

Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Ağır Metal Giderimi ve Bir Endüstriyel Simbiyoz
Uygulaması

Mürüvvet Arslan

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Haziran 2021



Heavy Metal Removal by Electrocoagulation Method and an Industrial Symbiosis
Application

Mürüvvet Arslan

MASTER OF SCIENCE THESIS

Department of Chemical Engineering

June 2021

Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Ağır Metal Giderimi ve Bir Endüstriyel Simbiyoz
Uygulaması

Mürüvvet Arslan

Eskişehir Osmangazi Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Lisansüstü Yönetmeliği Uyarınca

Kimya Mühendisliği Anabilim Dalı

Temel İşlemler ve Termodinamik Bilim Dalında

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Olarak Hazırlanmıştır

Danışman: Prof. Dr. Ayşegül Aşkın

Bu tez ESOGÜ BAP Komisyonu tarafından 202015A118 no.lu proje çerçevesinde
desteklenmiştir.

Haziran 2021

ETİK BEYAN

Eskişehir Osmangazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü tez yazım kılavuzuna göre, Prof. Dr. Ayşegül Aşkın danışmanlığında hazırlamış olduğum “Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Ağır Metal Giderimi ve Bir Endüstriyel Simbiyoz Uygulaması” başlıklı tezimin özgün bir çalışma olduğunu; tez çalışmamın tüm aşamalarında bilimsel etik ilke ve kurallara uygun davrandığımı; tezimde verdiğim bilgileri, verileri akademik ve bilimsel etik ilke ve kurallara uygun olarak elde ettiğimi; tez çalışmamda yararlandığım eserlerin tümüne atıf yaptığımı ve kaynak gösterdiğimi ve bilgi, belge ve sonuçları bilimsel etik ilke ve kurallara göre sunduğumu beyan ederim. 09/06/2021

Mürüvvet Arslan

ÖZET

Elektrokoagülasyon yöntemi ile nikel içeren atık suyun arıtımı gerçekleştirilmiştir. Elektrokoagülasyon işleminde özel tasarlanmış demir ve alüminyum elektrotlar kullanılmıştır. Deney parametrelerinin nikel giderim verimi ve enerji tüketimi üzerindeki etkisi “cevap yüzey” temelinde “Merkezi Karma Tasarım (Central Composite Design)” Design Expert 11 programı ile değerlendirilerek parametrelerin birbirleriyle ilişkileri belirlenmiştir. Hem Fe hem de Al elektrot kullanılarak modelin belirlediği 30 adet 15'er dakikalık elektrokoagülasyon deneyleri sonucunda, 4 faktör (akım yoğunluğu, pH, başlangıç derişimi, NaCl derişimi) beş seviyede parametrelerin nikel giderim verimi ve enerji tüketimi üzerine etkisi incelenmiştir. Ayrıca, arıtım sonunda geriye kalan elektokoagülasyon çamuru, seramik karo üretiminde değerlendirilerek bir endüstriyel simbiyoz uygulaması yapılmıştır.

Anahtar Kelimeler: Elektrokoagülasyon, Ağır Metal Giderimi, Nikel, Endüstriyel Simbiyoz

SUMMARY

The treatment of waste water containing nickel was carried out by electrocoagulation method. Specially designed iron and aluminum electrodes are used in the electrocoagulation process. The effects of the experimental parameters on the nickel removal efficiency and energy consumption were evaluated with the "Central Composite Design" Design Expert 11 program on the basis of "response surface" and the relations of the parameters with each other were examined. As a result of 30 pieces of 15-minute electrocoagulation experiments determined by the model using both Fe and Al electrodes, the effects of 4 factors (current density, pH, initial concentration, NaCl concentration) at five levels on nickel removal efficiency and energy consumption were investigated. The effects of operating parameters such as pH, current density, initial Ni concentration and supporting electrolyte concentration on removal efficiency and energy consumption were investigated. In addition, the electrocoagulation sludge remaining at the end of the treatment was evaluated in the production of ceramic tiles and an industrial symbiosis application was made.

