

**SULU ÇÖZELTİDEN BAZI FARMASÖTİKLERİN  
ELEKTROKİMYASAL OKSİDASYON İLE GİDERİMİNİN  
ARAŞTIRILMASI**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**FATMA SADIOĞLU KALAYCI**

**MERSİN ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ  
ANABİLİM DALI**

**MERSİN  
AĞUSTOS- 2019**

**SULU ÇÖZELTİDEN BAZI FARMASÖTİKLERİN  
ELEKTROKİMYASAL OKSİDASYON İLE GİDERİMİNİN  
ARAŞTIRILMASI**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**FATMA SADIOĞLU KALAYCI**

**MERSİN ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

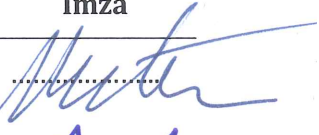
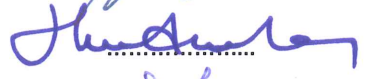

**ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ  
ANABİLİM DALI**

**Danışman  
Dr. Öğr. Üyesi Mutlu YALVAÇ**

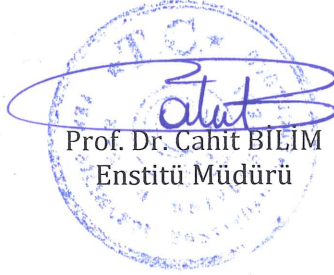
**MERSİN  
AĞUSTOS - 2019**

## ONAY

Fatma SADIÖĞLU KALAYCI tarafından Dr. Öğr. Üyesi Mutlu YALVAÇ danışmanlığında hazırlanan "Sulu Çözeltilerden Bazı Farmasötiklerin Elektrokimyasal Oksidasyon İle Gideriminin Araştırılması" başlıklı çalışma aşağıda imzaları bulunan jüri üyeleri tarafından 22/08/2019 tarihinde yapılan Tez Savunma Sınavı sonucunda oy birliği ile Yüksek Lisans tezi olarak kabul edilmiştir.

Görevi	Ünvanı, Adı ve Soyadı	İmza
Başkan	Dr. Öğr. Üyesi Mutlu YALVAÇ	
Üye	Dr. Öğr. Üyesi Hüdaverdi ARSLAN	
Üye	Dr. Öğr. Üyesi Serpil SAVCI	

Yukarıdaki Jüri kararı Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu'nun <sup>04/10/2019</sup>.../.../... tarih ve <sup>2019/38</sup>.../... sayılı kararıyla onaylanmıştır.



Bu tezde kullanılan özgün bilgiler, şekil, tablo ve fotoğraflardan kaynak göstermeden alıntı yapmak 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunu hükümlerine tabidir.

## ETİK BEYAN

Mersin Üniversitesi Lisansüstü Eğitim-Öğretim Yönetmeliğinde belirtilen kurallara uygun olarak hazırladığım bu tez çalışmada,

- Tez içindeki bütün bilgi ve belgeleri akademik kurallar çerçevesinde elde ettiğimi,
- Görsel, işitsel ve yazılı tüm bilgi ve sonuçları bilimsel ahlâk kurallarına uygun olarak sunduğumu,
- Başkalarının eserlerinden yararlanılması durumunda ilgili eserlere bilimsel normlara uygun olarak atıfta bulunduğumu,
- Atıfta bulunduğum eserlerin tümünü kaynak olarak kullandığımı,
- Kullanılan verilerde herhangi bir tahrifat yapmadığımı,
- Bu tezin herhangi bir bölümünü Mersin Üniversitesi veya başka bir üniversitede başka bir tez çalışması olarak sunmadığımı,
- Tezin tüm telif haklarını Mersin Üniversitesi'ne devrettiğimi

beyan ederim.

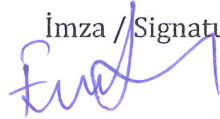
## ETHICAL DECLARATION

This thesis is prepared in accordance with the rules specified in Mersin University Graduate Education Regulation and I declare to comply with the following conditions:

- I have obtained all the information and the documents of the thesis in accordance with the academic rules.
- I presented all the visual, auditory and written informations and results in accordance with scientific ethics.
- I refer in accordance with the norms of scientific works about the case of exploitation of others' works.
- I used all of the referred works as the references.
- I did not do any tampering in the used data.
- I did not present any part of this thesis as an another thesis at Mersin University or another university.
- I transfer all copyrights of this thesis to the Mersin University.

22.../07/2019

İmza / Signature



Fatma SADIOĞLU KALAYCI

## ÖZET

### SULU ÇÖZELTİDEN BAZI FARMASÖTİKLERİN ELEKTROKİMYASAL OKSİDASYON İLE GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI

İnsanlar ve diğer canlılar için kullanılan farmasötikler canlının vücudunda kalmayıp dışarı atılmaktadır. Farmasötiklerin hem üretim hem de kullanımları sonucu suya geçen kalıntıları su kirliliğine neden olmaktadır.

Bu çalışmada yaygın kullanıma sahip bir ağrı kesici olan acetaminophen ve diyabet hastalığında kullanılan metforminin sulu çözeltiden elektrokimyasal oksidasyon ile giderimi araştırılmıştır. Elektrokimyasal oksidasyon işlemi 5x7 cm, 4 mm et kalınlığında 316 L paslanmaz çelik elektrotlar kullanılmıştır. Kesikli sistemde elektrokimyasal oksidasyon ile kirletici konsantrasyonu, akım yoğunluğu, NaCl miktarı ve deney süresi optimize edilmiştir.

Her iki ilaç için optimum koşullar ilaç derişimi 100mg/L, tuz miktarı 2,34 g NaCl, süre 3 saat ve akım yoğunluğu 200 A/m<sup>2</sup> olarak bulunmuştur. Optimum koşullarda Acetaminophen ve Metformin giderim verimi sırasıyla %62,2 ve %65 olarak elde edilmiştir.

Çalışmada kullanılan güce göre elektrik maliyeti hesaplanmıştır. Maliyetin akım yoğunluğunun artması, kirletici konsantrasyonunun artması, kullanılan NaCl miktarının artması ve deney süresinin artması ile paralel arttığı görülmüştür. En yüksek maliyet değeri 5,247 kuruş olarak hesaplanmıştır. Optimum değerlerde yapılan deneylerde anot kaybı ortalama 4 gramdır. Anot kaybı, giderim yüzdesi ve maliyet birlikte değerlendirildiğinde bu metotun biyolojik arıtma gibi başka bir arıtma yöntemi ile kullanılmasının daha uygun olacağı sonucuna ulaşılmıştır.

**Anahtar Kelimeler:** Farmasötik, Elektrokimyasal oksidasyon, Acetaminophen, Metformin, Arıtma.

**Danışman:** Dr. Öğr. Üyesi Mutlu YALVAÇ, Mersin Üniversitesi, Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı, Mersin.

## ABSTRACT

### SOME PHARMACEUTICALS OF WATER SOLUTION INVESTIGATION OF ELECTROCHEMICAL OXIDATION AND REMOVAL

The pharmaceuticals used for humans and other living things do not remain in the organism's body but are excreted. The residues of the pharmaceuticals which enter the water as a result of both production and usage cause water pollution.

In this study, acetaminophen, a commonly used pain reliever and metformin used in diabetes, was investigated by electrochemical oxidation from aqueous solution. 316 L stainless steel electrodes with 5x7 cm, 4 mm wall thickness were used in electrooxidation process. In the batch system, the concentration of pollutant, current density, NaCl amount and duration of the experiment were optimized by electrooxidation.

Optimum conditions for both drugs were 100 mg/L, salt amount was 2.34 g NaCl, duration 3 hours and current density was 200 A/m<sup>2</sup>. Acetaminophen and metformin removal yields were obtained as 62.2% and 65%, respectively, under optimum conditions.

Electricity cost was calculated according to the power used in the study. It was observed that the cost increased parallel to the increase in the flow density, the concentration of the pollutant, the amount of NaCl used and the duration of the experiment. The highest cost value was calculated as 5,247 penny. Anode loss is 4 grams in the experiments carried out at optimum values. When the anode loss, percentage of removal and cost are evaluated together, it is concluded that this method would be more appropriate to use with another treatment method such as biological treatment.

**Keywords:** Pharmaceutical, Electrooxidation, Acetaminophen, Metformin, Treatment.

**Advisor:** Assistant Professor Mutlu YALVAÇ, Department of Environmental Engineering, University of Mersin, Mersin.

## ABSTRACT

### SOME PHARMACEUTICALS OF WATER SOLUTION INVESTIGATION OF ELECTROCHEMICAL OXIDATION AND REMOVAL

The pharmaceuticals used for humans and other living things do not remain in the organism's body but are excreted. The residues of the pharmaceuticals which enter the water as a result of both production and usage cause water pollution.

In this study, acetaminophen, a commonly used pain reliever and metformin used in diabetes, was investigated by electrochemical oxidation from aqueous solution. 316 L stainless steel electrodes with 5x7 cm, 4 mm wall thickness were used in electrooxidation process. In the batch system, the concentration of pollutant, current density, NaCl amount and duration of the experiment were optimized by electrooxidation.

Optimum conditions for both drugs were 100 mg/L, salt amount was 2.34 g NaCl, duration 3 hours and current density was 200 A/m<sup>2</sup>. Acetaminophen and metformin removal yields were obtained as 62.2% and 65%, respectively, under optimum conditions.

Electricity cost was calculated according to the power used in the study. It was observed that the cost increased parallel to the increase in the flow density, the concentration of the pollutant, the amount of NaCl used and the duration of the experiment. The highest cost value was calculated as 5,247 penny. Anode loss is 4 grams in the experiments carried out at optimum values. When the anode loss, percentage of removal and cost are evaluated together, it is concluded that this method would be more appropriate to use with another treatment method such as biological treatment.

**Keywords:** Pharmaceutical, Electrooxidation, Acetaminophen, Metformin, Treatment.

**Advisor:** Dr. Mutlu YALVAÇ, Department of Environmental Engineering, University of Mersin, Mersin.

## TEŐEKKÜR

Mersin Üniversitesi'nde Yüksek Lisans çalışmalarım süresince sağladığı bilgi, gösterdiği özveri, titizlik ve anlayışı ile beni destekleyen Danışmanım Dr. Öğr. Üyesi Mutlu YALVAÇ'a sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Laboratuvar çalışmalarımda bana destek olan arkadaşlarıma, hocalarıma ve bu tez çalışmasında bana manevi destek olan arkadaşım Ferhat SİME'ye teşekkür ederim. Tüm hayatım boyunca manevi desteğini hep hissettiğim canım anneme, babama ve kardeşlerime teşekkürlerimi sunarım.

Benimle birlikte yola çıkan, en zor günlerimde yanımda olan ve bu çalışmamda bana maddi ve manevi desteği ile yalnız bırakmayan eşim Halil Kalaycı'ya ve yüksek Lisans döneminde hayatıma giren canım oğlum Mirza'ya teşekkürü bir borç bilirim.

Bu tez Mersin Üniversitesi BAP Birimi tarafından "2017-2-TP2-2563" nolu proje olarak desteklenmiştir.



## İÇİNDEKİLER

	Sayfa
İÇ KAPAK	ii
ONAY	iii
ETİK BEYAN	iv
ÖZET	v
ABSTRACT	vi
TEŞEKKÜR	vii
İÇİNDEKİLER	viii
TABLolar DİZİNİ	x
ŞEKİLLER DİZİNİ	xi
KISALTMALAR ve SİMGELER	xii
<b>1. GİRİŞ</b>	<b>1</b>
<b>2. KAYNAK ARAŞTIRMALARI</b>	<b>3</b>
2.1. Farmasötik Endüstrisi	3
2.1.1. Farmasötik Maddelerin Elde Edilmesi	3
2.1.2. Farmasötiklerin Çevresel Etkileri	3
2.1.3. Acetaminophen	6
2.1.4. Metformin	7
2.2. Elektrokimyasal Arıtım	9
2.2.1. Elektrokimyasal Prosesin Esasları	10
2.2.2. Elektrokimyasal Atıksu Arıtım Prosesleri	13
2.2.2.1. Elektrokoagülasyon Prosesi ve Uygulamaları	14
2.2.2.3. Elektroflotasyon Prosesi ve Uygulamaları	15
2.2.2.3. Elektrokimyasal Prosesi ve Uygulamaları	17
<b>3. MATERYAL ve YÖNTEM</b>	<b>22</b>
3.1. Materyal	22
3.1.1. Deneysel Çalışmada Kullanılan Cihazlar ve Kimyasal Maddeler	22
3.2. Metot	22
3.2.1. Stok Çözeltisinin Hazırlanması	25
3.2.2. Standart Eğrisinin Çıkarılması	25
3.2.3. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneyleri	25
3.2.3.1. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneylerine Konsantrasyonun Etkisi	25
3.2.3.2. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneylerine Akım Yoğunluğunun Etkisi	26
3.2.3.3. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneylerine NaCl Etkisi	26
3.2.3.4. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneylerine Sürenin Etkisi	26
3.2.2. Metformin Elektrokimyasal Deneyleri	26
3.2.2.1. Metformin Elektrokimyasal Deneylerine Konsantrasyonun Etkisi	26
3.2.2.2. Metformin Elektrokimyasal Deneylerine Akım Yoğunluğunun Etkisi	27
3.2.2.3. Metformin Elektrokimyasal Deneylerine NaCl Etkisi	27
3.2.2.4. Metformin Elektrokimyasal Deneylerine Sürenin Etkisi	28
<b>4. BULGULAR ve TARTIŞMA</b>	<b>29</b>
4.1. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneyleri	29
4.1.1. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneylerine Konsantrasyonun Etkisi	30
4.1.2. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneylerine Akım Yoğunluğunun Etkisi	30
4.1.3. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneylerine NaCl Etkisi	32
4.1.4. Acetaminophen Elektrokimyasal Deneylerine Sürenin Etkisi	34
4.2. Metformin Elektrokimyasal Deneyleri	35
4.2.1. Metformin Elektrokimyasal Deneylerine Konsantrasyonun Etkisi	35
4.2.2. Metformin Elektrokimyasal Deneylerine Akım Yoğunluğunun Etkisi	37
4.2.3. Metformin Elektrokimyasal Deneylerine NaCl Etkisi	38
4.2.4. Metformin Elektrokimyasal Deneylerine Sürenin Etkisi	40

	<b>Sayfa</b>
<b>5. SONUÇLAR ve ÖNERİLER</b>	43
KAYNAKLAR	44
EKLER	49
ÖZGEÇMİŞ	50



## TABLULAR DİZİNİ

	<b>Sayfa</b>
Tablo 2.1. Sucul Ortamlarda Bulunan Bazı Kirleticiler	6
Tablo 2.2. Acetaminophene Ait Bazı Fiziksel Özellikler	7
Tablo 2.3. Metformine Ait Bazı Fiziksel Özellikler	8
Tablo 2.4. Elektrokimyasal Yükseltgenme ve İndirgenme Reaksiyonları	11
Tablo 2.5. Bazı Anot Elektrotlarının Renk ve KOİ Giderim Sonuçları	17
Tablo 3.1. Kullanılan Cihazlar ve Kimyasallar	22
Tablo 3.2. Deney Tasarımı	23
Tablo 4.1. Acetaminophen Giriş ve Çıkış mg/L	29
Tablo 4.2. Acetaminophen Elektroksidasyonuna Konsantrasyonun Etkisi	30
Tablo 4.3. Maliyet Analizi	30
Tablo 4.4. Acetaminophen Giriş ve Çıkış mg/L	31
Tablo 4.5. Acetaminophen Elektroksidasyonuna Akım Yoğunluğunun Etkisi	31
Tablo 4.6. Maliyet Analizi	32
Tablo 4.7. Acetaminophen Giriş ve Çıkış mg/L	32
Tablo 4.8. Acetaminophen Elektroksidasyonuna NaCl Etkisi	32
Tablo 4.9. Maliyet Analizi	34
Tablo 4.10. Acetaminophen Giriş ve Çıkış mg/L	34
Tablo 4.11. Acetaminophen Elektroksidasyonuna Sürenin Etkisi	34
Tablo 4.12. Maliyet Analizi	35
Tablo 4.13. Metformin Giriş ve Çıkış mg/L	36
Tablo 4.14. Metformin Elektroksidasyonuna Konsantrasyonun Etkisi	36
Tablo 4.15. Maliyet Analizi	37
Tablo 4.16. Metformin Giriş ve Çıkış mg/L	37
Tablo 4.17. Metformin Elektroksidasyonuna Akım Yoğunluğunun Etkisi	37
Tablo 4.18. Maliyet Analizi	38
Tablo 4.19. Metformin Giriş ve Çıkış mg/L	39
Tablo 4.20. Metformin Elektroksidasyonuna NaCl Etkisi	39
Tablo 4.21. Maliyet Analizi	40
Tablo 4.22. Metformin Giriş ve Çıkış mg/L	41
Tablo 4.23. Metformin Elektroksidasyonuna Sürenin Etkisi	41
Tablo 4.24. Maliyet Analizi	42

## ŞEKİLLER DİZİNİ

	<b>Sayfa</b>
Şekil 2.1. İnsan ve Hayvanların kullandığı farmasötiklerin çevrede yayılma davranışları	5
Şekil 2.2. Acetaminophenin Molekül Yapısı	6
Şekil 2.3. Metforminin Molekül Yapısı	8
Şekil 2.4. Metformin ve Dönüşüm Ürünü Guanylurea	9
Şekil 2.5. Elektrokimyasal Hücrenin Şematik Görüntüsü	11
Şekil 2.6. Pilot Ölçekte Bir Elektrokoksasyon Reaktör Sistemi	18
Şekil 2.7. Elektrokimyasal Dönüşüm ve Parçalanma Şematik Görüntüsü	18
Şekil 2.8. Elektrokoksasyon ile Diğer arıtım Tekniklerinin Kullanımı	21
Şekil 3.1. Metformin ve Acetaminophen	22
Şekil 4.1. Acetaminophen Giderim Verimine Konsantrasyon Etkisi	30
Şekil 4.2. Acetaminophen Giderim Verimine Akım Yoğunluğunun Etkisi	31
Şekil 4.3. NaCl Miktarı-Elektiriksel İletkenlik İlişkisi	33
Şekil 4.4. Acetaminophen Giderim Verimine NaCl Etkisi	33
Şekil 4.5. Acetaminophen Giderim Verimine Sürenin Etkisi	35
Şekil 4.6. Metformin Giderim Verimine Konsantrasyon Etkisi	36
Şekil 4.7. Metformin Giderim Verimine Akım Yoğunluğunun Etkisi	37
Şekil 4.8. NaCl Miktarı-Elektiriksel İletkenlik İlişkisi	39
Şekil 4.9. Metformin Giderim Verimine NaCl Etkisi	40
Şekil 4.10. Metformin Verimine Sürenin Etkisi	41

## KISALTMALAR ve SİMGELER

Kısaltma/Simge	Tanım
$C_8H_9NO_2$	Acetaminophen
Al	Alüminyum
Ij	Bir Elektrottaki Toplam Akım
DAF	Çözünmüş Hava Flotasyonu
rpm	Dakikadaki Dönme Sayısı
Fe	Demir
Ga	Gallium
$H_2O_2$	Hidojen Peroksit
OH	Hidroksit
CLOH	Hipokloröz Asit
Ir	İridyum
Sn	Kalay
$SnO_2$	Kalay Oksit
$CO_2$	Karbondioksit
kWh	Kilowattsaat
KOİ	Kimyasal Oksijen İhtiyacı
$ClO_2$	Klor Oksit
$C_4H_{11}N_5$	Metformin
$m^3$	Metreküp
$\mu m$	Mikrometre
mA	Miliamper
Ni	Nikel
Qp	Oluşan Ürünün Harcadığı Yük
$O_3$	Ozon
Pt	Platin
Ru	Rutenyum
$RuO_2$	Rutenyum Oksit
H	Saat
$^{\circ} C$	Sıcaklık
NaOH	Sodyum Hidroksit
NaCl	Sodyum Klorür
Ti	Titanyum
qT	Toplam Harcanan Yük
V	Volt

## 1. GİRİŞ

Sanayi devrimi ile başlayan endüstrileşme süreci hızla devam ederken teknolojik gelişmeleri de beraberinde getirmiştir. Bu gelişmeler insanların hayatına olumlu katkıda bulunurken doğal kaynakların kirlenmesine ve hatta tükenmesine sebep olmaktadır. Farmasötik sektöründe de insan ve diğer canlıların ihtiyaçlarını karşılamak için sürekli çalışmalar yapılmaktadır. Farmasötik üretiminde farklı hammadde ve katkı maddeleri kullanılarak karakterizasyon farklı ürünler elde edilmektedir. Farmasötikler üretimleri sırasında oluşan atıksularla, kullanıldıktan sonra idrar ve dışkı yoluyla dışarı atılmaları sonucu sucul ortamlarda kirliliğe neden olmaktadır [1].

