70	11.14	1.57	0.79
210	19.00	11.15	1.53	0.77
240	19.40	11.16	1.52	0.77

Çizelge E. 2 : Başlangıç florür konsantrasyonu 3 mg/L olarak hazırlanan numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (pH~7, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	33.20	6.98	2.98	1.00
15	29.80	10.75	2.90	0.97
30	25.90	10.85	2.91	0.98
45	24.30	10.93	2.85	0.96
60	24.20	10.96	2.81	0.94
90	22.30	11.01	2.54	0.85
120	21.70	11.05	2.33	0.78
150	19.50	11.15	1.98	0.66
180	19.30	11.15	1.86	0.62
210	19.50	11.16	1.65	0.55
240	19.50	11.17	1.42	0.48

Çizelge E. 3 : Başlangıç florür konsantrasyonu 4 mg/L olarak hazırlanan numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (pH~7, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	34.50	6.96	4.02	1.00
15	33.80	10.28	3.98	0.99
30	32.50	10.36	3.88	0.97
45	30.20	10.46	3.74	0.93
60	30.10	10.60	3.68	0.92
90	29.50	11.11	3.71	0.92
120	28.90	11.25	3.45	0.86
150	28.50	11.52	2.99	0.74
180	25.30	11.55	2.95	0.73
210	22.90	11.62	2.52	0.63
240	23.50	11.63	2.33	0.58

Çizelge E. 4: Başlangıç florür konsantrasyonu 5 mg/L olarak hazırlanan numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları
(pH~7, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA /cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F ₀)
0	35.10	6.89	4.95	1.00
15	29.20	10.38	4.84	0.98
30	26.20	10.69	4.66	0.94
45	24.50	10.88	4.48	0.91
60	22.20	10.94	4.48	0.91
90	20.50	11.15	4.31	0.87
120	19.80	11.19	3.80	0.77
150	19.90	11.20	3.57	0.72
180	20.40	11.22	3.18	0.64
210	21.80	11.16	2.69	0.54
240	23.20	11.06	2.41	0.49

EK F

Çizelge F. 1 : Başlangıç pH'sı 3 olarak hazırlanan numunede yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F_0 : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA/cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F_0)
0	50.90	3.01	5.05	1.00
15	50.70	7.08	4.40	0.87
30	52.50	7.58	3.82	0.76
45	53.20	7.94	3.22	0.64
60	52.60	9.05	2.73	0.54
90	46.00	10.01	2.66	0.53
120	43.20	10.27	2.09	0.41
150	41.90	10.28	2.05	0.41
180	41.30	10.36	2.42	0.48
210	41.40	10.36	1.70	0.34
240	41.30	10.39	1.58	0.31

Çizelge F. 2 : Başlangıç pH'sı 4 olarak hazırlanan numunede yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F_0 : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA/cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F_0)
0	52.40	4.10	5.03	1.00
15	45.00	8.13	4.73	0.94
30	38.60	10.12	4.02	0.80
45	33.90	10.56	3.98	0.79
60	31.30	10.68	3.78	0.75
90	27.70	10.65	3.64	0.72
120	26.20	10.94	3.73	0.74
150	26.10	10.96	3.60	0.72
180	25.50	10.96	3.21	0.64
210	25.30	11.01	2.15	0.43
240	25.20	11.00	1.78	0.35

Çizelge F. 3 : Başlangıç pH'sı 5 olarak hazırlanan numunede yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F_0 : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA/cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F_0)
0	38.50	5.10	5.00	1.00
15	30.90	7.69	4.98	1.00
30	28.70	10.14	4.85	0.97
45	28.50	10.16	4.84	0.97
60	28.60	10.26	4.73	0.95
90	27.30	10.26	3.65	0.73
120	27.10	10.28	3.25	0.65
150	25.70	10.29	2.56	0.51
180	25.30	10.45	2.48	0.50
210	25.10	10.58	2.31	0.46
240	22.30	10.59	1.76	0.35

Çizelge F. 4 : Başlangıç pH'sı 5 olarak hazırlanan numunede yürütülen elektrokoagülasyon denemesi sonuçları (F_0 : 5 mg/L, Cl: 50 mg/L, J : 11.37 mA/cm²).

Zaman (dk)	Volt	pH	Florür (mg/L)	Normalize Florür Değişimi (F/F_0)
0	24.70	6.08	5.00	1.00
15	20.90	7.89	4.81	0.96
30	18.60	10.14	4.54	0.91
45	17.50	10.16	4.08	0.82
60	16.40	10.26	3.89	0.78
90	15.10	10.26	3.70	0.74
120	14.40	10.28	3.50	0.70
150	14.10	10.29	3.18	0.64
180	14.20	10.45	2.67	0.53
210	15.20	10.58	2.65	0.53
240	16.50	10.59	2.21	0.44

ÖZGEÇMİŞ

VESİKALIK
FOTO

Ad Soyad: Kübra Konuk

Doğum Yeri ve Tarihi: İstanbul, 05.10.1990

Adres: Atakent Mah., Atakent 1 Sitesi, B Blok, 31/13
Ümraniye-İstanbul

E-Posta: kubra_konuk@hotmail.com

Lisans: İTÜ, Çevre Mühendisliği

Yayınlar: I. Kabdaşlı*, O. Tünay, K. Konuk, G. Etçioğlu, E. Kocabaş, “Alternative Treatment Schemes for Water Based Paint Using Latex Binder Production Wastewaters” 6th European meeting on Solar Chemistry and Photocatalysis: Environmental Applications, SPEA6- Prague, Haziran 2010