Keywords: Electrocoagulation, Heavy Metal Removal, Nickel, Industrial Symbiosis

İÇİNDEKİLER

	<u>Sayfa</u>
ÖZET	vi
SUMMARY	vii
İÇİNDEKİLER.....	viii
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	xi
ÇİZELGELER DİZİNİ	xiii
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ	xiv
1.GİRİŞ.....	1
2.AĞIR METALLER VE GİDERİM YÖNTEMLERİ.....	4
2.1. Çökeltme.....	5
2.2. Elektroflotasyon	5
2.3. İyon Değişimi	6
2.4. Adsorpsiyon.....	6
2.5. Membran Filtrasyon	7
2.6. Fotokataliz	7
2.7. Elektrokoagülasyon	8
2.7.1. Akım yoğunluğunun etkisi	10
2.7.2. Başlangıç pH'nın etkisi	11
2.7.3. Destek elektrolit derişiminin etkisi.....	11
2.7.4. Başlangıç kirletici derişimi etkisi	11
3. ENDÜSTRİYEL SİMBİYOZ.....	13
4. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI	17
4.1. Elektrokoagülasyon ile Atık Sudan Ağır Metallerin Giderimi ile ilgili Yapılmış Çalışmalar.....	17
4.2. Metal İçeren Atıkların Değerlendirilmesi İle İlgili Endüstriyel Simbiyoz Çalışmaları.....	20
5. MATERYAL VE YÖNTEM	23
5.1. Atıksu ve Kimyasallar	23
5.2. Elektrokoagülasyon Deney Prosedürü	23

İÇİNDEKİLER (devamı)

	<u>Sayfa</u>
5.3. Analiz ve Hesaplamalar.....	24
5.3.1. Ni derişiminin belirlenmesi	24
5.3.2. Hesaplamalar	25
5.4. Cevap Yüzey Yöntemi (CYY; Response Surface Method)	25
5.5. Elektrokoagülasyon Çamurunun Karakterizasyonu	27
5.6. Elektrokoagülasyon Çamuru Katkılı Seramik Karo Üretimi	28
5.7. Üretilen Seramik Karoların Karakterizasyonu	29
6. BULGULAR VE TARTIŞMA	31
6.1. Matematiksel Model.....	31
6.2. Demir Elektrot Kullanılarak Elde Edilen Deney Tasarımı Sonuçları	32
6.2.1. Model sonuçları	32
6.2.2. Diagnostik grafikler	34
6.2.3. Akım yoğunluğu ile pH'ın giderim verimine etkisi	37
6.2.4. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin giderim verimi üzerine etkisi ..	38
6.2.5. Başlangıç Ni derişimi ve akım yoğunluğunun giderim verimine etkisi	39
6.2.6. Optimizasyon Sınırlılıkları ve Raporu.....	39
6.2.7. Enerji tüketiminin değerlendirilmesi	40
<u>6.2.7.1. Diagnostik grafikler.....</u>	<u>42</u>
<u>6.2.7.2. Akım yoğunluğu ve pH'ın enerji tüketimi üzerine etkisi</u>	<u>44</u>
<u>6.2.7.3. Akım yoğunluğu ve destek elektrolitin enerji tüketimi üzerine etkisi</u>	<u>45</u>
<u>6.2.7.4. Akım yoğunluğu ve başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi ..</u>	<u>45</u>
6.3. Alüminyum Elektrot kullanılarak Elde Edilen Deney Tasarım Sonuçları.....	47
6.3.1. Model sonuçları	47
6.3.2. Diagnostik grafikler	50
6.3.3. Akım yoğunluğu ile pH'ın giderim verimine etkisi	51
6.3.4. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin giderim üzerine etkisi	52
6.3.5. Başlangıç Ni derişimi ve akım yoğunluğunun giderim verimine etkisi	53
6.3.6. Optimizasyon sınırlılıkları ve raporu.....	54

İÇİNDEKİLER(devamı)