Antik çağlara uzanan bir tedavi yöntemi olan farmasötik kullanımı günümüzde de birçok hastalıkta kullanılmaktadır. 19. yüzyılların başlarında sentetik organik kimya ve farmakoloji bilim dallarının ortaya çıkmasıyla birlikte birçok sentetik farmasötik üretimi yapılmış olup hali hazırda 1500 aktif farmasötik bileşen kullanımı bulunmaktadır. Ancak tedavi amacıyla kullanılan birçok sentetik farmasötik bilinçsiz kullanımlardan dolayı hem insan sağlığına hem de çevreye zarar vermektedir.

Dünyada hızla artış gösteren nüfus ile birlikte farmasötik kullanımlarında da artış görülmektedir. Ancak kullanılan farmasötik kalıntılarında dünyanın birçok bölgesindeki yüzey sularında rastlamak mümkündür [1]. Bütün dünyada artan talebi karşılamak için binlerce ton farmasötik üretilmektedir. İnsanlar tarafından kullanılan bu farmasötikler vücutta tam olarak metabolize olmayıp idrar ve dışkı yollarıyla atılmaktadır. Atılan bu ürünler atık sulara karışmaktadır [2]. Bu atıklar atıksularla birlikte yer altı, yüzey ve içme sularına karışmaktadır [3]. Avrupa'nın diğer ülkelerinden İspanya'ya gönderilen mahsullerden beslenen birçok İspanyol bebeğin antibiyotiklere maruz kaldığı ve sağlık problemleri meydana geldiği bilinmektedir [4]. Su ve toprak gibi ortamların kirlenmesine neden olan farmasötikler insan sağlığını tehdit etmekte ve insan bünyesine geri dönerek bağışıklık sistemini zayıflatarak birçok hastalığa yol açmaktadır [5].

Özellikle kentsel atıksu arıtma tesislerinde farmasötiklerin konsantrasyonları her geçen gün artmaktadır. Oluşan bu tehlike için farmasötiklerin giderilmesi hakkında son yıllarda birçok çalışma yapılmış olup bu çalışmalar devam etmektedir. Farmasötik içeren atıksular genel olarak bakıldığında kimyasal ya da sentetik yöntemler sonucunda oluşmaktadır. Bu nedenle atıksu içerisinde biyotoksikite, yüksek konsantrasyonlarda organik kirletici ve tuz içermektedir [6].

Farmasötiklerin çevreye ve dolaylı olarak canlıların sağlığına yaptığı olumsuz etkileri ortadan kaldırarak su kaynaklarına karışan farmasötiklerin giderimi için etkili arıtım yöntemlerine ihtiyaç duyulmaktadır. Farmasötikler parçalanmaya karşı dirençli ve toksik etkiye

sahip olmaları nedeniyle biyolojik arıtım için uygun değildir. Bu tür atıksuların arıtımı için ileri oksidasyon teknikleri ön plana çıkmaktadır [7].

Son on yıldır ilgi odağı haline gelen farmasötik içeren atıksularla ilgili yapılan çalışmalarda ileri oksidasyon yöntemleri ön plana çıkmaktadır. Bunların içinde en yaygın olarak kullanılan yöntem elektrokimyasal arıtmadır. Elektrokimyasal arıtım proseslerinin genel mekanizmasında koagülasyon, adsorbsiyon, absorpsiyon, çöktürme ve flotasyon prosesleri bulunur [8]. Bilindiği üzere elektrokimyasal arıtmada, arıtmanın verimliliğini sağlayan elektrot cinsi, reaktör tipi, elektrik akım yoğunluğu ve bekletme süresi gibi parametreler etkilemektedir.

Bu çalışmada, kirletici olarak seçilen acetaminophen ve metformin ilaçları ile ayrı ayrı sentetik atık su hazırlanmıştır. Hazırlanan sentetik atıksuların arıtımında elektrooksidasyon yönteminin verimliliği araştırılmıştır. Çalışmada en iyi giderimin sağlandığı kirletici konsantrasyonu, akım yoğunluğu, NaCl miktarı ve süre optimize edilmiştir. Acetaminophen ve metformin için deney tasarımları hazırlanmıştır. Paralel olarak yapılan sonuçlarda en iyi giderimin sağlandığı değer belirlenmiştir. Giderim yüzdesinin yanı sıra deney sırasındaki anot ve katot kayıpları, harcanan güç ve maliyet hesaplanmıştır.

## **2. KAYNAK ARAŞTIRMALARI**

### **2.1. Farmasötik Endüstrisi**

Farmasötik maddeler, meydana gelen bir hastalığın tedavisinin yapılabilmesi ve semptomlarının azaltılması amacıyla üretilen ve hastaya verilmek üzere doğal veya sentetik olarak üretilen kimyasal gruplar olarak tanımlanabilmektedir.

Küresel farmasötik endüstrisinde 2018 yılında meydana gelen büyüme hacminin 1,11 trilyon dolar olduğu ve bu oranın 2020 yılında 1,43 trilyon dolar olması beklenmektedir. Artış gösteren küresel farmasötik talebi farmasötik firmalarının üretim kapasitelerini artırmalarına sebep olmaktadır. Bunun yanı sıra yenilikçi tedavilerin bulunması konusunda çalışmalar devam etmekte olup bu amaçla yıllık yaklaşık 150 milyon dolar harcanmaktadır[9].

Türkiye İlaç Sektörü Raporuna göre ilaç pazarının 2016 yılında değer ölçeğinde 22,1 milyar TL'ye ulaştığını ve 2016 yılı içerisinde ilaç pazarında hacim ölçeğinde % 4.7'lik bir büyüme ile 2 milyar kutu satış gerçekleşmiştir. 2020 yılında Türkiye, dünya genelinde 14'üncü en büyük ülke haline geleceği tahmin edilmektedir. Ağrı kesici ilaç grubu 1 milyon 646 bin TL'lik pazar değeriyle birinci sırada yer almaktadır [10].

#### **2.1.1. Farmasötik Maddelerin Elde Edilmesi**

Farmasötik endüstrisi birçok ve çeşitli hammaddeye karşın oldukça az miktarda ürün oluşturan bir sektördür. Bu endüstrisinde kullanılan yoğun kimyasal ve yöntemlerden dolayı, proses sonucunda oluşan atıksular yoğun kirletici içermektedir [11].

İlaçların üretim proseslerine bakıldığında zaman dört ana kaynaktan elde edilmektedirler. İlaçlar, sentetik kaynaklar, bitkisel kaynaklar, hayvansal kaynaklar ve mineral kaynaklıdır. Bunların büyük kısmını bitki kaynaklı sentetik farmasötikler oluşturmaktadır. Sıklıkla etken maddesi aynı olan farmasötikler farklı isimler alabilmektedir. Bunu nedeni kendi aralarında gruplandırmaların yapılmamasıdır. Bu isimlendirmeler kimyasal, ticari ve genel isim olarak yapılmaktadır.

#### **2.1.2. Farmasötiklerin Çevresel Etkileri**

İnsan ve diğer canlıların üzerinde hastalıkların tedavi edilmesi amacıyla kullanılan birçok farmasötik bulunmaktadır. Kullanılan bu farmasötiklerin insan ve diğer canlıların metabolizması dışına atılması farmasötik kirliliğinin kaynağını oluşturmaktadır. Dünyanın birçok bölgesinde

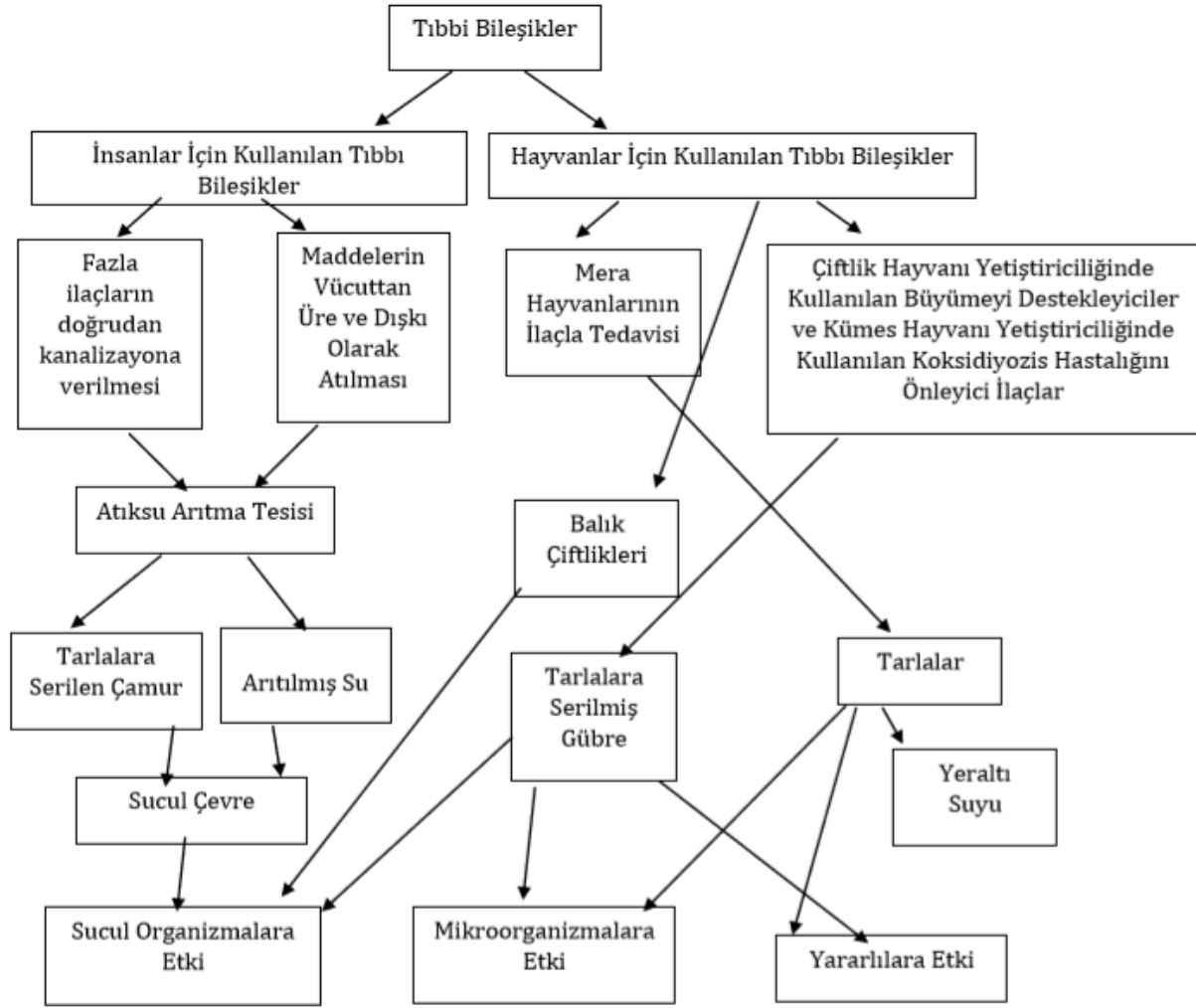
yüzey sularında farmasötik kalıntılara rastlamak mümkündür. Kirliliğe sebep olan bu farmasötikler, 10000 özel ürün ve 4000 molekülü temsil etmektedir. Göllerde, nehirlerde, içme sularında nadiren de olsa yeraltı sularında ağrı kesiciler, antibiyotikler anti-depresanlar gibi birçok farmasötiğe rastlanmaktadır [12,13].

Literatür incelemelerinde çevresel ortamlarda bulunan farmasötik kalıntılarıyla ilgili çalışmalara bakıldığında üzerinde ciddiyetle durulması gereken bir konu olduğu anlaşılmaktadır. Farmasötiklerin çevresel etkileri hakkında literatürde oldukça az bilgi bulunmakta bu nedenle dikkat edilmesi gereken bir problem olarak görülmektedir[14-17].

Farmasötiklerin sucul ekosisteme karışması ile ekolojik dengede bozulmalar görülebilir. Örneğin yapılan araştırmalarda çevresel faktörlerin balıklarda cinsiyet dönüşümüne etkisi olduğu belirtilmiştir. Farmasötiklerin sulara karışarak sucul ekosisteme ulaşması ile bu ve benzeri etkiler görülerek ekolojik dengenin bozulmasına yol açılmaktadır [18,19].

Farmasötikler organik madde, azot, fosfor gibi nütrientlerin giderimi üzerine projelendirilmiş konvansiyonel atık su arıtma prosesleri ile etkin olarak giderilmemekte ve olumsuz etkiler yapacak konsantrasyonlarda sucul ortamlara deşarj edilmektedirler. Araştırmalar bu kimyasalların çoğunun uygulanan atıksu arıtım tesislerinde tamamıyla giderilmediğini bu nedenle çıkış suyunda bulduklarını belirtmiştir [20]. Bugüne kadar çeşitli Avrupa ülkelerinde yapılan çalışmalarda atıksularda, arıtma tesisi çıkış sularında, yüzeysel sularda ve yeraltı sularında ve hatta içme sularında 100'ün üzerinde farmasötik kalıntısının var olduğu belirlenmiştir [21].

İnsan ve hayvanların kullandığı farmasötiklerin çevrede yayılma davranışları Şekil 2.1. de verilmiştir [22].



**Şekil 2.1.** İnsan ve Hayvanların Kullandığı Farmasötiklerin Çevrede Yayılma Davranışları [22].

Farmasötik endüstrisinde çeşitli ve çok sayıda hammadde kesikli, yarı kesikli ve sürekli proseslerden geçirilerek üretime hazır hale getirilir. Bu endüstrilerde % 87 oranında kesikli prosesler kullanılmaktadır. Bu nedenle oluşan atıksular ürün türüne, üretim prosesine, tesis içi kazanım uygulamalarına bağlı olarak miktar ve karakter bakımından önemlidiğişiklikler göstermektedir [23].

Genel olarak bakıldığı zaman atıksuda bulunan farmasötikler; hastaneler, sağlık merkezleri farmasötik endüstrileri ve evsel nitelikli olarak sınıflandırılabilir. Aynı zamanda tarihi geçmiş veya yarı kullanılmış farmasötik ambalajlarıyla birlikte atılmaları da atıksularda bulunmasına neden olur. Hastane ve evsel nitelikli atıksuların içerisinde bulunan farmasötikler kısmen metabolize olmuş ve değişmemiş farmasötikler, arıtma tesislerinde diğer organik ve organik olmayan kirleticilerle birlikte arıtılarak sucul sisteme verilmektedir. Örneğin yapılan çalışmalarda alıcı ortama verilen metforminin canlıların zarar görmesine sebep olduğu belirtilmiştir [23-24]. Sucul ortamda bulunan bazı kirleticiler Tablo 2.1. de verilmiştir [25].

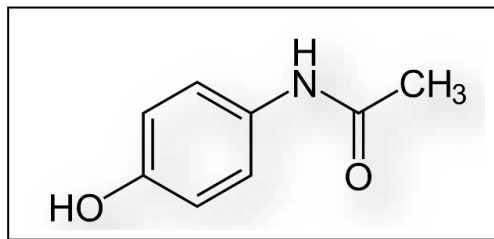
**Tablo 2.1.** Sucul ortamlarda bulunan bazı kirleticiler[25].

İlaç Türü	İlaçlarda Bulunan Etken Maddeler
<b>Antibiyotikler</b>	Sulfametokzazol, Sulfaklorpidazin, Sulfamerazin, sulfametazin, Sulfatiazol, sulfadimetokzin, Sulfametyazol
<b>Analjezikler/anti-enflamatuvar farmasötikler</b>	Diklofenak, İbuprofen, Ketorofen, Naproksen, İndometasin, Fenoprofen, Fenazon, <b>Acetaminofen (Parasetamol)</b> , Asetilsalisilikasit, Demetilaminofenazon, Meklofenamik asit, Tolfenamik asi
<b>Lipid düzenleyiciler</b>	Bezafibrat, Gemfibrozil, Klofibrat asit, Fenofibrat asit
<b>Antiepileptik-Antihipertansif farmasötikler</b>	Karbamazepin, Primidon, Metoprolol, Propranolol, Nadolol, Karazolol, Timolol, Betakzolol, Bisoprolol
<b>Diğer bulunanlar</b>	İopromit, Diatrizoat, <b>Metformin</b> (antidiabetik ajan), Fluokzetin (antidepresan)

Tablo 2.1. de de görüldüğü gibi kullanılan birçok ilacın etken maddesi su kaynaklarında bulunmaktadır.

### 2.1.3. Acetaminophen

Acetaminophen, dışı anti-enflamatuvar olan steroid bir farmasötiktir. Baş ağrıları, kas ve eklem gibi birçok ağrıda ağrı kesici olarak kullanılmaktadır. Bunun yanı sıra nezle ve ateş düşürücü özeliği bulunmaktadır [26]. Ağrı eşiğini yükselterek ağrıların hissinin azaltır. Kapalı formülü  $C_8H_9NO_2$  şeklindedir. Açık formülü Şekil 2.2. de verilmiştir [27].



**Şekil 2.2.** Acetaminophen molekül yapısı [27].

Halk arasında yaygın olarak parasetamol olarak bilinen acetaminophen; fenasetin adlı bir kimyasalın metabolitidir. Acetaminophen genel olarak bakıldığında beyaz kristal toz halinde bulunan acı ve kokusuz bir farmasötiktir. Metanol, aseton ve etanol gibi organik yapıda bulunan

çözücülerde kolaylıkla çözünmekte de olup su içerisinde de çözünmektedir [28]. Acetaminophene ait bazı fiziksel özellikleri Tablo2.2. de verilmiştir [29].

**Tablo 2.2.** Acetaminophene ait bazı fiziksel özellikler[29].

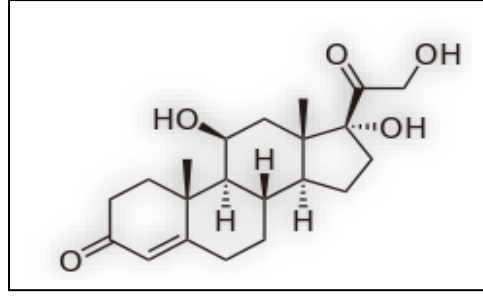
<b>Molekül formülü</b>	C <sub>8</sub> H <sub>9</sub> NO <sub>2</sub>
<b>Molekül ağırlığı (g/mol)</b>	151,17
<b>Erime Noktası (°C)</b>	169-171
<b>Kaynama Noktası (°C)</b>	> 500
<b>Suda çözünürlüğü (g/L) (20 °C)</b>	14
<b>Yoğunluk (g/cm<sup>3</sup>) (21 °C)</b>	1,293
<b>pKa</b>	9,71-9,84

Acetaminophen, çoğu vücut dokularına hızlı ve düzenli olarak dağılır. Plazma yarı ömrü 1-3 saattir. Ağız yoluyla alınan acetaminophen dozunun yaklaşık %85'i 24 saat içinde idrarda serbest ve konjuge acetaminophen olarak itrah edilir. Oral yollardan alınan bu farmasötik bağırsak ve mide de tamamen emilmemektedir. Yaklaşık 1 saat içerisinde plazmaya ulaşmakta ve %90'ı karaciğerde metabolize olup parçalanmaktadır [30].

Yaygın olarak ağrı kesici olarak kullanılan bu farmasötik doğal sulardaki konsantrasyonu gün geçtikçe artmaktadır. Ortamda ppt ve ppm oranlarında olmasına rağmen çevresel koşullara bağlı olarak birden fazla metabolite dönüşebilmektedir. Metabolitlerinin karmaşık oluşundan izlenmesi oldukça zordur. İdrokinon ve benzokinon gibi bazı metabolitler insanlar ve diğer canlılar için toksiktir [31].

#### **2.1.4. Metformin**

Metformin, karaciğer periferik dokuların insüline karşı direncini artırmaktadır. Tokluk, kısmen de açlık kan şekerini düşürmek amacıyla üretilen özel bir farmasötiktir. Kullanılan diğer antidiyabetik ajanların aksine kilo alınmasına sebep olmamaktadır [32]. Kapalı formülü C<sub>4</sub>H<sub>11</sub>N<sub>5</sub> şeklindedir. Açık formülü Şekil 2.3. de verilmiştir [27].