	<u>Sayfa</u>
6.3.7. Enerji Tüketiminin Değerlendirilmesi.....	54
<u>6.3.7.1. Dianostik grafikler.....</u>	<u>56</u>
<u>6.3.7.2. Akım yoğunluğu ve pH'ın enerji tüketimi üzerine etkisi.....</u>	<u>58</u>
<u>6.3.7.3. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi</u>	<u>59</u>
<u>6.3.7.4. Akım yoğunluğu ve başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi ...</u>	<u>59</u>
6.4. Hammaddelerin ve Elektrokoagulasyon Çamurunun Karakterizasyonu	61
6.5. Seramik Karoların Karakterizasyonu	64
7. SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....	71
KAYNAKLAR DİZİNİ.....	74
EK AÇIKLAMALAR	79
Ek Açıklamalar-A: Demir Elektrot İçin Model Tarafından Bulunan Çözümler	79
Ek Açıklamalar- B: Alüminyum Elektrot İçin Model Tarafından Bulunan Çözümler ...	83

ŞEKİLLER DİZİNİ

<u>Sekil</u>	<u>Sayfa</u>
2.1. EK reaktöründe alüminyum (Al) ve demir (Fe) elektrodu kullanılması durumunda gerçekleşen reaksiyonlar (Özlu,2016)	8
3.1. Endüstriyel simbiyoz projesinde yer alan Eskişehir şirketleri (International Synergies Limited,2019)	15
3.2. Endüstriyel simbiyoz vasıtası ile belirlenmiş Eskişehir kaynakları (International Synergies Limited, 2019)	16
5.1. Deney düzeneği.....	24
5.2. Öğütme işlemlerinde kullanılan bilyalı değirmen.....	28
5.3. Kamara tipi yüksek sıcaklık fırını	29
6.1. Tahmin dağılım grafiği	35
6.2. Tahmin ve gerçek dağılım grafiği	35
6.3. Hata dağılım grafiği	36
6.4. Deney yapılış sırasına göre hataların dağılımı	36
6.5. Akım yoğunluğu ile pH'ın giderim verimine etkisi	37
6.6. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin giderim verimi üzerine etkisi.....	38
6.7. Başlangıç Ni derişimi ve akım yoğunluğunun giderim verimine etkisi verimi üzerine etkisi	39
6.8. İhtimal dağılım grafiği.....	43
6.9. İhtimal ve gerçek dağılım grafiği	43
6.10. Deney yapılış sırasına göre hataların dağılımı.....	44
6.11. Akım yoğunluğu ile pH'ın enerji tüketimi üzerine etkisi.....	44
6.12. Akım yoğunluğu ile NaCl derişiminin enerji tüketimine etkisi.....	45
6.13. Akım yoğunluğu ile başlangıç derişiminin enerji tüketimine etkisi.....	46
6.14. Olasılık dağılım grafiği.....	50
6.15. Olasılık ve Gerçek Dağılım Grafiği.....	50
6.16. Hata dağılım grafiği.....	51
6.17. Deney yapılış sırasına göre hataların dağılımı.....	51
6.18. Akım yoğunluğu ve pH'ın giderim verimine etkisi.....	52
6.19. Akım yoğunluğu ve destek elektroit derişiminin giderim üzerine etkisi.....	53

ŞEKİLLER DİZİNİ (devamı)

<u>Sekil</u>	<u>Sayfa</u>
6.20. Başlangıç Ni derişimi ve akım yoğunluğunun giderim verimine etkisi.....	53
6.21. Olasılık dağılım grafiđi.....	57
6.22. İhtimal ve gerçek grafiđi.....	57
6.23. Deney yapılış sırasına göre hataların dağılım grafiđi.....	58
6.24. Akım yoğunluđu ve pH'ın enerji tüketimi üzerine etkisi.....	58
6.25. Akım yoğunluđu ve destek elektrolit derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi	59
6.26. Akım yoğunluđu ve başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi	60
6.27. Hammaddenin XRD spektrumu (K: Kaolinit, A: Albit, Z: Zirkon, S:Silikon Oksit) ...	62
6.28. EKÇ-Fe nin XRD spektrumu (M: Manyetit, N: NaCl)	63
6.29. EKÇ-Al nin XRD Spektrumu (N: NaCl, A: Al(OH) ₃)	63
6.30. Sinterlenmiş seramik örnekleri.....	65
6.31. 1020 °C'de R0 örneđinin SEM-EDX spektrumu.....	66
6.32. 1020 °C'de R2 örneđinin SEM-EDX spektrumu.....	66
6.33. 1050 °C'de R0 örneđinin SEM-EDX spektrumu.....	67
6.34. 1050 °C'de R2 örneđinin SEM-EDX spektrumu.....	67
6.35. Örneklerin (a) R0-1020 °C, (b) R2-1020 °C, (c) R0-1050 °C, (d) R2-1050 °C SEM görüntüleri.....	68
6.36. R0 ve R2 örneklerinin 1020 °C deki XRD spektrumu (A: Anorthit, Z: Zirkon, S:Silikon Oksit, H: Hematit)	69
6.37. R0 ve R2 örneklerinin 1050 °C deki XRD spektrumu (A: Anorthit Z: Zirkon, S: Silikon Oksit, H: Hematit)	70

ÇİZELGELER DİZİNİ

<u>Cizelge</u>	<u>Sayfa</u>
1.1. EK işleminin avantajları ve dezavantajları.....	10
5.1. Deney faktörleri ve seviyeleri.....	26
6.1. Modeli belirlediği deneyler ve sonuçları.....	31
6.2. Korelasyon katsayıları.....	32
6.3. İndirgenmiş kuadratik model için ANOVA Testi.....	33
6.4. Uyum istatistliği.....	34
6.5. Alt ve Üst Limitler.....	40
6.6. Enerji tüketimi için kuadratik model ANOVA testi.....	41
6.7. Uyum İstatistliği.....	42
6.8. Alt ve üst limitler.....	46
6.9. Model tasarımında bulunan çözümler.....	47
6.10. Korelasyon katsayıları.....	47
6.11. İndirgenmiş kuadratik model için ANOVA testi.....	48
6.12. Akım yoğunluğu ile NaCl derişiminin enerji tüketimine etkisi.....	49
6.13. Alt ve üst limitler.....	54
6.14. Enerji tüketim için kuadratik model ANOVA testi*.....	55
6.15. Uyum istatistikleri.....	56
6.16. Alt ve üst limitler.....	60
6.17. Model tasarımında bulunan çözümler.....	61
6.18. Hammaddelerin kimyasal analizi.....	61
6.19. Seramiklerin fiziksel özellikleri.....	64
6.20. Seramik örneklerin SEM analizi.....	65

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

Simgeler

°C	Santigrat derece
I	Akım (A)
i	Akım Yoğunluğu
M	Ağır Metal İyonları
t	Zaman
U	Uygulanan voltaj (V)
V	Atıksu hacmi
%	Yüzde

Kısaltmalar

Ag	Gümüş
Al	Alüminyum
ANOVA	Varyans Analizi
As	Arsenik
Cd	Kadmiyum
Cr	Krom
Cu	Bakır
ÇOI	Çözünmüş Oksijen İhtiyacı
DSC	Diferansiyel Taramalı Kalorimetri
EK	Elektrokoagülasyon
EKÇ	Elektrokoagülasyon Çamuru
ES	Endüstriyel Simbiyoz
Fe	Demir
FESEM	Emisyonlu Taramalı Elektron Mikroskobu
Hg	Cıva
ICP-MS	İndüktif Olarak Bağlanmış Plazma Kütle Spektrometresi
KOI	Kimyasal Oksijen İhtiyacı

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ (devam)

<u>Kısaltmalar</u>	<u>Açıklama</u>
M	Ağır Metal İyonları
Ni	Nikel
Pb	Kurşun
Zn	Çinko
XRD	X-Işını Kırınımı Spektroskopisi
XRF	X- Işını Floresans Spektroskopisi



1. GİRİŞ

Su kaynaklarının korunması, bugün insanoğlunun karşı karşıya olduğu en büyük zorluklardan biridir. Hızlı nüfus artışı, hızlı kentleşme, endüstriyel faaliyetlerde genişleme, ormanların azalması ve küresel ısınma gibi çok sayıda faktör su kıtlığına yol açmaktadır (El-Ashtoukhy vd., 2020). Okyanusların ve denizlerin tuzlu suları dünyadaki toplam suyun % 97'sinden fazlasını oluşturmaktayken, tatlı su kaynakları dünyadaki toplam suyun % 1'den azdır. Bu % 1'lik kısım da endüstriyel teknolojiler, tarım ve insan kaynaklı kirlilikler nedeniyle sürekli azalmaktadır (Al-Qodah ve Al-Shannag, 2017).