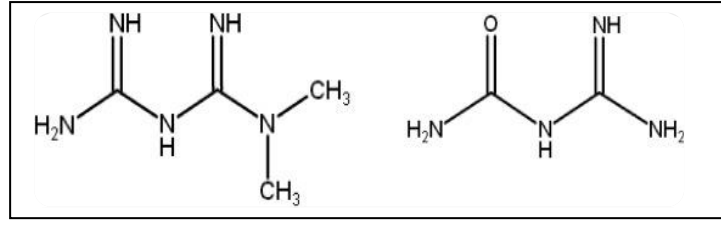
**Şekil 2.3.** Metforminin molekül yapısı [27].

Metformin, iki molekül guanidinden bir amonyak grubu elimine olup moleküllerin birleşmesinden oluşmaktadır. Oral alımını takiben proksimal ince bağırsaktan emilir, plazma proteinlerine bağlanmaz. Metformin karaciğerde metabolize edilmez. Emilen ilacın %90'ı ilk 24 saat içinde başlıca tübüler atılım olmak üzere idrar yolu ile atılır. Yarılanma ömrü yaklaşık 1,5-6 saattir. Oral alımından 1-3 saat sonra plazma düzeyi en yüksek seviyeye ulaşır. İlacın emilen kısmının tamamı alımından 4-9 saat sonra idrarla atılır [33]. Metformine ait bazı fiziksel özellikleri gösteren Tablo 2.3. te verilmiştir.

**Tablo 2.3.** Metformine ait bazı fiziksel özellikler [29].

<b>Molekül formülü</b>	$C_4H_{11}N_5$
<b>Molekül ağırlığı (g/mol)</b>	129.16
<b>Erime Noktası (<math>^{\circ}C</math>)</b>	223-226
<b>Kaynama Noktası (<math>^{\circ}C</math>)</b>	> 500
<b>Suda çözünürlüğü (g/L)</b>	12
<b>Yoğunluk (g/cm<sup>3</sup>) (21 <math>^{\circ}C</math>)</b>	1,124
<b>pKa</b>	12.4

Metformin, dünya geneline bakıldığında en çok kullanılan farmasötik grubuna girmektedir. Atıksu arıtma tesislerine gelen metformin kolaylıkla bozunarak guanylurea şekline dönüşmektedir. Oluşan yeni yan ürün bu yan ürün temel olarak kalıcı olduğundan çevre oldukça zarar verebilecek potansiyelde olduğu düşünülmektedir. Metformin ve dönüşüm ürünü guanylurea Şekil 2.4. te verilmiştir [34].



**Şekil 2.4.** Metformin ve Dönüşüm Ürünü Guanylurea

Atıksu arıtma tesisine gelen metformin ve diğer farmasötikler arıtılmış su ile birlikte sucul ortama veya karasal ortama verildiğinde bazı bitkilerin yapısına katılmaktadır. Bu durum birçok farmasötik grubu için geçerlidir. Uzun vadede düşünüldüğünde endişe verici bir durum olduğu anlaşılmaktadır [35].

Atıksu arıtma tesislerine gelen farmasötiklerin ne yazık ki atıksu içerisinde tamamen harcanmamakla birlikte daha tehlikeli yan ürünlere dönüşebilmektedir. Yunanistan yapılan bir çalışmada sekiz atıksu arıtma tesisini kapsayacak bir çalışma yapılmıştır. Çalışmada küresel olarak kullanımı yaygın olan metformin ve yan ürünü olan guanylurea hakkında kapsamlı bir çalışma yapılmıştır. Çalışmanın sonuçlarında atıksu arıtma tesisine gelen ve bozunmadan kalan metformin atıksu arıtımındaki etkisinin dominant olduğu tespit edilmiştir [36].

## 2.2. Elektrokimyasal Arıtım

En fazla kirliliğe maruz kalan hayatın temel bileşenlerinden biride sudur. Sanayileşme ile atıksu oluşumu ve çeşitliliği artmıştır. Özellikle son yıllarda hızla gelişen farmasötik sanayide bunlardan biridir. Alıcı su ortamlarındaki flora ve fauna üzerinde olumsuz etkilere neden olacak çok fazla miktarda ve kompleks atıksuların ortaya çıkması üzerine farmasötik atıksuların arıtımının yapılarak deşarji öngörülmektedir. Farmasötik atıksularının arıtımı üzerine birçok arıtım prosesi geliştirilmiştir.

Atıksuların arıtımında kullanılan fiziko-kimyasal ve biyolojik arıtım proseslerinin birçok dezavantajları bulunmaktadır. Mikroorganizmalar üzerine toksisite, arıtım proses kontrolü, çamur miktarı, kimyasal madde tüketiminin veya maliyetinin yüksekliği, arıtım tesis alanı büyüklüğü gibi birçok sınırlandırıcı dezavantaj mevcuttur. Bundan dolayıdır ki söz konusu dezavantajları ortadan kaldıracak daha etkili, ekonomik ve işletme kolaylığı gereken arıtım sistemlerinin geliştirilmesine ihtiyaç bulunmaktadır. Alıcı ortam deşarj standartlarının sıkılaştırılması daha etkili ve giderim verimi yüksek ileri atıksu arıtım proseslerinin geliştirilmesini zorunlu kılmaktadır. Özellikle toksik ve tehlikeli atıksuların arıtımında pratikte kullanılabilecek ileri atıksu arıtım proseslerinden en önemlisi elektrokimyasal atıksu arıtım prosesleri olarak göze çarpmaktadır.

Gelişen dünyada artan atıksuları arıtmak için yeni arıtma metotları araştırılmakta ve uygulamaları değerlendirilmektedir. Elektrokimyasal arıtım yöntemleride çeşitli atıksuları arıtımında gün geçtikçe kullanım alanı artan uygulamalardır. Elektrokimyasal arıtım yöntemleri işletimin kolay olması ve kurulum aşamasında düşük maliyetli ekipmanların kullanılması ve kimyasal madde kullanımının az olmasıyla düşük çamur oluşumunun görülmesi ile uygulama alanı genişleyen bir prosestir [37]. Bunların yanı sıra bu yöntemlerde organik ve inorganik kirleticisi yüksek derişime sahip olan atıksularda yüksek arıtım verimi sağlandığından tercih edilen bir yöntemdir [38].

Elektrokimyasal arıtım proseslerini elektroflotasyon, elektrooksidasyon, elektro indirgenme, elektrodializ ve elektrokoagülasyon olarak sıralayabiliriz. Arıtım proseslerini birbirinden ayıran özellik işletimin yapı şeklinin yani elektrot tipinin, sisteme uygulanan akım şiddetinin, elektriksel gerilim gibi özelliklerinin farklı olmasıdır [38].

### 2.2.1. Elektrokimyasal Prosesin Esasları

Elektrokimyasal arıtım çok yönlülük, enerji verimliliği, otomatik kontrolün sağlanması, çevresel uygulamalara uygunluk ve maliyet verimliliği gibi özelliklere sahiptir. Bu özelliklerinden dolayı elektrokimyasal arıtım yöntemlerini çevreci olarak nitelendirebiliriz. Bu özellikleri tek tek ele alacak olursak [39-41];

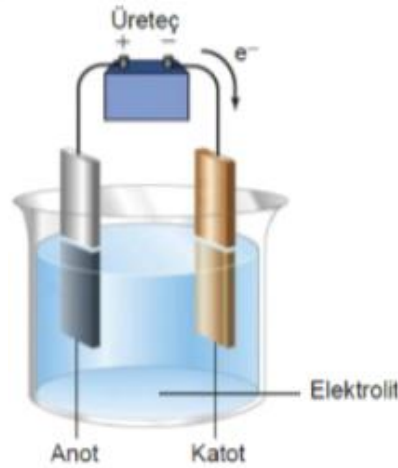
- **Çok Yönlülük:** Elektrokimyasal prosesler birçok çevre probleminin çözümünde doğrudan veya dolaylı olarak kullanılabilir. Elektrokimyasal yükseltgenme ve indirgenme sonucu, çözeltilerin derişiklendirilmesi veya seyreltilmesi yani faz ayırmaları gerçekleştirilir. Sonuç olarak birçok kirleticinin ve maddenin çok düşük konsantrasyonlara kadar bile ayrılması sözkonusudur.
- **Enerji verimliliği:** Elektrokimyasal prosesler klasik proseslere göre daha düşük sıcaklıklara ihtiyaç duymaktadırlar (termal yanma gibi). Düşük elektriksel akım dağılımları, voltaj düşmeleri ve yan rekasyonlardan dolayı oluşan güç kayıplarını minimize etmek için uygun elektrot ve hücre dizaynları ile enerji verimleri artırılabilir. Böylece klasik sistemlere göre daha az enerji tüketimi ortaya çıkmış olacaktır.
- **Otomasyona uyma kabiliyeti:** Elektrokimyasal proseslerde elektriksel değişkenler (voltaj ve akım gibi) genellikle veri elde etmeyi kolaylaştırma, proses kontrolü ve otomasyonu için uygun özelliktedir.
- **Çevre uyumu:** Elektrokimyasal proseslerde ana reaktif elektrot olup, temiz bir reaktiftir. Proseste genellikle çok fazla ekstra reaktifler gerekmemektedir. İlave olarak bu proseslerin birçoğunun yüksek seçicilik özelliğinden dolayı ikincil ürünlerin oluşumu gözlenmemektedir.

- **Maliyet tesirliligi:** Elektrokimyasal ekipmanın üretimi, işletilmesi ve kontrolünün tasarlanması basit ve ucuzdur. Birçok ekipmana göre çok az bir alan işgal etmektedir.

Elektrokimyasal tepkimeler, elektrolitten göç eden iyonik bileşiklerin anotta ve katotta yükseltgendiği veya indirgendiği heterojen iyon transferi tepkimeleridir. Anot ve katotta genellikle metal, karbon veya bir yarı iletken elektrot kullanılmaktadır [42]. Bir elektroliz hücresinin şematik olarak görünüşü Şekil 2.5 de, anot ve katotta gerçekleşen reaksiyonlar ise Tablo 2.4. de verilmiştir. Bir elektroliz işleminin gerçekleşebilmesi için; anot ve katot arasında bir bağlantı ve elektroliz çözeltisinde belli bir iletkenlik (anyon ve katyonlar) olması gerekir [43].

**Tablo 2.4.** Elektrokimyasal Yükseltgenme ve İndirgenme Reaksiyonları

<b>Anot reaksiyonları</b>	<b>Katot reaksiyonları</b>
Anot elektron verir	Katot elektron alır
Anotta yükseltgenme	Katotta indirgenme
Anodik çözünme ( $Al \rightarrow Al^{3+} + 3e^-$ )	Katodik birikme ( $Cu^{2+} + 2e^- \rightarrow Cu$ )
Anyonlar anotta toplanır	Katyonlar katotta toplanır
Anolit bölge oluşur	Katolit bölge oluşur
Anotta oksijen: $2H_2O - 4e^- \rightarrow O_2\uparrow + 4H^+$	Katotta Hidrojen: $2H_2O + 2e^- \rightarrow H_2\uparrow + 2OH^-$
Klor var ise anotta klor: $2Cl^- - 2e^- \rightarrow Cl_2\uparrow$	Gazın indirgenmesi: $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$



**Şekil 2.5.** Elektrokimyasal Hücresinin Şematik Görünüşü

Elektrokimyasal proseslerde kullanılan temel kanun Faraday Kanunu ve akım verim eşitlikleridir. Bir elektrokimyasal hücrede geçen akımın miktarı  $q$  ve akım şiddeti  $I$  ile  $t$  zamanı arasındaki ilişki;

$$q = \int (idt) \quad (1.1)$$

(1.1)reaksiyonu ile tanımlanır. Yukarıdaki eşitlikte çözünen metalin (mol olarak) miktarı Faraday kanunu ile ifade edilirse;

$$m = \frac{q}{n \cdot F} = \frac{It}{n \cdot F} \quad (1.2)$$

(1.2) şeklinde yazılır. Bu eşitlikte; n: çözünen metalin tesir değeri, F: Faraday sabiti ve 96485 C/mol değerine eşittir.

Bu proseslerde her bir elektrotta bir veya birden fazla reaksiyon eşzamanlı olarak gerçekleşir. Bu reaksiyonlar akım verimi ile ilişkili olup, elektrokimyasal sistemin verimini ölçmedeki en önemli kriterdir.

Bir elektrokimyasal sistemde; Faraday değeriindeki kayıp veya akım verimi (CE) ile ifade edilirse; akım verimi yük geçişine bağlı prosesi şekilde tanımlanır:

$$CE = \frac{q_p}{q_T} \quad (1.3)$$

Bu eşitlikte; qp: oluşan ürünün harcadığı yük ve qT: toplam harcanan yük değerini ifade etmektedir. Oluşan ürün veya harcanan reaktantın miktarı esas alınarak ölçülen ( mact ) ve teorik (m) akım verimi arasındaki ilişki;

$$CE = \frac{m_{act}}{m} \quad (1.4)$$

Şeklinde ifade edilir. (1.2) eşitliği (1.5) eşitliğinde yerine yazılırsa;

$$CE = \frac{m_{act} \cdot n \cdot F}{q} \quad (1.5)$$

Bir elektrottaki toplam akım, her reaksiyonun akımlarının toplamına eşit olacaktır. Bu durumda bir elektrottaki toplam akım Ij,

$$L = \sum l_j \quad (1.6)$$

Elektrokimyasal proseste herhangi bir anda akım verimi, akıma bağlı olarak:

$$CE = \frac{l_j}{I} \quad (1.7)$$

Şeklinde ifade edilir [44].

### 2.2.2. Elektrokimyasal Atıksu Arıtım Prosesleri

Elektrokimyasal atıksu arıtımında en çok elektrooksidasyon, elektroflotasyon ve elektrokoagülasyon prosesleri kullanılmaktadır. Bu prosesler birlikte veya ayrı olarak bir sistem içerisinde olabilir. Atıksuda bulunan kirleticiler bu prosesler ile okside, adsorbe veya reaktör yüzeyinde birikerek ayırımı sağlanmaktadır [43].

Elektrokimyasal atıksu arıtım proseslerini birbirinden ayıran en önemli özellik kirleticilerin giderilmesini sağlayan elektrokimyasal prosesin şekli ve yapısıdır. Bu durumu belirleyen kullanılan elektrotların özellikleridir. Elektrooksidasyon ve elektroflotasyon proseslerinde ortama karşı dayanıklı çözünmeyen inert metal veya metal alaşımlarından yapılmış elektrotlar (Ti/Sn, Ti/Ru, Pt/Ti/Ir, çelik gibi) kullanılmaktadır. Ortam özelliklerinin oldukça önemli olduğu ortamda elektrotlardan çıkan gazlar ( $O_2$  ve  $H_2$ ) ile organik maddelerin oksidasyonu gerçekleşmektedir. Elektroflotasyonda ise oksidasyondan ziyade çıkan gazlar yardımıyla kirleticilerin reaktör yüzeyinde toplanarak ayrılması sağlanır. Elektrokoagülasyonda ortamda çözünen metal elektrotlar (Al ve Fe gibi) kullanılmaktadır. Bu elektrotlardan çözünen metal iyonları ortam koşullarına göre metal-polimer kompleksleri oluşturarak kirleticileri adsorplayarak koagüle olmaktadır [43].

Elektrokoagülasyon prosesinde kirleticilerin kısmen de elektrooksidasyonu gerçekleşmektedir. Elektrokoagülasyonun diğer proseslerden farkı ortamdan kirletici gideriminin oksidasyon, koagülasyon ve flotasyon olayları birlikte olabilmesidir. Ancak elektrokoagülasyon prosesinde kirleticilerin oksidasyonu pek açık olmayıp, ortam şartlarına bağlıdır [44].

### 2.2.2.1. Elektrokoagülasyon Prosesi ve Uygulamaları

20. yüzyılda atıksuların arıtımında elektrokoagülasyon prosesinin kullanım düşüncesi sınırlı iken, özellikle son 20 yıl içerisinde popülaritesi ve etkinliğinin özellikle Avrupa ve Güney Amerika ülkelerinde arttığını görmekteyiz. Kağıt ve kağıt hamuru endüstrisinde, maden ve metal proses endüstrisinde kullanılmıştır.

Ayrıca gıda, yağ, boya, maden sanayi atıksuları [41], organik madde içeren sızıntı suları [42], restaurant [43], flor giderimi [41], tekstil [44], sentetik deterjan ve maden üretim işlemleri atıksularının arıtımında kullanılır.

Koagüle edilen partiküller atıksularda bulunan mikro kolloidal partikülleri ve iyonları kendilerine doğru çekerek adsorbe etmektedir. Oluşan yumaklar çökelmekte ve elektroflotasyonda oluşan gazlar yardımıyla su yüzeyine kaldırılabilir. Bu yöntem renk, COD, toplam organik karbon, askıda madde ve ağır metallerin tekstil atıksularından giderilmesinde kullanılmaktadır [45]. Diğer atıksu arıtım işlemlerine göre elektrokoagülasyon prosesinin avantaj ve dezavantajları vardır.

Elektrokoagülasyonun avantajları;

- Basit ekipmanlar ve işletme şartları gerektirir.
- Arıtım çıkışı renksiz, kokusuz ve berraktır.
- Oluşan çamur, metal oksit ve metal hidroksitlerden oluştuğu için kolaylıkla stabil hale getirilir ve susuzlaştırılabilir. Çamur miktarı azdır.
- Oluşan floklar kimyasal floklara benzemekle birlikte; daha büyük floklar olma eğiliminde ve daha az bağlı su içermektedirler. Asidik ortama dirençli ve stabil olup, filtrasyonla daha hızlı ayrılabilirler.
- Kimyasal arıtma ile karşılaştırıldığında elektrokoagülasyon çökelti suyu daha az toplam çözünmüş katılar içerir.
- Elektrokoagülasyon prosesleri en küçük kolloidal parçacıkları giderme avantajına sahiptirler. Çünkü cihazların uyguladığı elektrik alan onların daha hızlı hareket etmelerini sağlayarak koagülasyonu kolaylaştırır.
- Elektrokoagülasyonda kimyasal madde kullanımından kaçınılır ve böylece kimyasal koagülasyonda ilave edilen yüksek konsantrasyondaki kimyasal maddenin sebep olduğu ikincil kirlenme olasılığı ve aşırı kimyasalların nötralizasyonu problemi ortadan kaldırılmış olur.
- Elektroliz sırasında üretilen gaz kabarcıkları kirlenmeyi çözümler için yüzeyine taşıyabilir, daha kolay ayırılmaları sağlanır.

- Elektrokoagülasyon hücresi içindeki elektrotlar sabit konumda olup, elektriksel olarak kontrol edilir, böylece daha az bakım gerektirir.
- Elektrokoagülasyon prosesi için, kırsal alanlarda elektrik prosese ilave edilen güneş panellerinden temin edilebilir.

Elektrokoagülasyonun dezavantajları,

- Çözünen harcanan elektrotların düzenli olarak yenilenmesi gerekmektedir.
- Bazı yerlerde elektrik kullanımı pahalı olabilir.
- Katot üzerinde geçirimsiz bir film tabakası oluşumu prosenin verimliliğini düşürebilir.
- Atıksu çözeltilerinin yüksek iletkenliğe sahip olması gerekir.

Kimyasal koagülasyon, kolloidal süspansiyon içindeki yüklü partiküllerin zıt yüklü iyonlarla karşılıklı çarpışması ile nötralize edilip bir araya toplanarak çökelmelerinin sağlanması olayıdır. Bu amaçla uygun kimyasal maddeler ilave edilir. Alum gibibir kimyasal madde atıksuların arıtım için uzun sürelerden beri geniş ölçüde kullanılmıştır. Koagülasyon kolloidal partiküllerin net yüzey yükünün azaltılması sonucu elektrostatik itme kuvvetiyle sıkışması ile bir araya gelip yeterli Van der Waals kuvvetiyle tutunup birikmesiyle gerçekleştirilir. Elektrolitteki zıt yüklerin neden olduğu elektriksel çift tabakanın itme potansiyelindeki azalma, yüzey yükünün azaltılması ile sağlanır [46-51].

Kimyasal koagülasyondan farklı olarak, elektrokoagülasyon prosenin de koagülant uygun anot materyalinin elektrolitik oksidasyonu sonucu oluşur. Bu proseste yüklü iyon türleri ile anottan çözünmüş olan metal iyonları metal hidroksit floklarını oluşturur [42].

#### 2.2.2.2. Elektroflotasyon Prosesi ve Uygulamaları

Atıksu arıtımında en fazla kullanılan elektrokimyasal arıtım proseslerinden bir diğeri elektroflotasyondur. Genellikle tek başına değil de bir elektrokimyasal prosesle birlikte kullanılan bir yöntemdir. Elektroflotasyon, elektrolitik şartlara göre oluşan gaz kabarcıkları (H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> gibi) tarafından kolloidal partiküllerin adsorplanarak su yüzeyine doğru hareket ederek toplanması işlemidir. Bu gazların oluşum reaksiyonları (1) ve (2) de verilmiştir [52].



Oldukça yüksek dispersiyona sahip bu kabarcıklar 5-100 µm çapındadır. Elektrot yüzey alanına bağlı olarak kabarcıkların sayısı 10-20 milyon/cm<sup>2</sup> arasında değişmektedir. Bu işlemin

yapıldığı reaktörlere elektroflotatör adı verilmektedir. Elektroflotatör yüzeyinde toplanan yumaklar köpük sıyrıcılar yardımıyla sıyrılarak filtrasyona gönderilir [52].

Elektroflotasyonun verimi; oluşan kabarcıkların hacmine ve sayısına, oluşan kabarcıkların boyutu ise; akım yoğunluğu, elektrot cinsi ve şekline bağlıdır. Akım yoğunluğu, elektrot materyali, pH ve sıcaklık değiştirilerek kabarcıkların sayısı ve büyüklüğü kontrol edilebilmekte olup, bu sayede elektroflotasyonun hızı arttırılabilmektedir [45].

Su içindeki katı süspansiyonların, yağların, emülsiyonların ve kolloidal partiküllerin ve diğer organik maddelerin ayrılması deşarj edilecek atık suyun BOD değerinin düşürülmesinde başlıca işlemdir. Flokülasyon ajanlarının ( $Fe^{3+}$  gibi) eklenmesi veya hava flotasyonu genellikle çökelmeden daha hızlı bir ayırım sağlar. Flotasyon tekniği hidrofobik yüzeylerin oluşması veya varlığına bağlıdır ki, bunun için yüzey aktif maddeleri kullanılır. Bu maddeler, hava kabarcıkları ile temasta olan kirletici partiküllerin biraraya toplanmasına yardımcı olur. Partikül yoğunluğundaki değişim sonucu, disperse partiküller flokülatör yüzeyine yüzdürülerek köpük tabakasında kalması sağlanır. Bu tabaka daha sonra mekanik olarak sıyrılır. Flotasyondaki problem 20  $\mu m$  'den daha küçük boyuttaki partiküllerin gideriminde ortaya çıkar. Bu problem, çözünmüş hava flotasyonu (DAF) veya elektroflotasyon ile oluşturulan ince gaz kabarcıkları ile çözümlenebilir. Elektroflotasyon, çözeltilerden çözünmüş hava flotasyonuna nazaran daha küçük boyuttaki partiküllerin (8-15  $\mu m$ ) ayrılmasını sağlamış olmaktadır.

Elektroflotöre uygulanan akım yoğunluğu değiştirilerek farklı boyutlarda gaz kabarcıkları oluşturulabilir, böylece daha büyük bir yüzey alanı oluşur ki, gaz kabarcıkların çarpışması ve bir araya gelme olasılığı artırılmış olunur. Bu durumda ayırma verimi ve etkinliği artırılır. Elektroflotasyon hücrelerinde tercih edilen akım yoğunlukları genellikle 0.1-10 mA/cm<sup>2</sup> dir. Hücre potansiyeli 10 V değerine çıktığında enerji tüketimi 0.2-0.4 kWh/m<sup>3</sup> aralığındadır. Elektroflotasyon hücrelerinin kapasiteleri genelde yüksek olmayıp, maksimum arıtma oranı 150 m<sup>3</sup>/h civarındadır [39].

Elektroflotasyon; yağ-su emülsiyonları, metal kaplama atölyeleri, mandıra, konserve, yemek üretim, çiftlik, kâğıt, restaurant, tekstil, boya, kimya, deri endüstri atıksularının arıtımında kullanılmaktadır. Gemi sintine ve güverte atıksularının arıtımında da kullanılmaktadır. Ayrıca; maden cevherleri ve atıklarından değerli metallerin eldesi ve geri kazanımı; deniz suyundan magnezyum eldesi, radyoaktif ve toksik metal atıksuların arıtımı, biyoteknolojide bir kısım maddelerin eldesi ve ayrılma işlemlerinde de kullanılmaktadır [53,54].

### 2.2.2.3. Elektrooksidasyon Prosesi ve Uygulamaları

Elektrooksidasyon yönteminde, iletken bir çözelti ortamına iki elektrot yerleştirerek doğru akım kaynağı sayesinde elektrik akımı yaratmak ve geçen akım sayesinde elektrokimyasal reaksiyonları başlatmak ve hızlandırmak bu işlemin temel prensibidir. Etkili giderim ve çamur oluşumunun çok az olması nedeniyle tercih edilen elektrokimyasal yöntemler arasında yer almaktadır. Arıtımın yanı sıra metal geri kazanımında da bu yöntem son yıllarda kullanılmaya başlamıştır [55].

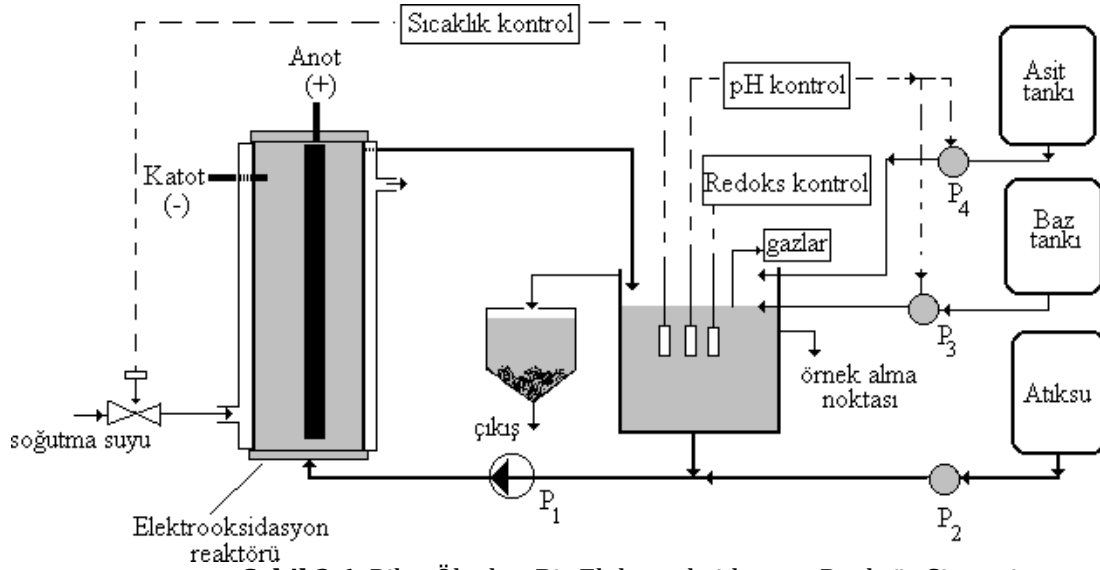
Elektrooksidasyon yönteminde ana prensip çözünmeyen elektrotlar (Ti, Ru, Pt, paslanmaz çelik vb.) kullanılarak anot bölgesinde çıkan gazlar ( $O_2$  ve  $Cl_2$ ) ve oluşan  $H_2O_2$  ve  $OH^-$  ile istenilen oksidasyonun sağlanmasıdır. Bu işlem ile birlikte birçok madde oksidasyona uğratılabilirken biyolojik olarak parçalanabilirliği zor olan bileşikler, biyolojik olarak kolay parçalanabilir organik bileşiklere veya  $CO_2$  ve  $H_2O$  gibi son ürünlere dönüştürülür [54]. Dolayısıyla çözünmeyen metal/metal oksit elektrotlar (Pt/Ti, Ti/Ru/Ir, Ni/Ti/Ga, çelik gibi) ile ortamdaki kirleticilerin okside olduğu proses elektrooksidasyon prosesi olarak bilinir. Elektrooksidasyonda en iyi sonuçların metal oksit anotlarla alındığı belirtilmiştir [55].

Bazı anot elektrotların renk ve Kimyasal Oksijen İhtiyacı (KOİ) giderim verimleri Tablo 2.5. de verilmiştir.

**Tablo 2.5.** Bazı Anot Elektrotlarının Renk ve KOİ Giderim Sonuçları [56-57]

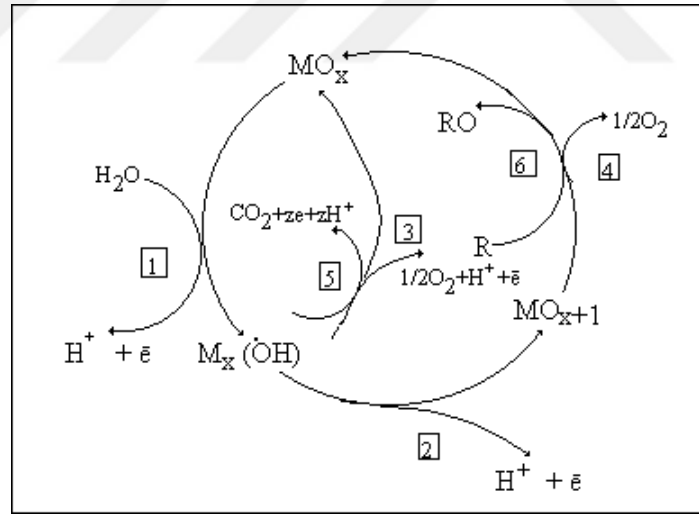
Anot materyali	Renk Giderimi (%)	COD Giderimi (%)
Ti/Pt	40	9
Ti/RuO <sub>2</sub> -TiO <sub>2</sub>	42	26
Ti/SnO <sub>2</sub> -Sb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	45	23
Ti/Pt-Ir	50	39
Ti/MnO <sub>2</sub> -RuO <sub>2</sub>	46	10
TiRhO <sub>x</sub> -TiO <sub>2</sub>	47	29
TiPdO-Co <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	48	25
Ti/RuO <sub>2</sub>	99	90
Ti/Pt	99	99
Ti/Pt/Ir	99	82

Elektrotların bulunduğu ortam çok önemli olup, iki tip oksidasyon sözkonusudur. Bunlar anodik (direkt) ve dolaylı (indirekt) oksidasyondur. Pilot ölçekte bir elektrooksidasyon reaktör sistemi Şekil 2.6. da gösterilmiştir [57].



**Şekil 2.6.** Pilot Ölçekte Bir Elektrooksidasyon Reaktör Sistemi

Anodik oksidasyon ile atıksulardaki istenmeyen organik bileşiklerin elektrooksidasyonu, elektrokimyasal dönüşüm ve ayrıştırma şeklinde gerçekleşmektedir. Bu durum Şekil 2.7. de gösterilmiştir [57].



**Şekil 2.7.** Elektrokimyasal Dönüşüm veya Parçalanma Şematik Görünümü

Elektrokimyasal dönüşüm, toksik biyolojik olarak parçalanmaya kirleticilerin biyolojik olarak parçalanabilir organik bileşiklere dönüştürülmesi olup, elektrooksidasyondan sonra biyolojik arıtım gerekir. Elektrokimyasal ayrıştırmada ise CO<sub>2</sub> ve H<sub>2</sub>O açığa çıkmaktadır. Bu durum Şekil 2.7 'den de görülmektedir. Bu konu ile ilgili yapılan bir çalışmada; 1,4 benzokinon içeren çözeltilerden Ti/RuO<sub>2</sub> anot elektrotlar kullanıldığında toksik olmayan ve biyolojik

ayrışabilirliği kolay alifatik organik bileşikler oluşurken, Ti/SnO<sub>2</sub> anot elektrotlar kullanıldığında ise CO<sub>2</sub> ve H<sub>2</sub>O açığa çıktığı ifade edilmiştir [58].

Anodik oksidasyon ile organik maddelerin tam oksidasyonu bazen gerçekleşmemektedir. Kirleticilerin anodik oksidasyonu doğrudan elektrotlarda yükseltgenme reaksiyonları ile gerçekleşmektedir. Yüksek molekül ağırlıklı organiklerin tam oksidasyonu için daha fazla elektron ve enerji gerekeceği için prosesin yatırım ve işletme maliyeti artacaktır.

Metal kaplama işlemlerinde krom çok yaygın bir şekilde kullanılmakta olup, kromun çok düşük konsantrasyonlarda bile elektrooksidasyonu sonucu anotta aşağıdaki şekilde gerçekleşmektedir.



Anodik oksidasyona bir diğer örnek olarak fenolün sulu ortamdaki oksidasyonu verilebilir [38].

İndirekt (dolaylı) oksidasyonda ise; ortamda bazı kimyasal maddeler bulunması veya dışarıdan sisteme ilave edilmesi halinde elektrokimyasal reaksiyonlar neticesinde oksitleyici ajanlar şeklinde (Cl<sub>2</sub>, ClO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, O<sup>·</sup>, OH<sup>·</sup>, ClOH<sup>·</sup>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> gibi) türler oluşmaktadır. O<sup>·</sup>, OH<sup>·</sup> ve ClOH<sup>·</sup> yüksek oksitleyici özelliğe sahip radikaller olup, çok kısa ömürlüdürler.

Bu radikaller tekrar Cl<sub>2</sub>, ClO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> ve O<sub>2</sub> oksitleyici türlere dönüşürler veya doğrudan (direkt) organik türleri okside ederler. Radikallerin oldukça uzun ömürlü ve oksidasyon prosesindeki elektrotlardan belli bir uzaklıktaki alan içine difüzlendiği durumda (direkt veya doğrudan oksidasyon) radikallerin parçalanmasından birincil (Cl<sub>2</sub> ve O<sub>2</sub>) ve ikincil (ClO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, ve H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) oksitleyici bileşikler oluşmaktadır [59-61].

Atıksu içerisindeki organik bileşiklerin doğrudan (direkt) elektrooksidasyon hızı anodun katalitik aktivitesi, uygulanan akım yoğunluğu ve anodun aktif noktalarındaki organik bileşiklerin difüzyon hızına bağlıdır. İndirekt veya anodik oksidasyon hızı ise sıcaklık, pH ve atıksu çözeltisi içindeki ikincil oksidantların difüzyon hızına bağlıdır. Atıksu içindeki kirleticilerin elektrooksidasyonu anodik elektrokimyasal prosese dayandırılmaktadır. Çünkü ikincil oksitleyici bileşikler atıksu içindeki organik bileşiklerin CO<sub>2</sub> ve H<sub>2</sub>O ya tamamen parçalanmasını sağlayamayabilirler.

Bir çok araştırmacı asidik çözeltilerde; O<sub>2</sub>, serbest klor ve belki bir miktar O<sub>3</sub>, ve doğrudan oksidasyon prosesindeki klor oksitler gibi ikincil oksitleyiciler ortaya çıkmaktadır [53].

Elektrooksidasyon prosesi işletme parametreleri ile arıtım verimi belirli faktörlerin kontrolü ile optimize edilebilmektedir. Bu faktörler; [61-63]

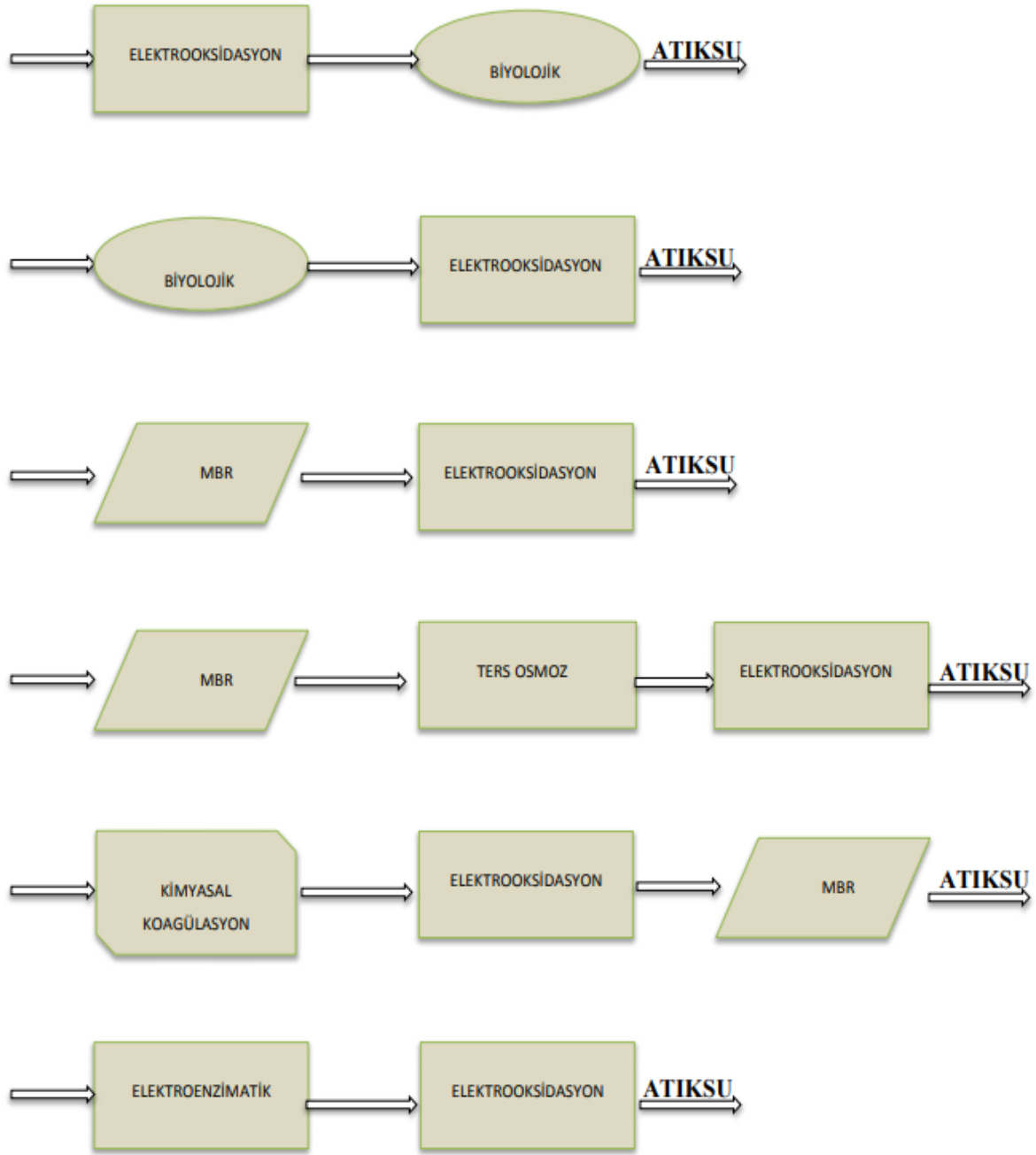
- *Elektrot Malzemesi*; elektrooksidasyon prosesinin verimini etkileyen en önemli parametrelerden biridir. Elektrooksidasyon prosesinde yaygın olarak titanium, platin ve

alüminyum oksit gibi elektrotlar kullanılmaktadır. Malzeme seçimi prosesin verimliliğini etkilediği için büyük önem taşır. Elektrot materyalinin sahip olması gereken özellikler; yüksek fiziksel ve kimyasal kararlılığı olmalıdır. Korozyona karşı dirençli olmalıdır. Yüksek elektriksel iletkenliği olmalı, katalitik aktivitesi ve seçiciliği olmalıdır. Pahalı olmayan ve dayanıklı olanları tercih edilmelidir.

- *Akım yoğunluğu*; en çok dikkat edilmesi gereken parametrelerden biridir. Prosesin verimi ile birlikte işletme maliyeti üzerine etkisi vardır. Bununla birlikte reaktöre uygulanan akım arttıkça arıtım süresi azalmaktadır.
- *Arıtma süresi*; diğer arıtma proseslerinde olduğu gibi elektrooksidasyon prosesinde de arıtma süresi reaktör işletmesinde önemli parametredir. Çünkü arıtma süresi olması gerekenden az olursa istenilen verimde arıtma gerçekleştirilemeyecektir. Eğer bu süre uzun olursa da maliyet üzerine istenilmeyen etkileri olacaktır.
- *pH*; proseste hidroksil radikallerinin oluşumunda önemli etkisi vardır. Giderim verimi başlangıç pH'ıyla birlikte son pH'lara da bağlıdır.
- *Elektriksel iletkenlik*; tüm bu parametreler dışında reaktördeki kimyasal reaksiyonların istenildiği gibi gerçekleşmesi için ve elektriksel iletkenlik gibi parametrelerin kontrol altında tutulması gerekmektedir.
- *Sıcaklık*; doğrudan oksidasyon proseslerinin genellikle sıcaklıktan etkilenmediği kabul edilir. Diğer elektrokimyasal arıtım türlerine göre daha düşük bir sıcaklıkta çalışabilirler. Ama genel olarak ortam sıcaklığında çalışmaları tercih edilmektedir.