Endüstriyel atık suyun tanımı çok genişir ve evsel atık sudan farklıdır. Farklı endüstri türleri ve uygulanan süreçler sebebiyle, ortaya çıkan atık suyun bileşimi ve yapısı farklıdır (Crittenden vd., 2012). Tüm kirletici kaynakları için uygun arıtma tesisini kurmak zor, aynı zamanda da pahalıdır. Bu nedenle düşük yatırım ve bakım maliyetli, enerji açısından verimli, yenilikçi teknolojilere acil ihtiyaç vardır (Parmar ve Thakur, 2013).

Yoğunluğu 5 g/cm³'ten büyük ve atom numarası 20'nin üzerinde olan bir grup metale (ve metal benzeri elementlere) “ağır metal”, denilmektedir. İnsanlar için tehlikeli olan ağır metaller arasında Bakır (Cu), Çinko (Zn), Nikel (Ni), Kurşun (Pb), Cıva (Hg), Kadmiyum (Cd), Arsenik (As) ve Krom (Cr) bulunur. Bu tür metaller toprakta doğal olarak eser miktarlarda bulunmaktadır. Ancak belirli alanlarda yoğunlaştıklarında ciddi bir tehlike oluştururlar. Gıda zincirine kolayca girebilir, halk ve çevre sağlığı için risk oluştururlar. Ni zararlı etkisi çok olan bir ağır metaldir. Su ortamdaki yüksek çözünürlüğünden dolayı canlı mikroorganizmalar tarafından absorbe edilir. Besin zincirine girdikten sonra insan vücudunda birikerek vücuda ciddi sağlık bozukluklarına sebep olur. Ni derişiminin kritik düzeyi aşması, mide rahatsızlığı ve deri dermatiti dışında, beyin ve kemik hasarına, ciddi akciğer ve böbrek sorunlarına neden olabilir. Ayrıca Ni'in insanlarda kanserojen etkisi olduğu da bilinmektedir (Bazrafshan vd., 2015).

Endüstriyel faaliyetlerden biri olan metal kaplama sanayisi, hızla gelişen sanayi dalları arasında önemli bir yere sahiptir. Metal kaplama sanayinden kaplama işlemi sonrasında uygulanan durulama banyo işlemi sonrasında çevre kirliliğine sebep olan

organik maddeler, Ni, Cu, Fe, Cr, Zn vb. ağır metal bileşikleri, siyanür gibi katı, sıvı ve gaz atıklar ortaya çıkmaktadır. Metal kaplama sanayi kaplama atıksuyunda bulunan ağır metallere ötürü riskli sanayi sektörleri arasında yer almaktadır. Metalle kirlenmiş atıksuların alıcı ortama deşarj edilmeden önce arıtılması gereklidir.

Ağır metallerin atıksulardan uzaklaştırılması amacıyla çeşitli yöntemler kullanılmaktadır. Bunlar arasında kimyasal çöktürme, kimyasal indirgenme-yükseltgenme, iyon deęişimi, filtrasyon, elektrokimyasal yöntemler, membran teknolojisi, ters osmoz, adsorpsiyon gibi yöntemler sayılabilir.

Elektrokoagülasyon (EK) ilk olarak 1889'da İngiltere'de kanalizasyon arıtımı için gündeme gelmiş ve 1946'da ABD'de atık su arıtımı için kullanılmıştır. Ancak, EK uygulaması yüksek enerji maliyeti ve büyük sermaye yatırımları nedeniyle kısıtlanmıştır (Patrikar vd., 2020). Geçtiğimiz yirmi yılda elektrokimyasal atık su arıtma teknolojileri, arıtılmış suyun kalitesinden ödün vermeden minimum çamur üreten, kimyasal katkı gerektirmeyen ve minimum karbon ayak izi sağlayan bir seçenek olarak yeniden önem kazanmaya başlamıştır (Moussa vd., 2017).

EK, güç kaynağı ile paralel veya seri bağlanmış elektrot setleriyle kullanılır. Bu işlem başka herhangi bir kimyasal gerektirmez. Kullanılan ya demir (Fe) ya da alüminyum (Al) elektrotlardır. Al elektrot, suyun başlangıç pH'ı asidik ise pH'ı arttırması, başlangıç pH'ı alkali ise pH'ı düşürmesi avantajını sağlar. Bu nedenle, Al elektrot EK'da, pH nötürleştirici görevi görür. EK işlemi, çıkış suyunun pH ayarlaması gerekliliğini ortadan kaldırır (Patrikar vd., 2020).

EK, çevre dostu etkili bir teknoloji olmasına rağmen, doğru bertaraf edilmediğinde büyük miktarlarda atık çamur oluşumu dezavantajı bulunmaktadır. Oluşan katı atığın başka bir proses içerisinde değerlendirilmesi son zamanlarda gündeme gelmekle birlikte çok az çalışılmış bir konudur. Çevresel etkilerini minimuma indirebilmek amacıyla EK çamurunun seramik pigment (Tezcan Ün ve Ünal, 2013) üretiminde hammadde, tekstil boyasının (Yılmaz vd., 2011) uzaklaştırılmasında adsorban, biyo-yağ (Tezcan Ün vd., 2016) üretiminde de katalizör olarak değerlendirildiği çalışmalar bulunmaktadır.

Endüstriyel simbiyoz (ES) bağımsız işletmeleri, daha sürdürülebilir ve yenilikçi bir kaynak kullanımı çerçevesinde bir araya getiren bir yaklaşımdır. Endüstriyel işletmelerin karşılıklı fayda sağlayacakları ortaklıklar kurması olarak tanımlanan ES uygulamaları, işletmelere atık ve yan ürünlerin geri kazanılması, kaynak kullanımında tasarruf ve çevresel emisyonların azalması ile ham madde ve enerjinin verimli kullanılması gibi faydalar sağlar.

Son zamanlarda ES, atıkların değerlendirilmesini, kaynak verimliliğinin iyileştirilmesini ve çevresel etkinin azaltılmasını teşvik etmek için farklı sektörler arasında yaygın olarak uygulanmaktadır. Böylece kaynak kullanımı azalır, verimlilik artar, endüstriyel kaynaklı çevresel ve sosyal problemlerin önüne geçilebilir.

Bu çalışma iki basamakta gerçekleştirilmiştir. İlk basamakta, Ni içeren atık su özel olarak tasarlanan demir ve alüminyum elektrotlar içeren hücrede EK işleme tabi tutulmuş; başlangıç derişimi, akım yoğunluğu, pH ve destek elektrolitin Ni giderme verimliliği ile elektrik enerjisi tüketimi üzerindeki etkileri incelenmiştir. Çalışmada belirlenen deneysel parametrelerin optimizasyonu amacıyla Cevap Yüzey Yöntemi kullanılarak deney tasarımı yapılmıştır. EK süreci sonucunda atıksuyun arıtımı yapılırken aynı zamanda atık olarak da çamur oluşmaktadır. Bir sektörün atığının diğer sektörün hammaddesi olarak değerlendirildiği ES uygulaması ile oluşan bu çamur, kaplama tuğla üretiminde kullanılmıştır. Çalışma sonucunda sıfır atık ile atıksu arıtımı yapılırken, aynı zamanda kaplama tuğla üretiminde kullanılan geleneksel katkı maddelerinin yerine, atık çamur kullanılarak ekonomik katkı sağlanmıştır. Bu sayede hem atık suyun hem de EK çamurunun yaratacağı çevresel sorunlara çözüm getirilmiştir.