Genel olarak, elektrokimyasal oksidasyon çalışmalarının amacı, biyolojik olarak parçalanamayan ve veya toksik organik kirleticileri ve atıksuların içerdiği amonyak azotlarının giderilmesidir. Ayrıca atık sulardan nitrit ve nitrat giderilmesi ile farmasötik ve endokrin bozucu kimyasallar gibi mikro-kirleticilerin uzaklaştırılması için de yakın zamanda çeşitli denemeler yapılmıştır. Elektrokimyasal oksidasyon, ozonlama ve fenton oksidasyon gibi diğer ileri oksidasyon işlemlerinin aksine, dirençli atıkların arıtılmasında organik madde birikimine yol açmadığı için önerilen bir prosestir. Yüksek enerji tüketimi, genellikle tam ölçekli bir ticari uygulamayı sınırlamaktadır. Arıtma maliyetlerini azaltmak için 2 yol belirlenmiştir; bunlardan ilki bu yöntemin ön arıtma olarak diğer yöntemlerle kullanılmasıdır. Diğeri ise elektrooksidasyon için gerekli enerjinin yenilenebilir enerji kaynaklarından sağlanmasıdır.

Atıksu ilk önce elektrokimyasal oksidasyona ardından biyolojik prosese tabi tutulduğunda organik kirletici maddelerin biyolojik olarak bozunabilirliği arttırılır. Bunun tam aksine önce biyolojik prosese ardından elektrokimyasal oksidasyona tabi tutulur ise arıtmaya karşı dirençli olan organik maddelerin tamamı mineralize edilir [64]. Şekil 2.8. de elektrooksidasyon yönteminin diğer arıtma teknikleri ile birlikte kullanımı verilmiştir [65].

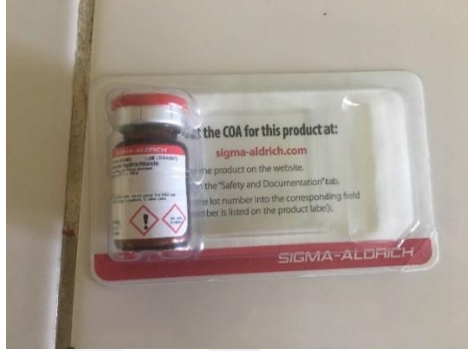


**Şekil 2.8.** Elektrokisdayon ile Diğer Arıtım Tekniklerinin Kullanımı

### 3. MATERYAL ve YÖNTEM

#### 3.1. Materyal

Çalışmada acetaminophen ve metformin farmasötikleri kullanılmıştır (Şekil 3.1).



Şekil 3.1. Metformin (Sigma Aldrich)



Acetaminophen (Sigma Aldrich)

#### 3.1.1. Deneysel Çalışmada Kullanılan Cihazlar ve Kimyasal Maddeler

Çalışmada kullanılan cihazlar ve kimyasallar Tablo 3.1. de verilmiştir.

Tablo 3.1. Kullanılan Cihazlar ve Kimyasallar

ADI	MARKASI	BULUNDUĞU YER
Hassas terazi	Uhaus Corp Adventure	Mersin Üniversitesi
Manyetik karıştırıcı	Edmünd Bühler GmbH	Mersin Üniversitesi
pH metre	Probecond HQ40D	Mersin Üniversitesi
Etüv	Heraeus Marka T-12 Model	Mersin Üniversitesi
Isıtmalı çalkalayıcı	Ika-werke RT5 Power	Mersin Üniversitesi
Santrifüj cihazı	Hettich Micro 22 R	Mersin Üniversitesi
Spektrofotometre	Tetra UV-Vis spektrofotometre T 90	Mersin Üniversitesi
NaOH	Merck	Mersin Üniversitesi
Metformin	Sigma Aldrich	Mersin Üniversitesi
Acetaminophen	Sigma Aldrich	Mersin Üniversitesi
DC Güç Cihazı	AA Tech Regulated DC Power Supply ADC-3303 D	Mersin Üniversitesi

#### 3.2. Metot

Acetaminophen ve metformin deneyleri için ayrı ayrı deney tasarımı yapılmıştır. Deney tasarımı Tablo 3.2. de verilmiştir.

Tablo 3.2. Deney Tasarımı

No	DENEY TASARIMI			
	Konsantrasyon (mg/L)	Akım Yoğunluğu (A/m <sup>2</sup> )	NaCl (g)	Reaksiyon Süresi (saat)
1.1	Araştırılan Parametre (25 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
1.2	Araştırılan Parametre (25 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
2.1	Araştırılan Parametre (50 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
2.2	Araştırılan Parametre (50 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
3.1	Araştırılan Parametre (100 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
3.2	Araştırılan Parametre (100 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
4.1	Araştırılan Parametre (150 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
4.2	Araştırılan Parametre (150 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
5.1	Araştırılan Parametre (200 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
5.2	Araştırılan Parametre (200 mg/L)	Sabit (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
6.1	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (50 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
6.2	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (50 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
7.1	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (75 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
7.2	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (75 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
8.1	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
8.2	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (100 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
9.1	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (150 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
9.2	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (150 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
10.1	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (200 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
10.2	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (200 A/m <sup>2</sup> )	Sabit (2,34 g)	Sabit (3 saat)
11.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (0,58 g)	Sabit (3 saat)
11.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (0,58 g)	Sabit (3 saat)
12.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (1,17 g)	Sabit (3 saat)
12.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (1,17 g)	Sabit (3 saat)
13.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (2,34 g)	Sabit (3 saat)
13.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (2,34 g)	Sabit (3 saat)
14.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (4,68 g)	Sabit (3 saat)
14.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (4,68 g)	Sabit (3 saat)
15.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (9,36 g)	Sabit (3 saat)
15.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (9,36 g)	Sabit (3 saat)

16.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (1 saat)
16.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (1 saat)
17.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (2 saat)
17.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (2 saat)
18.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (3 saat)
18.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (3 saat)
19.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (4 saat)
19.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (4 saat)
20.1	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (5 saat)
20.2	Optimum Değer	Optimum Değer	Optimum Değer	Araştırılan Parametre (5 saat)

### 3.2.1. Stok Çözeltisinin Hazırlanması

Acetaminophen ve metformin içeren elektrooksidasyon ile giderimi sağlanacak sentetik atıksulardan belirli konsantrasyonlarda stok çözeltiler hazırlanmıştır. Hazırlanan çözeltiler meydana gelebilecek olası bozunmaları önlemek için +4 °C'de muhafaza edilmiştir.

### 3.2.2. Standart Eğrisinin Çıkarılması

Bu çalışmada kullanılan acetaminophen ve metformin farmasötiklerinin Tetra UV-Vis T9 marka spektrofotometre cihazından 200–800 nm dalga boyu aralığında spektrumları alınmıştır. Kullanılan etken maddelerinin maksimum absorbands gösterdiği dalga boyunda acetaminophen ( $\lambda_{\max} = 244$  nm), metformin ( $\lambda_{\max} = 570$  nm), belirlenen dalga boyunda absorbandsları okunarak kalibrasyon eğrileri çıkarılmış ve okumalar yapılmıştır.

### 3.2.3. Acetaminophen Elektrooksidasyon Deneyleri

Kirletici olarak acetaminophen kullanılmıştır. Acetaminophen distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. Ayrıca çözelti içine elektriksel iletkenliği sağlamak amacıyla NaCl eklenmiştir. Acetaminophen gideriminde elektrooksidasyon veriminin maksimum olarak saptanması için farklı derişim (25 mg-50 mg-100 mg-150 mg-200 mg), farklı akım yoğunluğu (50 A/m<sup>2</sup> - 75A/m<sup>2</sup> - 100 A/m<sup>2</sup> -150 A/m<sup>2</sup> -200 A/m<sup>2</sup>), farklı NaCl konsantrasyonu (sırasıyla 0,58-1,17-2,34-4,68-9,36 g) ve farklı reaksiyon süreleri (sırasıyla 1-2-3-4-5 saat) uygulanarak bu parametrelerin oksidasyon giderim verimine etkileri araştırılmış ve en uygun değerler belirlenmiştir.

#### 3.2.3.1. Acetaminophen Elektrooksidasyon Deneylerine Konsantrasyonun Etkisi

Çalışmada en uygun konsantrasyon değerini bulmak için farklı konsantrasyon değerleri ile çalışma yapılmıştır. Denenen konsantrasyon değerleri 25 mg/L -50 mg/L-100 mg/L-150 mg/L-200 mg/L acetaminophen. 2000 mL behere en uygun konsantrasyon değerini bulmak için 2,34 g NaCl ve acetaminophen eklendikten sonra distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. Akım 100 A/m<sup>2</sup> olarak sabit tutulmuştur. Süre 3 saat olarak belirlenerek çalışmalar aynı hazırlanan 2 düzenekte birlikte yapılmıştır. Elektrooksidasyon sonunda çözeltiler santrifüjlenerek (6000 rpm, 5 dk), duru fazın spektrofotometrede okunmasıyla konsantrasyonları hesaplanmıştır.

### **3.2.3.2. Acetaminophen Elektrokksidasyon DeneYlerine Akım Yoğunluğunun Etkisi**

Çalışmada en uygun akım değerini bulmak için farklı akım değerleri ile çalışma yapılmıştır. Denenen akım yoğunluğu değerleri ( $50 \text{ A/m}^2$  -  $75 \text{ A/m}^2$  -  $100 \text{ A/m}^2$  -  $150 \text{ A/m}^2$  -  $200 \text{ A/m}^2$ ). 2000 mL behere 2,34 g NaCl ve en iyi giderimi veren 100 mg/L acetaminophen eklendikten sonra distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. Süre 3 saat olarak belirlenerek çalışmalar aynı hazırlanan 2 düzenekte birlikte yapılmıştır. Elektrokksidasyon sonunda çözeltiler santrifüjlenerek (6000 rpm, 5 dk), duru fazın spektrofotometrede okunmasıyla konsantrasyonları hesaplanmıştır.

### **3.2.3.3. Acetaminophen Elektrokksidasyon DeneYlerine NaCl Etkisi**

Çalışmada en uygun NaCl değerini bulmak için farklı konsantrasyon değerleri ile çalışma yapılmıştır. Denenen NaCl miktarları (0,58g- 1,17g- 2,34g-4,68g-9,36g ) ve 100 mg/L acetaminophen 2000 mL behere eklendikten sonra distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. Süre 3 saat olarak belirlenerek çalışmalar aynı hazırlanan 2 düzenekte birlikte yapılmıştır. Akım yoğunluğu en iyi giderimi veren  $200 \text{ A/m}^2$  şeklinde seçilmiştir. Elektrokksidasyon sonunda çözeltiler santrifüjlenerek (6000 rpm, 5 dk), duru fazın spektrofotometrede okunmasıyla konsantrasyonları hesaplanmıştır.

### **3.2.3.4. Acetaminophen Elektrokksidasyon DeneYlerine Sürenin Etkisi**

Çalışmada en uygun süreyi bulabilmek için farklı sürelerde çalışma yapılmıştır. Denenen süreler 1 saat-2 saat-3 saat- 4 saat ve 5 saat şeklinde olmuştur. 2000 mL behere en uygun süreyi bulmak için daha önce yapılan konsantrasyon çalışmasından elde edilen sonuçlara göre en iyi giderimi veren 100 mg/L acetaminophen eklendikten sonra distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. NaCl miktarı en iyi verimi veren 2,34 gram kullanılmıştır. DeneYler hazırlanan 2 düzenekte birlikte yapılmıştır. Akım yoğunluğu en iyi giderimi veren  $200 \text{ A/m}^2$  şeklinde seçilmiştir. Elektrokksidasyon sonunda çözeltiler santrifüjlenerek (6000 rpm, 5 dk), duru fazın spektrofotometrede okunmasıyla konsantrasyonları hesaplanmıştır.

### **3.2.4. Metformin Elektrokksidasyon DeneYleri**

Kirletici olarak metformin kullanılmıştır. Metformin distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. Ayrıca çözelti içine elektriksel iletkenliği sağlamak amacıyla NaCl eklenmiştir. Metformin gideriminde elektrokksidasyon veriminin maksimum olarak saptanması için farklı

derişim (25mg-50mg-100mg-150 mg-200mg), farklı akım yoğunluğu (50 A/m<sup>2</sup> - 75A/m<sup>2</sup> - 100 A/m<sup>2</sup> -150 A/m<sup>2</sup> -200 A/m<sup>2</sup>), farklı NaCl konsantrasyonu (0,58g- 1,17g- 2,34g-4,68g-9,36g ) ve farklı reaksiyon süreleri (1 saat-2saat-3 saat-4 saat-5 saat) uygulanarak bu parametrelerin oksidasyon giderim verimine etkileri araştırılmış ve optimum değerler belirlenmiştir.

#### **3.2.4.1. Metformin Elektrokoksidasyon Deneilerine Konsantrasyonun Etkisi**

Çalışmada en uygun konsantrasyon değerini bulmak için farklı konsantrasyon değerleri ile çalışma yapılmıştır. Denenen konsantrasyon değerleri 25 mg-50 mg-100 mg-150 mg-200 mg metformin. 2000 mL behere en uygun konsantrasyon değerini bulmak için 2,34 g NaCl ve metformin eklendikten sonra distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. Akım 100 A/m<sup>2</sup> olarak sabit tutulmuştur. Süre 3 saat olarak belirlenerek çalışmalar aynı hazırlanan 2 düzenekte birlikte yapılmıştır. Elektrokoksidasyon sonunda çözeltiler santrifüjlenerek (6000 rpm, 5 dk), duru fazın spektrofotometrede okunmasıyla konsantrasyonları hesaplanmıştır.

#### **3.2.4.2. Metformin Elektrokoksidasyon Deneilerine Akım Yoğunluğunun Etkisi**

Çalışmada en uygun akım değerini bulmak için farklı akım değerleri ile çalışma yapılmıştır. Denenen akım yoğunluğu değerleri (50 A/m<sup>2</sup> - 75A/m<sup>2</sup> - 100 A/m<sup>2</sup> -150 A/m<sup>2</sup> -200 A/m<sup>2</sup>). 2000 mL behere en uygun akım değerini bulmak için 2,34 g NaCl eklenip konsantrasyon çalışmasında en iyi giderimi veren 100 mg/L metformin eklendikten sonra distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. Süre 3 saat olarak belirlenerek çalışmalar eş hazırlanan 2 düzenekte birlikte yapılmıştır. Elektrokoksidasyon sonunda çözeltiler santrifüjlenerek (6000 rpm, 5 dk), duru fazın spektrofotometrede okunmasıyla konsantrasyonları hesaplanmıştır.

#### **3.2.4.3. Metformin Elektrokoksidasyon Deneilerine NaCl Etkisi**

Çalışmada en uygun NaCl değerini bulmak için farklı konsantrasyon değerleri ile çalışma yapılmıştır. Denenen NaCl miktarları(0,58g- 1,17g- 2,34g-4,68g-9,36g ). 2000 mL behere en uygun NaCl miktarını bulmak için daha önce yapılan konsantrasyon çalışmasından elde edilen sonuçlara göre konsantrasyon çalışmasında en iyi giderimi veren 100 mg/L metformin eklendikten sonra distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. Süre 3 saat olarak belirlenerek çalışmalar aynı hazırlanan 2 düzenekte birlikte yapılmıştır. Akım yoğunluğu en iyi giderimi veren 200A/m<sup>2</sup> şeklinde seçilmiştir. Elektrokoksidasyon sonunda çözeltiler santrifüjlenerek (6000 rpm, 5 dk), duru fazın spektrofotometrede okunmasıyla konsantrasyonları hesaplanmıştır.

#### **3.2.4.4. Metformin Elektrokksidasyon Denevlerine Sürenin Etkisi**

Çalışmada en uygun süreyi bulabilmek için farklı sürelerde çalışma yapılmıştır. Denenen süreler 1 saat-2 saat-3 saat- 4 saat ve 5 saat şeklinde olmuştur. 2000 mL behere en uygun süreyi bulmak için daha önce yapılan konsantrasyon çalışmasından elde edilen sonuçlara göre en iyi giderimi veren 100 mg/L metformin eklendikten sonra distile su ile 1 litreye tamamlanmıştır. NaCl miktarı en iyi verimi veren 2,34 gram olarak belirlenerek çalışmalar eş hazırlanan 2 düzenekte birlikte yapılmıştır. Akım yoğunluğu en iyi giderimi veren 200 A/m<sup>2</sup> şeklinde seçilmiştir. Elektrokksidasyon sonunda çözeltiler santrifüjlenerek (6000 rpm, 5 dk), duru fazın spektrofotometrede okunmasıyla konsantrasyonları hesaplanmıştır.



#### 4. BULGULAR ve TARTIŞMA

Hazırlanan deney tasarımı ile deney sonuçlarının yorumlanması daha kolay yapılmıştır. Değişkenlerle optimizasyon çalışması yapılan deneylerde, giriş ve çıkış pH, giriş ve çıkış elektriksel iletkenliğine, kirleticinin giriş ve çıkış konsantrasyonuna, anot ve katot kaybına, giderim yüzdesine ve harcanan güce bakılmıştır.

##### 4.1. Acetaminophen Elektrokksidasyon Deneyleri

Elektrokksidasyon deneylerinde kirleticinin başlangıç konsantrasyonu, akım yoğunluğu, NaCl miktarı ve süre optimize edilmiştir. Deneylerde giriş pH, çıkış pHları, giriş ve çıkış iletkenlik değerleri, kirleticinin giriş ve çıkış konsantrasyonu, anot ve katot plakalardaki kayıplar, deney sürecinde harcanan güç ve maliyet hesaplanmıştır.

##### 4.1.1. Acetaminophen Elektrokksidasyon Deneylerine Konsantrasyonun Etkisi

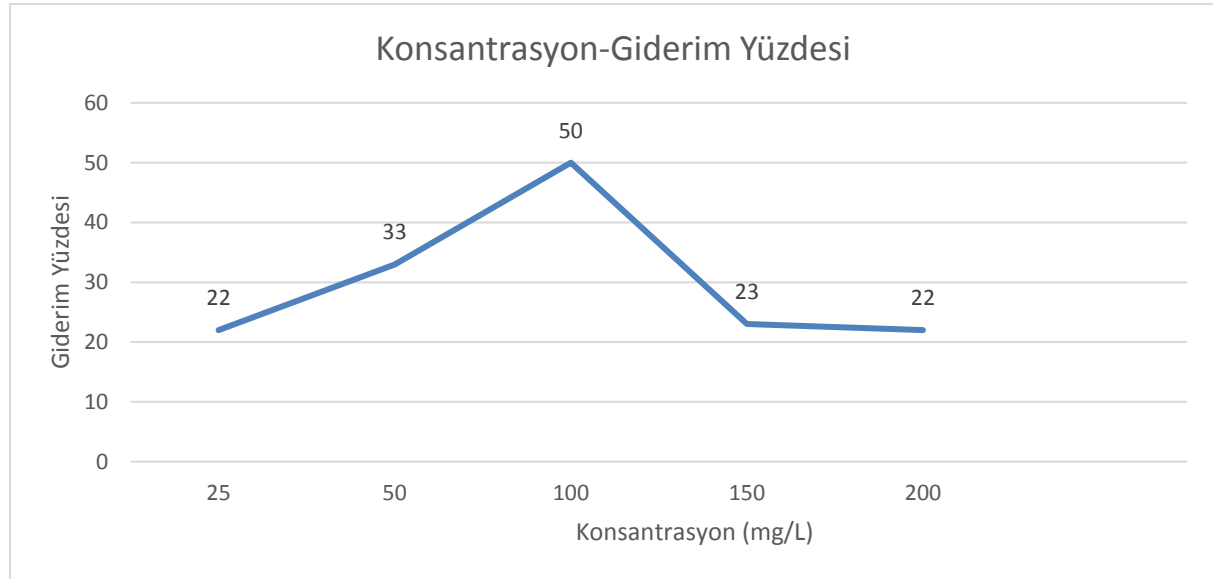
Paralel çalışmalardan elde edilen sonuçlara göre ortalama değerler alınmıştır. Yapılan çalışmada acetaminophen miktarı değişken olarak seçilmiştir. NaCl miktarı 2,34g, akım yoğunluğu 100 A/m<sup>2</sup>, süre 3 saat olarak sabitlenmiştir. Tablo 4.1'de acetaminophen giriş ve çıkış konsantrasyonları verilmiştir. Tablo 4.2.'de acetaminophen elektrokksidasyonuna konsantrasyon etkisi deney sonuçları verilmiştir. Şekil 4.1 de giderim verimine konsantrasyonun etkisi grafiği çizilmiştir. Grafikte görüleceği üzere konsantrasyon arttığı zaman giderim verimi artmaktadır. Ancak belli bir yer noktada (100 mg/L acetaminophen) doygunluğa ulaştıktan sonra giderim verimi tekrar azalmaktadır.