2. AĞIR METALLER VE GİDERİM YÖNTEMLERİ

Ağır metaller kimyasal özelliklerinde büyük farklılıklar gösterir ve elektronikte, makinelerde ve günlük yaşamın yanı sıra yüksek teknoloji uygulamalarında yaygın olarak kullanılır. Sonuç olarak, çeşitli antropojenik kaynaklardan ve ayrıca toprak ve kayaların doğal jeokimyasal ayrışmasından insanların ve hayvanların su ve besin zincirlerine girebilirler. Başlıca kaynakları arasında madencilik atıkları, çöp sızıntıları, belediye atıksuları, kentsel akış ve özellikle elektrokaplama, elektronik ve metal kaplama endüstrilerinden gelen endüstriyel atık sular yer alır. Teknoloji faaliyetlerinden metal üretiminin artmasıyla birlikte, atık bertarafı sorunu en önemli konulardan biri haline geldi. Birçok su ortamı, çevreyi, hayvanları ve insanları korumak için tasarlanmış su kalitesi kriterlerini aşan metal derişimleriyle karşı karşıyadır. Metallerin tortularla taşınma eğiliminde olmaları, çevrede kalıcı olmaları ve besin zincirinde biyolojik olarak birikebilmeleri nedeniyle sorunlar daha da artmaktadır. Dünyadaki en eski çevre kirliliği vakalarından bazıları, örneğin Cu, Hg ve Pb madenciliği, eritme ve Romalılar ve Fenikeliler gibi eski uygarlıklar tarafından kullanılması gibi ağır metal kullanımından kaynaklanmaktadır. Ağır metaller, atık sularda bulunan en yaygın kirleticiler arasındadır (Cora- Hernandez M. G. R. 1992).

Ni, topraklarda ve volkanik kayalarda doğal olarak bulunur. Nikel ve tuzları elektrokaplama, otomobil ve uçak parçaları, piller, madeni paralar, bujiler, kozmetikler ve paslanmaz çelik gibi çeşitli endüstriyel uygulamalarda kullanılır ve endüstriyel ölçekte nikel-kadmiyum pillerin üretiminde yaygın olarak kullanılır. Kayaların ve toprağın ayrışması ve minerallerin sızması yoluyla doğal olarak su kütlelerine girer. Nikelin suda çözünür tuzları, su sistemlerinde kirlenmenin başlıca problemleridir. Boya formülasyonu ve emaye endüstrisi, nikel içeren atık suları yakındaki su kütlelerine boşaltır. Nikel ayrıca, yaygın olarak nikel karbonil olarak bilinen uçucu bir bileşik olarak sigaralarda da bulunur (Sharma K. S. 2015).

Ni atıksularının birincil kaynağı metal işleme endüstrileri ve kaplamadır. Ni bulunduran atıksuların en yaygın kaynağı kaplama çalışmaları olmasına rağmen pek çok endüstriyel çalışmalar sonucu meydana gelebilmektedir. Ni yüksek seviyede gümüş

rafinelelerinden meydana gelen atıklar içinde bulunduğu, çelik üretme, dökümhaneler, motorlu taşıt ve uçak endüstrisinden gelen atıklar içinde tespit edilmiştir. Alkali sıvılar bazı Ni alaşımlarının yüzeyinin hazırlanmasında kullanılmaktadır. Ni ağır metali pek çok endüstriyel atıksuda mevcuttur ve uzaklaştırılması için çöktme, iyon değişimi, elektroflotasyon, fotokaliz, EK farkı yöntemler mevcuttur (Danış, 1996).

Endüstriyel atık suları arıtmak için farklı yöntemler kullanılmaktadır. Her birinin kendi avantajları ve dezavantajları vardır. Aşağıdaki bölümde bazı temel arıtım yöntemleri kısaca özetlenmiştir.