**Tablo. 4.1.** Acetaminophen Giriş ve Çıkış mg/L

Giriş mg/L	Çıkış mg/L
25 mg/L	19,5
50 mg/L	33,5
100 mg/L	50
150 mg/L	115,5
200 mg/L	156

**Tablo 4.2.** Acetaminophen Elektrooksidasyonuna Konsantrasyonun Etkisi

Giriş mg/L	Giriş pH	Çıkış pH	Giriş İletkenlik (mS/cm)	Çıkış İletkenlik (mS/cm)	Anot Kaybı (g)	Katot Kaybı (g)	Harcanan Güç (kW)
25 mg/L	6,62	11,51	4,77	5	2,29	0,17	0,00528
50 mg/L	5,87	11,77	4,75	5,34	2,42	0,26	0,00692
100 mg/L	6,71	11,66	4,72	4,87	3,45	0,005	0,00709
150 mg/L	6,4	11,71	4,70	4,94	5,03	0,28	0,00742
200 mg/L	6,07	10,8	4,72	4,98	5,05	0,1	0,0076

**Şekil 4.1.** Giderim Verimine Konsantrasyonun Etkisi

Maliyet Analizi, 2019 verilerine göre 1 kW/saat 0,53 TL dir. 3 saat çalıştırılan sistem olarak hesaplanmıştır. Maliyet analizi Tablo 4.3. te verilmiştir.

**Tablo 4.3.** Maliyet Analizi

Giriş mg/L	Harcanan Güç (kW)	Elektrik Maliyeti (kuruş)
25 mg/L	0,00528	0,083952
50 mg/L	0,00692	1,10028
100 mg/L	0,00709	1,12731
150 mg/L	0,00742	1,17978
200 mg/L	0,0076	1,2084

#### 4.1.2. Acetaminophen Elektrooksidasyon Deneylerine Akım Yoğunluğunun Etkisi

Paralel çalışmalardan elde edilen sonuçlara göre ortalama değerler alınmıştır. Yapılan çalışmada akım yoğunluğu değişken olarak seçilmiştir. NaCl miktarı 2,34, acetaminophen miktarı 100 mg/L, süre 3 saat olarak sabitlenmiştir. Tablo 4.4. de acetaminophen giriş ve çıkış

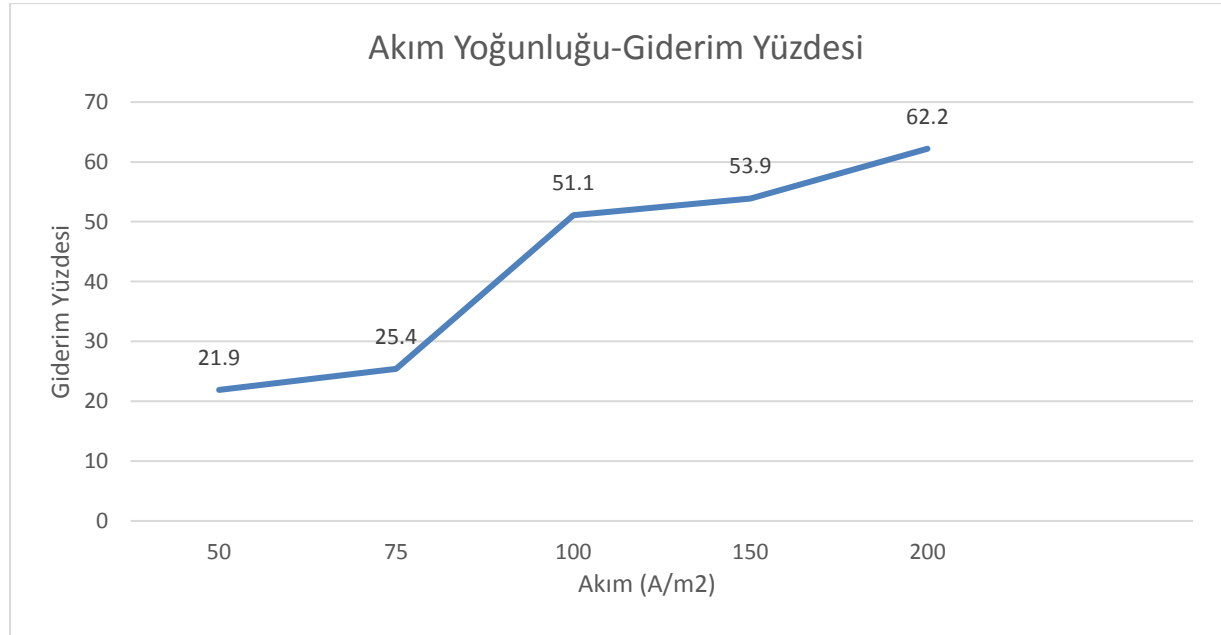
konsantrasyonları verilmiştir. Tablo 4,5'te acetaminophen elektrooksidasyonuna akım yoğunluğunun etkisi deney sonuçları verilmiştir. Şekil 4.2 de giderim verimine akım yoğunluğunun etkisi grafiği çizilmiştir. Grafikten de görüleceği üzere akım arttığı zaman giderim verimi artmaktadır. Ancak akım ile birlikte anot kaybının ve maliyetinde arttığı görülmektedir.

**Tablo. 4.4.** Acetaminophen Giriş ve Çıkış mg/L

Giriş mg/L	Çıkış mg/L
25 mg/L	78,1
50 mg/L	74,6
100 mg/L	48,9
150 mg/L	46,1
200 mg/L	37,8

**Tablo 4.5.** Acetaminophen Elektrooksidasyonuna Akım Yoğunluğunun Etkisi

Akım Yoğunluğu A/m <sup>2</sup>	Giriş pH	Çıkış pH	Giriş İletkenlik (mS/cm)	Çıkış İletkenlik (mS/cm)	Anot Kaybı (g)	Katot Kaybı (g)	Harcanan Güç
50	6,61	11,44	4,77	4,82	1,42	0,06	0,00428
75	6,59	10,59	4,73	4,83	1,65	0,08	0,00592
100	6,81	11,69	4,76	4,78	2,02	0,10	0,00664
150	6,82	11,7	4,75	5,01	4,03	0,06	0,0068
200	6,44	10,9	4,82	5,21	4,52	0,03	0,0075



**Şekil 4.2.** Giderim Verimine Akım Yoğunluğunun Etkisi

Maliyet Analizi, 2019 verilerine göre 1 kW/saat 0,53 TL dir. 3 saat çalıştırılan sistem olarak hesaplanmıştır. Maliyet analizi Tablo 4.6'da verilmiştir.

**Tablo 4.6.** Maliyet Analizi

Akım Yoğunluğu A/m <sup>2</sup>	Harcanan Güç (kW)	Elektrik Maliyeti (kuruş)
50	0,00528	0,68052
75	0,00692	0,94128
100	0,00709	1,05576
150	0,00742	1,0812
200	0,0076	1,19250

#### 4.1.3. Acetaminophen Elektrokoksasyon Deneylerine NaCl Etkisi

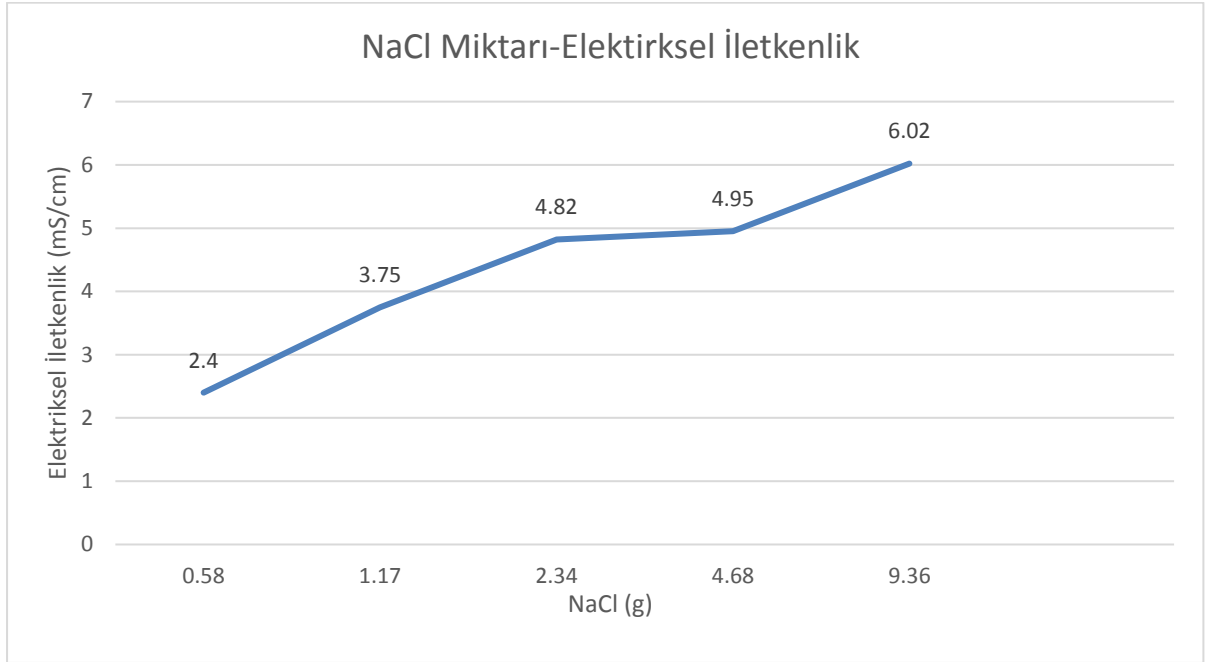
Paralel çalışmalardan elde edilen sonuçlara göre ortalama değerler alınmıştır. Yapılan çalışmada NaCl miktarı değişken olarak seçilmiştir. Acetaminophen miktarı 100 mg/L, Süre 3 saat, akım yoğunluğu 200 A/m<sup>2</sup>olarak sabitlenmiştir. Tablo 4.7'de acetaminophen giriş ve çıkış konsantrasyonları verilmiştir. Tablo 4.8'de acetaminophen elektrokoksasyonuna NaCl etkisi deney sonuçları verilmiştir. Şekil 4.3'te NaCl miktarı ve elektiriksel iletkenlik ilişkisi verilmiştir. Şekil 4.4'te giderim verimine NaCl etkisi grafiği çizilmiştir. NaCl deneyde elektriksel etkinliği arttırmak için kullanılmaktadır. NaCl miktarı arttıkça giriş iletkenlik değeri artmaktadır. Giderim yüzdesi belli bir noktadan sonra (2,34 g NaCl) doygunluğa ulaşır giderim yüzdesi azalmaktadır.

**Tablo. 4.7.** Acetaminophen Giriş ve Çıkış mg/L

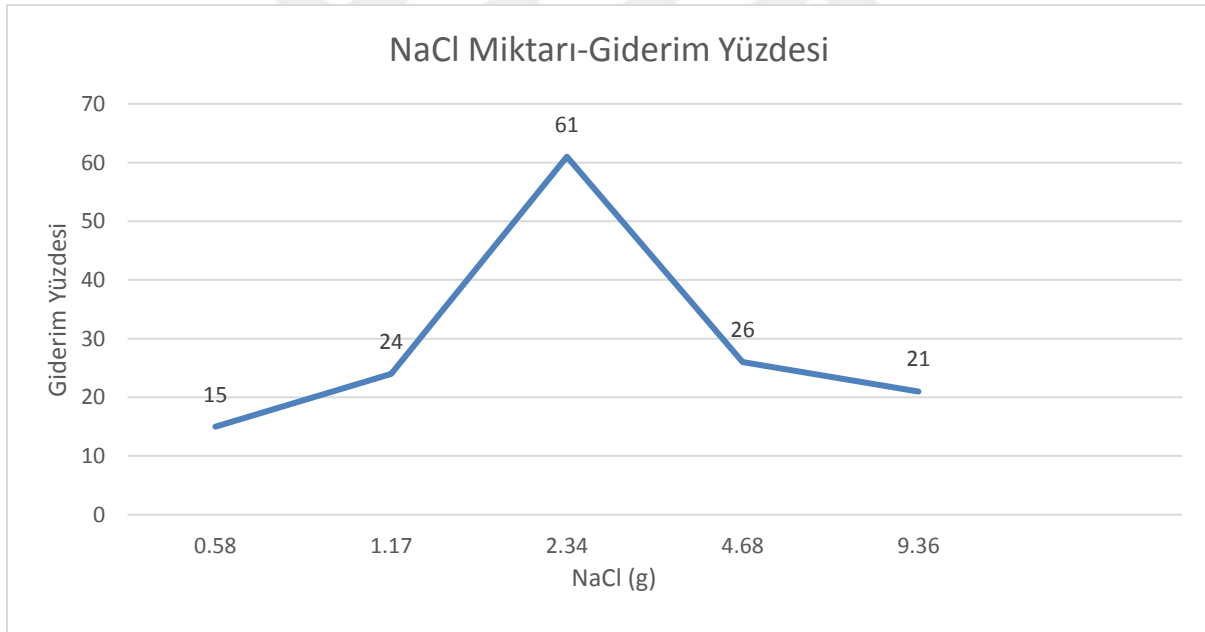
Giriş mg/L	Çıkış mg/L
25 mg/L	85
50 mg/L	76
100 mg/L	39
150 mg/L	74
200 mg/L	79

**Tablo 4.8.** Acetaminophen Elektrokoksasyonuna NaCl Etkisi

NaCl (g)	Miktarı	Giriş pH	Çıkış pH	Giriş İletkenlik (mS/cm)	Çıkış İletkenlik (mS/cm)	Anot Kaybı (g)	Katot Kaybı (g)	Harcanan Güç
0,58		5,07	6,21	2,40	2,82	3,95	0,012	0,0062
1,17		5,21	6,32	3,75	3,76	3,88	0,009	0,0075
2,34		6,83	11,25	4,82	4,85	4,21	0,02	0,0081
4,68		7,07	11,76	4,95	5,11	4,11	0,006	0,0097
9,36		9,21	11,96	6,02	5,21	4,23	0,009	0,0128



Şekil 4.3. NaCl Miktarı-Elektiriksel İletkenlik İlişkisi



Şekil 4.4. Giderim Verimine NaCl Etkisi

Maliyet Analizi, 2019 verilerine göre 1 kW/saat 0,53 TL dir. 3 saat çalıştırılan sistem olarak hesaplanmıştır. Maliyet analizi Tablo 4.9. da verilmiştir.

**Tablo 4.9.** Maliyet Analizi

NaCl Miktarı (g)	Harcanan Güç (kW)	Elektrik Maliyeti (kuruş)
0,58	0,00528	0,9858
1,17	0,00692	1,1925
2,34	0,00709	1,2879
4,68	0,00742	1,5423
9,36	0,0076	2,0352

#### 4.1.4. Acetaminophen Elektrooksidasyon Deneilerine Sürenin Etkisi

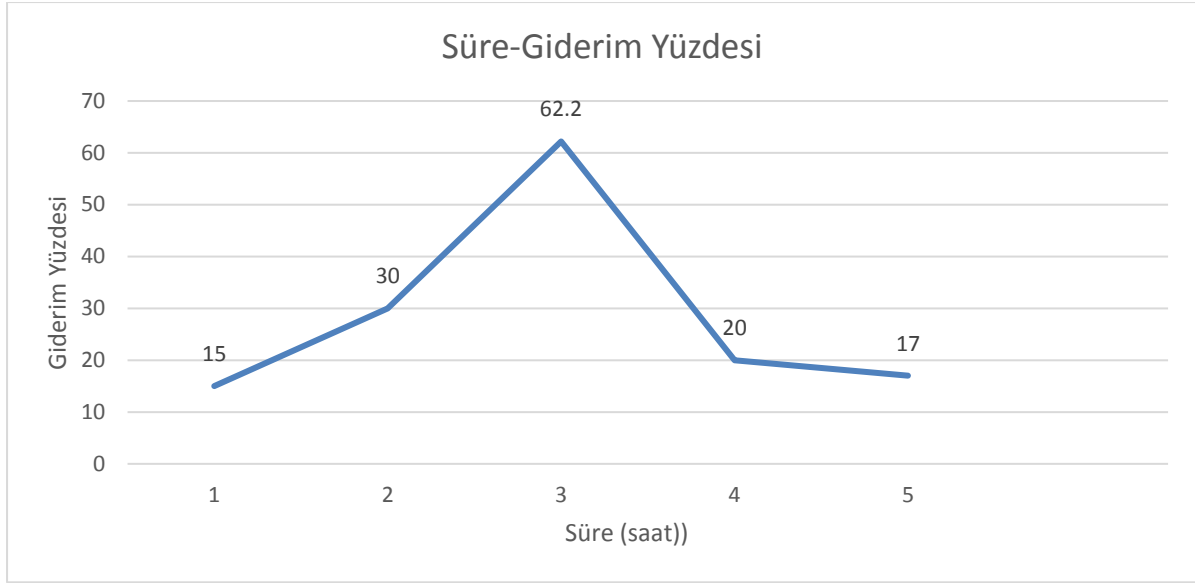
Paralel çalışmalardan elde edilen sonuçlara göre ortalama değerler alınmıştır. Yapılan çalışmada süre değişken olarak seçilmiştir. Süre olarak 1,2,3,4,5 saat denenmiştir. Acetaminophen miktarı 100 mg/L, NaCl miktarı 2,34 gram, akım yoğunluğu 200 A/m<sup>2</sup> olarak sabitlenmiştir. Tablo 4.10'da acetaminophen giriş ve çıkış konsantrasyonları verilmiştir. Tablo 4.11'de acetaminophen elektrooksidasyonuna sürenin etkisi deney sonuçları verilmiştir. Şekil 4.5'te giderim verimine sürenin etkisi grafiği çizilmiştir. Sürenin artması ile giderim yüzdesi artarken belli bir doygunluktan sonra süreyi uzatsakta verim artmamaktadır.

**Tablo. 4.10.** Acetaminophen Giriş ve Çıkış mg/L

Giriş mg/L	Çıkış mg/L
25 mg/L	85
50 mg/L	70
100 mg/L	37,8
150 mg/L	80
200 mg/L	83

**Tablo 4.11.** Acetaminophen Elektrooksidasyonuna Sürenin Etkisi

Süre (saat)	Giriş pH	Çıkış pH	Giriş İletkenlik (mS/cm)	Çıkış İletkenlik (mS/cm)	Anot Kaybı (g)	Katot Kaybı (g)	Harcanan Güç
1	5,96	6,08	4,51	4,65	3,22	0,015	0,0022
2	5,87	5,98	4,87	4,92	3,45	0,016	0,0062
3	4,98	5,56	4,63	4,85	4,19	0,003	0,0075
4	5,02	6,02	4,23	5,07	6,09	0,021	0,0175
5	5,36	7,07	5,02	5,66	7,21	0,020	0,0198



**Şekil 4.5.** Giderim Verimine Sürenin Etkisi

Maliyet Analizi, 2019 verilerine göre 1 kW/saat 0,53 TL dir. 1,2,3,4 ve 5 saat çalıştırılan sistem olarak hesaplanmıştır. Maliyet analizi Tablo 4.12’de verilmiştir.

**Tablo 4.12.** Maliyet Analizi

Süre (saat)	Harcanan Güç (kW)	Elektrik Maliyeti (kuruş)
1	0,00528	0,1166
2	0,00692	0,6572
3	0,00709	1,1925
4	0,00742	3,71
5	0,0076	5,247

## 4.2. Metformin Elektrokksidasyon Deneyleleri

Elektrokksidasyon deneylerinde kirleticinin başlangıç konsantrasyonu, akım yoğunluğu, NaCl miktarı ve süre optimize edilmiştir. Deneylerde giriş pH, çıkış pH ları, giriş ve çıkış iletkenlik değerleri, kirleticinin giriş ve çıkış konsantrasyonu, anot ve katot plakalardaki kayıplar, deney sürecinde harcanan güç ve maliyet hesaplanmıştır.

### 4.2.1. Metformin Elektrokksidasyon Deneylerine Konsantrasyonun Etkisi

Paralel çalışmalardan elde edilen sonuçlara göre ortalama değerler alınmıştır. Yapılan çalışmada metformin miktarı değişken olarak seçilmiştir. NaCl miktarı 2,34, akım yoğunluğu 100 A/m<sup>2</sup> süre 3 saat olarak sabitlenmiştir. Tablo 4.13. te metformin giriş ve çıkış konsantrasyonları verilmiştir. Tablo 4.14. te metformin elektrokksidasyonuna konsantrasyon etkisi deney sonuçları verilmiştir. Şekil 4.6’da giderim verimine konsantrasyonun etkisi grafiği çizilmiştir. Grafikte

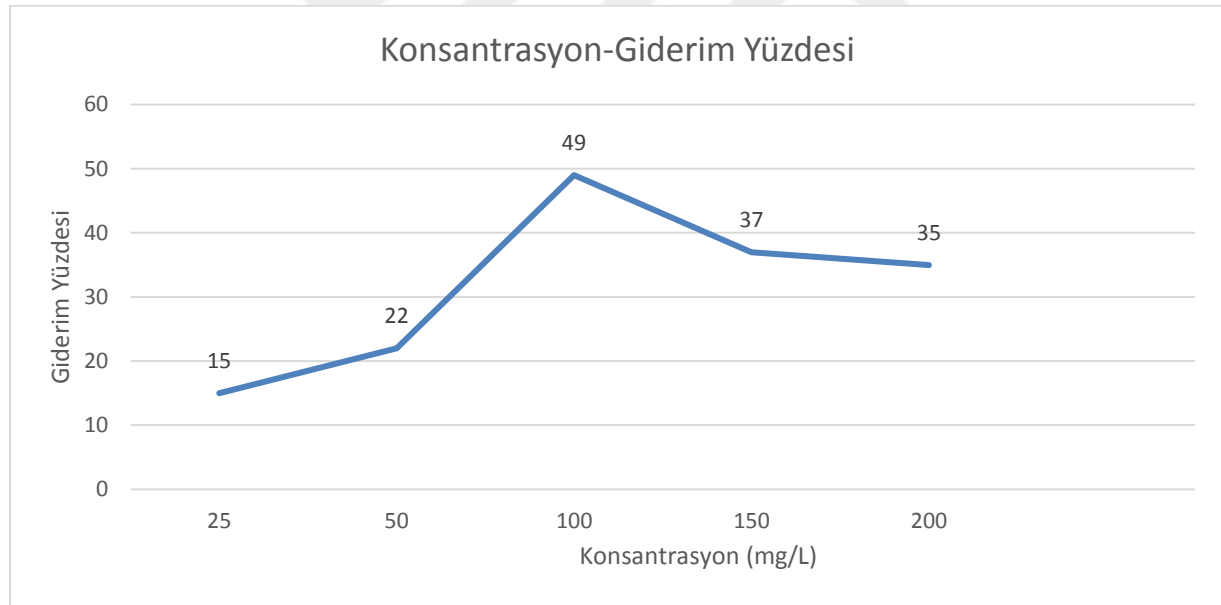
görülebileceği üzere konsantrasyon arttığı zaman giderim verimi artmaktadır. Ancak belli bir yer noktada (100 mg/L metformin) doygunluğa ulaştıktan sonra giderim verimi tekrar azalmaktadır.

**Tablo 4.13.** Metformin Giriş ve Çıkış mg/L

Giriş mg/L	Çıkış mg/L
25 mg/L	21,25
50 mg/L	39
100 mg/L	51
150 mg/L	94,5
200 mg/L	130

**Tablo 4.14.** Metformin Elektrokodasyonuna Konsantrasyonun Etkisi

Metformin mg/L	Giriş pH	Çıkış pH	Giriş İletkenlik (mS/cm)	Çıkış İletkenlik (mS/cm)	Anot Kaybı (g)	Katot Kaybı (g)	Harcanan Güç
25 mg/L	6,99	11,64	4,76	4,9	2,24	0,08	0,00525
50 mg/L	5,42	11,71	4,75	5,36	2,65	0,6	0,00532
100 mg/L	6,36	11,74	4,69	4,87	3,64	-0,01	0,00565
150 mg/L	6,46	11,81	4,72	5,08	5,09	0,66	0,00637
200 mg/L	5,39	10,73	4,69	4,6	1,88	-0,1	0,00701

**Şekil 4.6.** Metformin Giderim Verimine Konsantrasyonun Etkisi

Maliyet Analizi, 2019 verilerine göre 1 kW/saat 0,53 TL dir. 3 saat çalıştırılan sistem olarak hesaplanmıştır. Maliyet analizi Tablo 4.15. te verilmiştir.

**Tablo 4.15. Maliyet Analizi**

Giriş mg/L	Harcanan Güç (kW)	Elektrik Maliyeti (kuruş)
25 mg/L	0,00528	0,83475
50 mg/L	0,00692	0,84588
100 mg/L	0,00709	0,89835
150 mg/L	0,00742	1,01283
200 mg/L	0,0076	1,11459

#### 4.2.2. Metformin Elektrooksidasyon Deneşlerine Akım Yoęunluęunun Etkisi

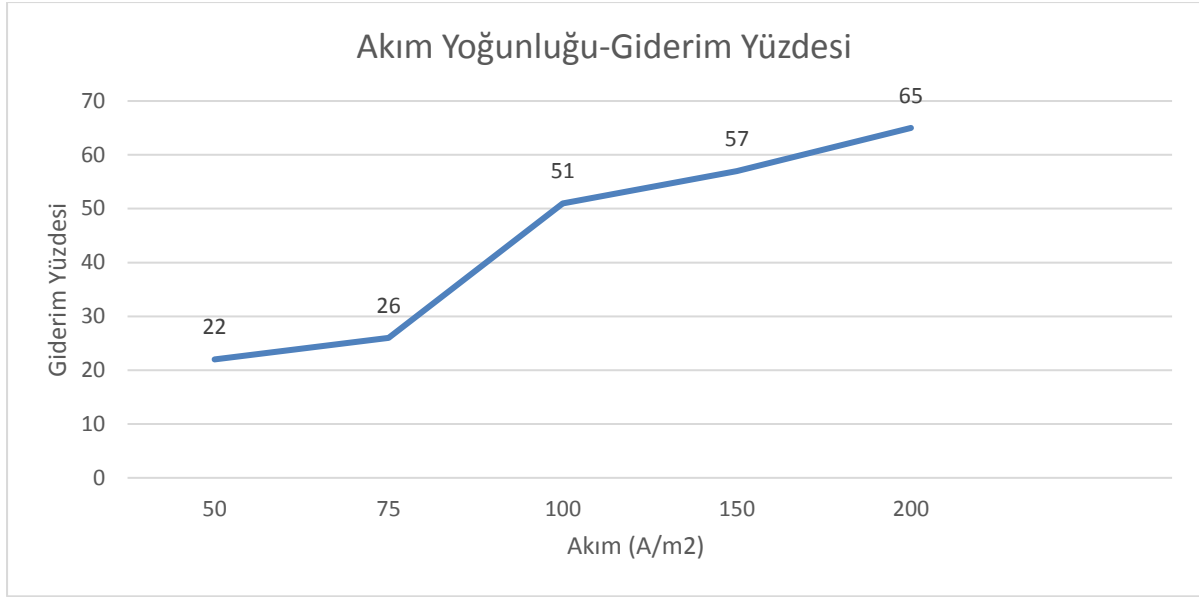
Paralel alıřmalardan elde edilen sonulara gre ortalama deęerler alınmıřtır. Yapılan alıřmada akım yoęunluęu deęiřken olarak seilmiřtir. 50, 75, 100, 150, 200 A/m<sup>2</sup> akım yoęunlukları denenmiřtir. NaCl miktarı 2,34, acetaminophen miktarı 100 mg/L sre 3 saat olarak sabitlenmiřtir. Tablo 4.16'da metformin giriř ve ıkıř konsantrasyonları verilmiřtir. Tablo 4.17'de metformin elektrooksidasyonuna akım yoęunluęunun etkisi deney sonuları verilmiřtir. řekil 4.7'de giderim verimine akım yoęunluęunun etkisi grafięi izilmiřtir. Grafiktende grleceęi zere akım yoęunluęunun artması ile giderim verimi artmaktadır. Aynı zamanda anot kaybı ve maliyette artmaktadır.

**Tablo 4.16. Metformin Giriř ve ıkıř mg/L**

Giriř mg/L	ıkıř mg/L
25 mg/L	78
50 mg/L	74
100 mg/L	49
150 mg/L	43
200 mg/L	35

**Tablo 4.17. Metformin Elektrooksidasyonuna Akım Yoęunluęunun Etkisi**

Akım Yoęunluęu A/m <sup>2</sup>	Giriř pH	ıkıř pH	Giriř İletkenlik (mS/cm)	ıkıř İletkenlik (mS/cm)	Anot Kaybı (g)	Katot Kaybı (g)	Harcanan Güç
50	6,38	10,25	4,78	4,4	1,04	0	0,00485
75	7,4	11,14	4,8	4,75	1,65	0	0,00521
100	6,36	11,74	4,69	4,87	3,64	-0,01	0,00678
150	5,54	11,91	4,76	5,35	3,18	-0,01	0,0075
200	6,83	11,85	4,78	5,6	3,81	-0,01	0,0081



**Şekil 4.7.** Metformin Giderim Verimine Akım Yoğunluğunun Etkisi

Maliyet Analizi, 2019 verilerine göre 1 kW/saat 0,53 TL dir. 3 saat çalıştırılan sistem olarak hesaplanmıştır. Maliyet analizi Tablo 4.18'de verilmiştir.

**Tablo 4.18.** Maliyet Analizi

Akım Yoğunluğu A/m <sup>2</sup>	Harcanan (kW)	Güç Elektrik Maliyeti (kuruş)
50	0,00528	0,77115
75	0,00692	0,82839
100	0,00709	1,07802
150	0,00742	1,1928
200	0,0076	1,2879

#### 4.2.3. Metformin Elektrokoksasyon Deneilerine NaCl Etkisi

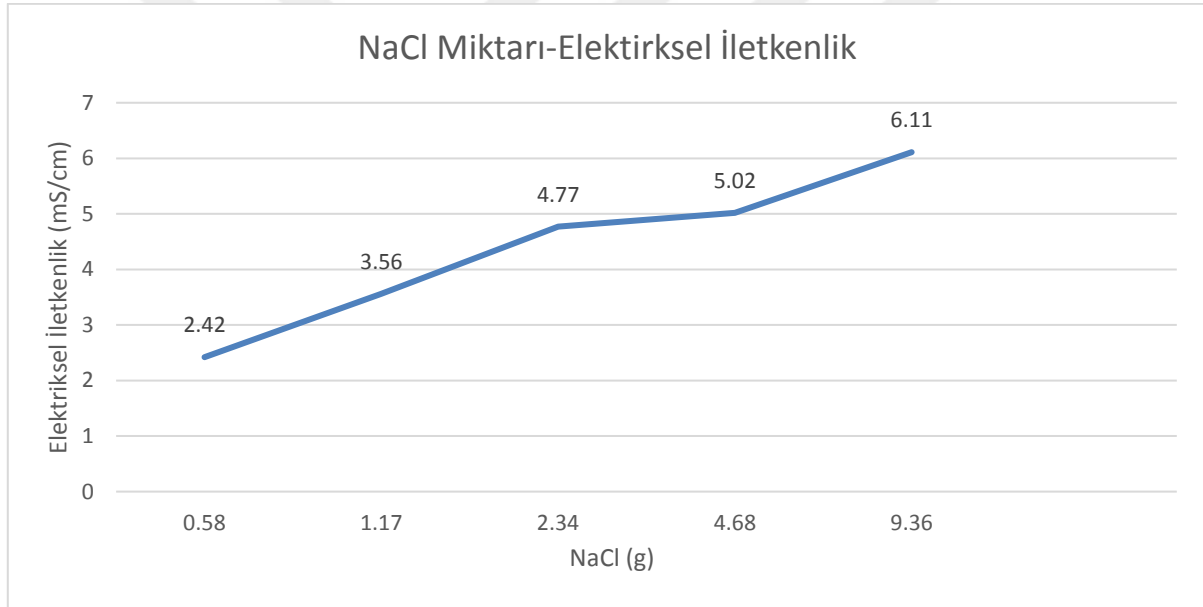
Paralel çalışmalardan elde edilen sonuçlara göre ortalama değerler alınmıştır. Yapılan çalışmada NaCl miktarı değişken olarak seçilmiştir. Metformin miktarı 100 mg/L, Süre 3 saat, akım yoğunluğu 200 A/m<sup>2</sup> olarak sabitlenmiştir. Tablo 4.19'da metformin giriş ve çıkış konsantrasyonları verilmiştir. Tablo 4.20'de metformin elektrokoksasyonuna NaCl etkisi deney sonuçları verilmiştir. Şekil 4.8'de NaCl miktarı ve elektiriksel iletkenlik ilişkisi verilmiştir. Şekil 4.9'da giderim verimine NaCl etkisi grafiği çizilmiştir. NaCl deneyde elektriksel etkinliği arttırmak için kullanılmaktadır. NaCl miktarı arttıkça giriş iletkenlik değeri artmaktadır. Giderim yüzdesi belli bir noktadan sonra (2,34 g NaCl) doygunluğa ulaşmış giderim yüzdesi azalmaktadır.

**Tablo 4.19.** Metformin Giriş ve Çıkış mg/L

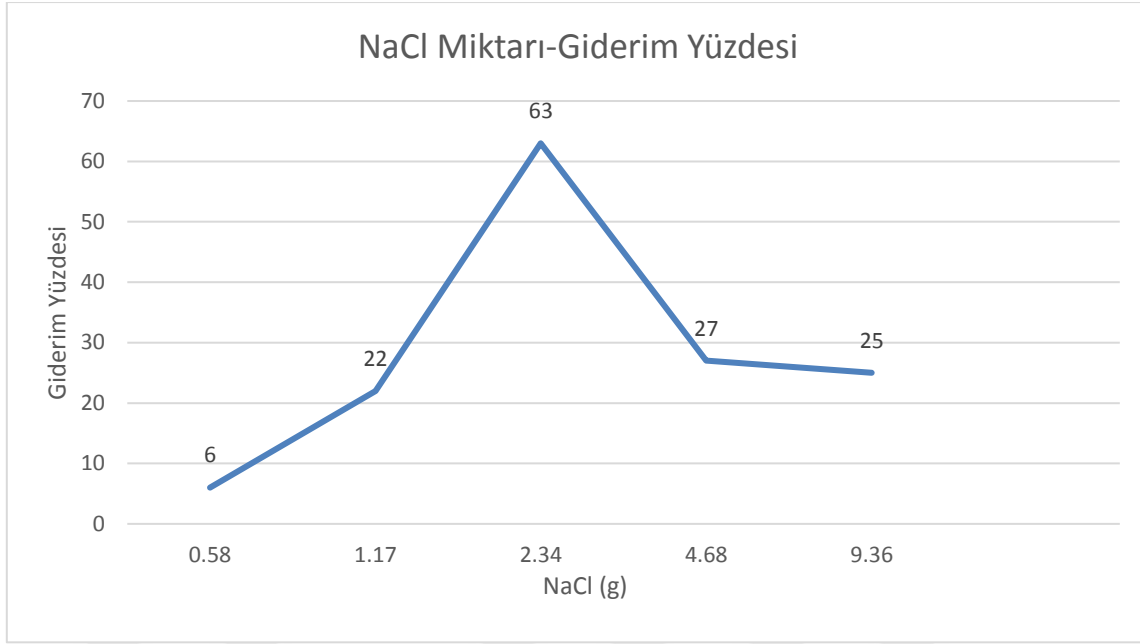
Giriş mg/L	Çıkış mg/L
25 mg/L	78
50 mg/L	74
100 mg/L	49
150 mg/L	43
200 mg/L	35

**Tablo 4.20.** Metformin Elektrokksidasyonuna NaCl Etkisi

NaCl (g)	Miktarı	Giriş pH	Çıkış pH	Giriş İletkenlik (mS/cm)	Çıkış İletkenlik (mS/cm)	Anot Kaybı (g)	Katot Kaybı (g)	Harcanan Güç
0,58		5,11	6,32	2,42	2,82	2,98	0,011	0,0042
1,17		5,22	6,45	3,56	3,63	3,56	0,007	0,0053
2,34		6,52	10,32	4,82	3,77	4,02	0,03	0,0066
4,68		7,22	11,22	4,77	4,98	5,26	0,005	0,0081
9,36		9,32	11,77	5,12	5,23	5,87	0,001	0,0087



**Şekil 4.8.** NaCl Miktarı-Elektiriksel İletkenlik İlişkisi



**Şekil 4.9.** Metformin Giderim Verimine NaCl Etkisi

Maliyet Analizi, 2019 verilerine göre 1 kW/saat 0,53 TL dir. 3 saat çalıştırılan sistem olarak hesaplanmıştır. Maliyet analizi Tablo 4.21. de verilmiştir.

**Tablo 4.21.** Maliyet Analizi

NaCl Miktarı (g)	Harcanan Güç (kW)	Elektrik Maliyeti (kuruş)
0,58	0,00528	0,6678
1,17	0,00692	0,8427
2,34	0,00709	1,0494
4,68	0,00742	1,2879
9,36	0,0076	1,3833

#### 4.2.4. Metformin Elektrokodasyon Deneylerine Sürenin Etkisi

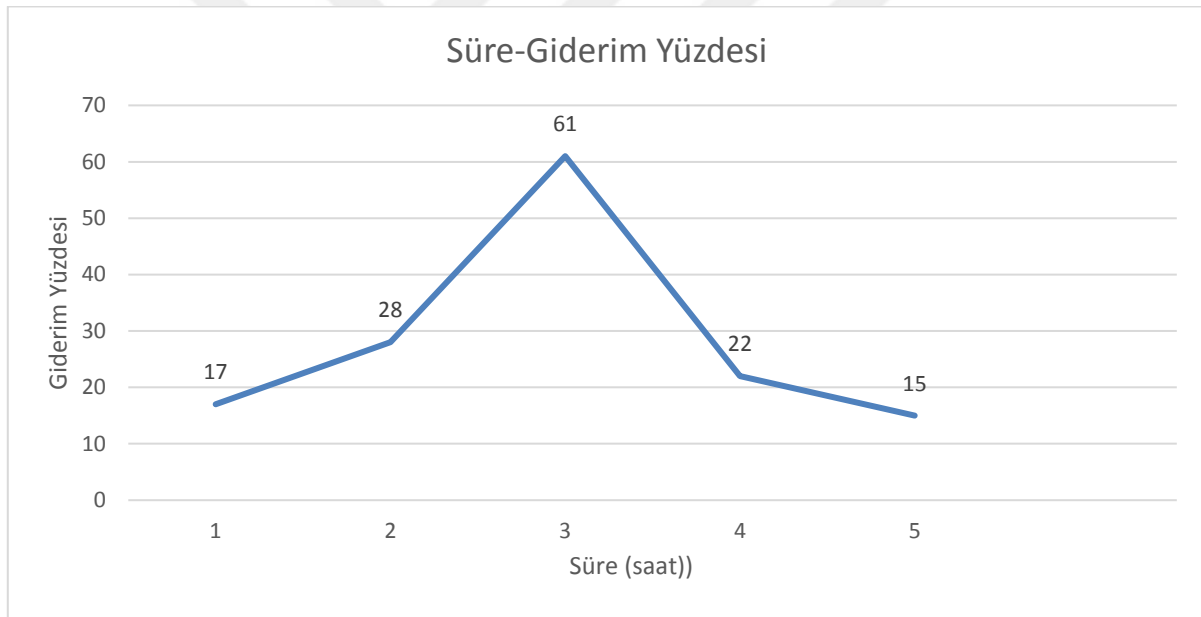
Paralel çalışmalardan elde edilen sonuçlara göre ortalama değerler alınmıştır. Yapılan çalışmada süre değişken olarak seçilmiştir. Süre olarak 1,2,3,4,5 saat denenmiştir. Metformin miktarı 100 mg/L, süre 3 saat, akım yoğunluğu 200 A/m<sup>2</sup> olarak sabitlenmiştir. Tablo 4.22’de metformin giriş ve çıkış konsantrasyonları verilmiştir. Tablo 4.23’te metformin elektrokodasyonuna sürenin etkisi deney sonuçları verilmiştir. Şekil 4.9’da giderim verimine sürenin etkisi grafiği çizilmiştir. Sürenin artması ile giderim yüzdesi artarken belli bir doygunluktan sonra süreyi uzatsakta verim artmamaktadır.

**Tablo. 4.22.** Metformin Giriş ve Çıkış mg/L

Giriş mg/L	Çıkış mg/L
25 mg/L	83
50 mg/L	72
100 mg/L	39
150 mg/L	78
200 mg/L	85

**Tablo 4.23.** Metformin Elektrokisidasyonuna Sürenin Etkisi

Süre (saat)	Giriş pH	Çıkış pH	Giriş İletkenlik (mS/cm)	Çıkış İletkenlik (mS/cm)	Anot Kaybı (g)	Katot Kaybı (g)	Harcanan Güç
1	4,85	4,92	4,52	4,63	2,85	0,002	0,0017
2	5,78	5,85	4,78	4,88	3,22	0,010	0,0045
3	4,87	5,21	4,36	4,83	4,18	0,001	0,0086
4	4,99	5,89	4,11	4,52	6,12	0,012	0,0152
5	4,87	6,21	4,89	4,92	8,52	0,022	0,0196

**Şekil 4.10.** Metformin Giderim Verimine Sürenin Etkisi

Maliyet Analizi, 2019 verilerine göre 1 kW/saat 0,53 TL dir. 1,2,3,4 ve 5 saat çalıştırılan sistem olarak hesaplanmıştır. Maliyet analizi Tablo 4.24. te verilmiştir.

**Tablo 4.24.** Maliyet Analizi

<b>Süre (saat)</b>	<b>Harcanan Güç (kW)</b>	<b>Elektrik Maliyeti (kuruş)</b>
1	0,00528	0,2703
2	0,00692	0,7155
3	0,00709	1,3674
4	0,00742	2,4168
5	0,0076	3,1164



## 5. SONUÇLAR ve ÖNERİLER

Temel ihtiyaçlarımızdan biri olan suyun kullanımı her geçen gün artmaktadır. Kaynakların azalması ve suların kirlenmesi ile arıtma metotlarına olan ilgi artmaktadır. Suyun kirlenmesine sebep olan etkenlerden biri de farmasötiklerdir. Yapılan çalışmada acetaminophen ve metformin gibi kullanımı fazla olan farmasötiklerin sulardan giderimi için elektrooksidasyon verimliliği araştırılmıştır. Çalışmada denenen elektrooksidasyon yöntemi ile en fazla giderim yüzde 65 seviyelerindedir. Arıtım giderim yüzdesinin artması için farklı şartlarda çalışmalar denenmiştir. Kirletici konsantrasyonu, NaCl miktarı, akım yoğunluğu ve süre optimum şekilde ayarlanmaya çalışılmıştır. Bunun için paralel deneyler yapıp sonuçlar karşılaştırılmıştır. Çalışmada anot ve katot kaybı kaydedilmiştir. Katot kaybı önemli sayılmayacak kadar azdır. Çalışmada acetaminophen ve metformin için yapılan değerlendirmede konsantrasyonun artması ile arıtım verimi artarken belli bir yerden sonra verimde düşüş görülmektedir. Kirletici ile birlikte kullanılan akım miktarı da arttırılmalıdır ki arıtım verimi artsın. NaCl kullanımının amacı su içerisinde elektriksel iletkenliğinin arttırılmasıdır. Çalışmada saf su kullanıldığı için NaCl kullanımına ihtiyaç olmuştur, bu çalışma gerçek atık su veya çeşme suyu ile yapılacak olursa kullanılan NaCl miktarı çok değişecek hatta kullanıma gerek bile olmayacaktır.

Laboratuvar şartlarında yapılan bir çalışmada 5x7 cm ölçülerinde kullanılan plakalarda görülen anot kaybı gram şeklindedir. Ancak bu sistemin büyük kentsel arıtma sistemlerinde uygulanabilirliği için tasarımı yapılırsa anot kaybının çok fazla olduğu, harcanan güç miktarı artacak olup istenen seviyelerde arıtıma ulaşmak zor olacaktır. Çalışmada harcanan güce göre elektrik maliyeti hesaplanmıştır. Maliyet deneyde kullanılan akım yoğunluğuna paralel olarak artmaktadır.

İlerleyen çalışmalarda hastane gibi içerisinde farmasötik kirleticisinin fazla bulunduğu bir atık su ile elektrooksidasyon yönteminin verimliliği araştırılabilir. Birden fazla farmasötik kirleticinin bulunduğu ortamda farmasötiklerin birbiri ile etkileşimi ve bozunma ürünleri araştırılıp arıtım yöntemi denenebilir.

## KAYNAKLAR

- [1]. Xueqing, S., Kwok, Yii L., How, Y. (2017). Anaerobic treatment of pharmaceutical wastewater. A critical review. *Bioresource Technology*, 1238-1244.
- [2]. Hofmann, J., Freier U., Wecks, M., Hohmann, S. (2007). Degradation of diclofenac in water by heterogeneous catalytic oxidation with H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. *Applied Catalysis B Environmental*, 70, 447-451.
- [3]. Ternes, T. A., Stumpf, M., Schuppert, B., Haberer, K. (1998). Simultaneous determination of antiseptics and acidic drugs in sewage and river water. *Vom Wasser*, 90, 295-309.
- [4]. Lee, D., Choi, K. (2019). Comparison of regulatory frameworks of environmental risk assessments for human pharmaceuticals in EU, USA, and Canada. *Science of The Total Environment*, 1026-1035.
- [5]. Halling, Sorensen, B., Nielsen, S. N., Lanzky, P. F., Ingerslev, F., Lützhft, H. C. H., Jørgensen, S. E. (1998). Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment. A review. *Chemosphere*, 36: 357-393.
- [6]. Oldenkamp, R. (2019). The Boomerang Effect Environmental Exposure to Pharmaceuticals. *Sustainable Chemistry and Pharmacy*, 312-356.
- [7]. Pollice A., Laera G., Cassano, D., Diomede, S., Pinto, A., Lopez A., Mascolo, G. (2012). Removal of nalidixic acid and its degradation products by an integrated MBR-ozonation system. *Journal of Hazardous Materials*, 203-204, 46-52.
- [8]. Ihara I., Kanamura K., Shimada E. ve diğeri. (2004). High Gradient Magnetic Separation Combined With Electrocoagulation and Electrochemical Oxidation for the Treatment of Landfill Leachate. *Ieee Transactions On Applied Superconductivity*, 2-14, 1558-1560.
- [9]. Ellis, M. (2019). *Who are the top 10 pharmaceutical companies in the world*. 20 Mayıs 2019 tarihinde <https://www.proclinical.com/blogs?nav=ea5229b8-c4ae-410e-8752-5a6919921> adresinden erişildi.
- [10]. Türkiye İlaç Sektörü Raporu, (2018). <http://ieis.org.tr/ieis/tr/sektorraporu2018>.
- [11]. Gamze, K. (2012). *Sulu Çözeltilerde Amoksisilin ve Sefalotin Antibiyotiklerinin İleri Oksidasyon Teknikleri İle Arıtılabilirliğinin Araştırılması*. Yüksek Lisans Tezi, Mersin Üniversitesi, Mersin.
- [12]. Kulik, N. T. (2008). Combined chemical treatment of pharmaceutical effluents from medical ointment production. *Chemosphere*, 1525-1531.
- [13]. Mackulak, T., Cernansky, S., Miroslav, F., Lucia, B., & Miroslav, G. (2019). Pharmaceuticals, drugs, and resistant microorganisms — environmental impact on population health. *Current Opinion in Environmental Science & Health*, 40-48.
- [14]. Marco-Urrea, E. R. (2010). Oxidation of atenolol, propranolol, carbamazepine and clofibrac acid by a biological Fenton-like system mediated by the white-rot fungus *Trametes versicolor*. *Water Research*, 521-532.

- [15]. Duran, A. M.-M. (2011). PhotoFenton mineralization of synthetic municipal wastewater effluent containing acetaminophen in a pilot plant. *Desalination* , 124-125.
- [16]. Klavarioti, M. M. (2009). Removal of residual pharmaceuticals from aqueous systems by advanced oxidation processes. *Environment International* , 402-417.
- [17]. Oldenkamp, R. (2019). The boomerang effect – environmental exposure to pharmaceuticals. *Sustainable Chemistry and Pharmacy*, 112-127.
- [18]. Baroiller, J.F., Y. Guiguen., A. Fostier. (1999). Endocrine and Environmental Aspects of Sex Differentiation in Fish. *Cell. Mol. Life Sciences*, 42-62.
- [19]. Devlin, R.H., Y. Nagahama. (2002). Sex Determination and Sex Differentiation in Fish: An Overview of Genetic, Physiological, and Environmental Influences. *Aquaculture*, 208, 191-364.
- [20]. Nakada, N., Shinohara , H., Murata, A. Kiri, K., Managakia, S., Sato, N. ve Takada. H. (2007). Removal of selected pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) and endocrine - disrupting chemicals (EDCs) during sand filtration and ozonation at a municipal sewage treatment plant. *Water Research* 41, 4373 –4382.
- [21]. Heberer, T. (2002). Occurrence, fate, removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: *A Review of Recent Research Data. Toxicology Letters*, 131, 5-17.
- [22]. Halling-Sorensen, B., Nors Nielsen, S., Lankzky, P.F., Ingerslev, F., Holten Lützhof, H.C., Jorgensen, S.E. (1998). Occurrence, Fate and Effects of Pharmaceutical Substances in the Environment, *Chemosphere*, 36, 357-393.
- [23]. USEPA. (1982). Development document for effluent limitations guidelines and standards for pharmaceutical, *Point Source Category*, 440/1-82/084, Washington D.C.
- [24]. Cristian Gomez- Canela., V. P. (2019). Development of predicted environmental concentrations to prioritize the occurrence of pharmaceuticals in rivers from Catalonia. *Science The Total Environment*, 57-67.
- [25]. Sönmez, G. v. (2013). Sulardaki İlaç Kalıntılarının İleri Oksidasyon Yöntemleri İle Giderimi. *Türk Bilimsel Derlemeler Dergisi*, 68-73.
- [26]. Demirozogu, E., A. M. (2019). Intravenous dexketoprofen versus paracetamol in non traumatic musculoskeletal pain in the emergency department: A randomized clinical trial. *The American Journal of Emergency Medicine*.
- [27]. *U.S National Library of Medicine*. 15 Haziran 2019 tarihinde <https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/Acetaminophen> adresinden erişildi.
- [28]. Kabak, H. (2008). *Kullanılan Bazı Tıbbi İlaçların Canlı Aktif Çamur Biyokütlesi Tarafından Adsorplama Özeliğinin İncelenmesi*. Doktora Tezi, Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Adana.

- [29]. Sadornil, S. (2006). *Electrochemical Advanced Oxidation Processes for the Removal of the Drugs Paracetamol, Clofibrilic Acid, Chlorophen from Waters*. Doktora Tezi, Universitat de Barcelona, Facultat de Química, Barcelona.
- [30]. Balcı, B. K. (2012). Atık Sulardan Parasetamol Gideriminde Aktif Çamur Kullanılması. *Çukurova Üniversitesi Mühendislik Mimarlık Fakültesi Dergisi*, 1-12.
- [31]. Hoang NhatPhong Vo., G. K.-T.-D. (2019). Acetaminophen micropollutant: Historical and current occurrences, toxicity, removal strategies and transformation pathways in different environments. *Chemosphere*, 124391.
- [32]. Ayvaz G., K. E. (2010). Tip 2 Diabetes Mellitus Tedavisinde Oral Antidiyabetik İlaçlar Tip 2 Diabetes Mellitus Tedavisi. *Mised*, 23-24.
- [33]. Mazza, A. e. (2011-2012). The role of metformin in the management of NAFLD. *Experimental diabetes research*.
- [34]. Jürg Oliver Straub., D. J.-H. (2019). Environmental risk assessment of metformin and its transformation product guanylurea. *I. Environmental fat. Chemosphere*, 844-854.
- [35]. Trine Eggen., a. C. (2012). Antidiabetic II Drug Metformin in Plants: Uptake and Translocation to Edible Parts of Cereals, Oily Seeds, Beans, Tomato, Squash. *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, 6929-6935.
- [36]. Christina I.Kosma., D. A. (2015). Comprehensive study of the antidiabetic drug metformin and its transformation product guanylurea in Greek wastewaters. *Water Research*, 436-448.
- [37]. Deliktaş, E.(2011). *Kâğıt Endüstrisi Atıksularının Elektro-Fenton Prosesi İle Arıtılması*. Yüksek Lisans Tezi, Selçuk Üniversitesi, Konya.
- [38]. İlhan, F., Kurt, U., Apaydın, Ö., Arslankaya, E. ve Gönüllü, M.T.(2007). Elektrokimyasal Arıtım ve Uygulamaları: Katı Atık Sızıntı Suyu Çalışması. *AB Sürecinde Türkiye’de Katı Atık Yönetimi Ve Çevre Sorunları Sempozyumu*, İstanbul.
- [39]. Pulgarin, J. A. (1994). Electrochemical Detoxification of A 1,4 – Benzoquinone Solution in *Wastewater Treatment*, 123-135.
- [40]. Pletcher, D. A. (1990). *Industrial Electrochemistry*. The Universty Press, Cambridge
- [41]. İlhan, F., (2007). *Elektrokimyasal Arıtım ve Uygulamalar : Katı Atık Sızıntı Suyu Çalışması*, 10 Ocak 2018 tarihinde [http://www.yildiz.edu.tr/~filhan/Electrochemical\\_Treatment\\_Applications](http://www.yildiz.edu.tr/~filhan/Electrochemical_Treatment_Applications) adresinden erişildi.
- [42]. Balasubramanian, N. M. (2001). Arsenic Removal from Industrial Effluent Through Electrocoagulation. *Chem. Eng. Tech*, 24, 5, 519-21.
- [43]. Mollah, M. S. (2001). Elektrocoagulation (EC)Science and Applications. *Journal of Hazardous Materials*, 29-41.
- [44]. Chen, G. C. (2000). Electrocoagulation and Electroflotation of Restaurant Wastewater. *Journal of Environmental Engineering*.

- [45]. Lin SH, P. C. (1994). Treatment of textile wastewater by electrochemical method. *Water Res*, 82.
- [46]. Romanov, A. K. (2000). Atıksulardaki Kolloidal Partiküllerin Elektroflotokoagülasyonla Giderimi. İTÜ 7. *Endüstriyel Kirlenme Kontrolü Sempozyumu*. istanbul , Türkiye .
- [47]. Mollah M. Y., Schennach R., Parga J. R. And Cocke D. L. (2001). Electrocoagulation (EC)-science and applications. *Journal of Hazardous Materials*, B84, 29 – 41.
- [48]. RAJESHWAR K. and IBANEZ J. G. (1997). Environmental Electrochemistry, Fundamentals and Applications in Pollution Abatement, , *Academic Press, San Diego, California*. 361-496, 739-759.
- [49]. Matteson M. J., Dobson R. L., Glenn Jr. R. W., Kukunoor N. S., Waits III. W. H. And Clayfield E. J. (1995). Electrocoagulation and separation of aqueous suspensions of ultrafine particles. *Colloids and Surfaces A*, 104, 101 – 109.
- [50]. EPA, (1993). Electro-pure alternating current electrocoagulation. Emerging Technol. Summary, EPA-540/S-93/504, Washington.
- [51]. Woytowich D. L., Dalymple C. W. And Britton M. G. (1993). Electrocoagulation (CURE) treatment of ship bilgewater for the US coast Guard in Alaska. *J. Marine Technology Society*, 27, 62 – 75.
- [52]. Do, J.-S. C.-L. (1994). Decolourization of dye-containing solutions by electrocoagulation. *Journal of Applied Electrochemistry*, 785-790.
- [53] Chen G. (2004). )Electrochemical Technologies in wastewater treatment. *Separation and Purification Technology*, 38, 11-41.
- [54]. Chmielewski A. G, Urbański Migdal W( 1997). Separation Technologies for Metals Recovery from Industrial Wastes. *Hydrometallurgy* 45, 333-344.
- [55]. Kurt E., Koseoglu-Imer D.Y, Dizge N., Chellam S. (2012) . Pilot-scale evaluation of nanofiltration and reverse osmosis for process reuse of segregated textile dyewash wastewater. *Desalination* , 302, 24-32.
- [56]. Rajeshwar K., I. J. (1994). Electrochemistry and the environment. *Journal of Applied Electrochemistry*, 24,1077-91.
- [57]. Yokovlev, S. V. (1988). Electrochemical Decolourization of Organic Dye Containing Wastewaters. *Khim Tekhnol Vody*, 226.
- [58]. Szpyrkowicz, I. N. (1995). Electrochemical Treatment of Tannery Wastewater. *Wat. Res*, 24.
- [59]. Scott, K. (1995). *Electrochemical Processes For Clean Technology*. University of Newcastle upon Tyne.
- [60]. Vlyssides, A. K. (1999). Electrochemical Oxidation of Noncyanide Strippers Wastes. *Environmental International*, 70.

[61]. Vlyssides, A. P. (2000). Testing an Electrochemical Method for Treatment of Textile Dye Wastewater. *Waste Management*, 20, 569-74.

[62]. Chiang, L.C., Chang, J.E., Wen, T.C. (1995). Indirect oxidation effect in electrochemical oxidation treatment of landfill leachate. *Water Research* 29(2), 671-678.

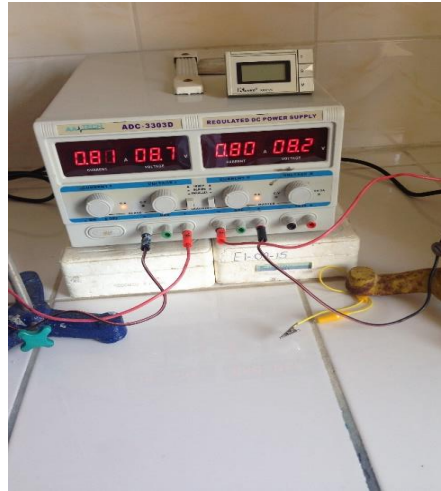
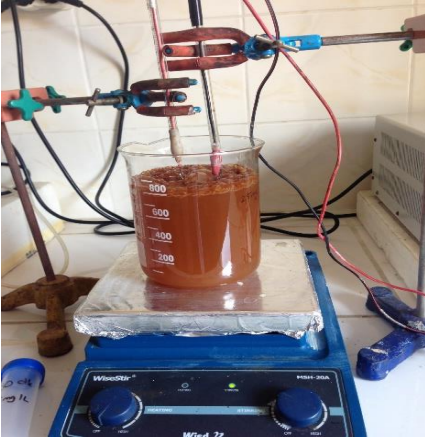
[63] Fil, A.B., Boncukluoğlu, R., Yılmaz, A.E., Bayar, S. (2012). Antep Fıstığı İşleme Atıksularının Elektrokimyasal Yöntemle Ön Arıtım Çalışmaları. *Iğdır Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi*, 29-36.

[64]. Anglada A , Urtiaga A ve Ortiz I (2009). Contributions Of Electrochemical Oxidation To Waste-water Treatment: Fundamentals and Review Of Applications. *J Chem Technol Biotechnol*; 84, 1747-1755.

[65]. Wang B, Kong W and Ma H (2007). Electrochemical Treatment of Paper Mill Wastewater Using Three-Dimensional Electrodes With Ti/Co/SnO<sub>2</sub>- Sb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Anode. *J Hazard Mater* 146, 295-301.

## EKLER

Deney çalışmalarına ait görüntüler verilmiştir.



## ÖZGEÇMİŞ

**Adı ve Soyadı** : FATMA SADIOĞLU KALAYCI

**Doğum Tarihi** : 21.10.1988

**E-mail** :fatmasadioglu@mersin.edu.tr

**Öğrenim Durumu** :

Derece	Bölüm/Program	Üniversite	Yıl
Lisans	Çevre Mühendisliği	Mersin Üniveritesi	2008-2013
Yüksek Lisans	Çevre Mühendisliği	Mersin Üniveritesi	2013-2019
Doktora			

**Görevler** :

Görev Ünvanı	Görev Yeri	Yıl
Kalite Yönetim Temsilcisi	Velosite Bilişim Sis. Müh. Dan. Özl Eğt. San. Ve Tic. Ltd. Şti.	2012-2013
Çevre Mühendisi	Matek Çevre Teknolojileri ve Danışmanlık Hizmetleri San. Tic. Ltd. Şti.	2013-2014
Çevre Mühendisi	Berdan Cıvata A.Ş.	2016-2018
Çevre İzin ve Kontrol Mühensisi	Karayolları 11. Bölge Müdürlüğü	2017-2019
Çevre İzin ve Kontrol Mühensisi	Karayolları 5. Bölge Müdürlüğü	2019-