2.1. Çöktme

Çöktme, kirleticilerin (çözünmüş veya süspansiyon halinde) çöztiden bir tortu olarak ayrıldığı, daha sonra filtrelenebilen, santrifüjlenebilen veya sıvı kısımdan başka şekilde ayrılabilirdiği bir yöntemdir. Çöktme, çöktme maddesi ile ağır metal iyonları arasında metallerin biyo yararlanımını azaltan bir kompleks oluşumunun bir sonucu olarak oluşur (Pohl, 2020). Çöktme, kimyasal çöktme, hidroksit çöktme ve sülfat çöktme gibi üç çöktme yöntemini içerir. Bu süreçte eklenen kimyasallar, çözünürlüklerini azaltmak için ağır metal iyonlarıyla reaksiyona girer. Oluşturulan katı faz, filtrasyon veya çöktme yoluyla çöztiden kolayca ayrılır. Ucuz, kullanım kolaylığı ve metallerin çoğunun gideriminde kullanılabilir olması, yöntemin avantajlarıdır. Büyük çamur oluşumu ve çamurun yönetim ise bu yöntemin dezavantajlarıdır (Shahedi vd., 2020).

2.2. Elektroflotasyon

Elektroflotasyonda, ayırma işlemi sıvı içerisinde oluşturulan gaz kabarcıkları kabarcıkları ile gerçekleştirilmektedir. Bu kabarcıklar suyun elektrolizi ile oluşturulmaktadır. Su içinde bulunan kirleticiler oluşan bu gaz kabarcıkların kirleticileri tutarak yüzeye çıkarması ile ayrılır. Gaz, sıvı ve katı kirleticilerde uygulanabilmekte ve çeşitli endüstriyel ünitelerden oluşan kirleticilerin (ağır metal, yağ, boyar madde, deterjan vb.) azaltılması, arıtımı ve uzaklaştırılmasında kullanılmaktadır. Avantajı ana reaktif maddesinin elektron olması, elektrokimyasal işlemler neticesinde yeni ürünlerin oluşması ve ortamdaki kirleticilerin giderilmesi veya zararsız hale dönüşmesini olanak sağlayarak

çevrenin dengesinin korunmasını sağlamaktadır (Özyonar, 2020). Su ve atık su arıtmada, yüzdürme, petrol ve düşük yoğunluklu askıda katıların ayrılması için kullanılmaktadır. Ayrıca elektroflotasyon, maden atık suyu, gıda işleme atık suyu, kentsel kanalizasyon, koloidal parçacıklar, atık sular içeren ağır metaller, siyanür çözeltilerinden altın ve gümüş geri kazanımı ve diğer birçok su ve atık sudan atık suların arıtılmasında etkilidir (Chen, 2004).

2.3. İyon Değişimi

İyon değişimi, çözelti veya elektrolit veya erimiş tuzdan elde edilen bir iyonun, hareketsiz ve çözünmez bir katı malzemeye bağlanmış benzer şekilde yüklü bir iyonla değiştirildiği ve genel elektronötralliyeti koruduğu tersine çevrilebilir bir stokiometrik kimyasal reaksiyondur (Bashir vd., 2019). İyon değiştirme işlemleri, yüksek arıtma kapasitesi, yüksek temizleme verimliliği ve hızlı kinetik gibi birçok avantajı nedeniyle ağır metalleri atık sudan çıkarmak için yaygın olarak kullanılmaktadır. Sentetik veya doğal katı reçine olan iyon değişim reçinesi, katyonlarını atık sudaki metallerle değiştirme özelliğine sahiptir. İyon değiştirme işlemlerinde kullanılan malzemeler arasında sentetik reçineler, çözeltilerden ağır metalleri gidermede etkili oldukları için yaygın olarak tercih edilmektedir. En yaygın katyon değiştiriciler sülfonik asit grupları ($-SO_3H$) içeren kuvvetli asidik reçineler ve karboksilik asit grupları ($-COOH$) olan zayıf asit reçineleridir (Fu ve Wang, 2011).

2.4. Adsorpsiyon

Adsorpsiyon, bir sıvı çözünen maddenin (adsorbat) bir katının (adsorban) yüzeyinde birikmesi ve bir moleküler veya atomik film oluşturması durumunda gerçekleşen süreçtir. Farklı yapıya sahip çok sayıda adsorban vardır ve bunlar, atık su maddelerinden zararlı ağır metal iyonlarını uzaklaştırmak için başlangıç veya değiştirilmiş formlarda kullanılabilir. En sık kullanılanlar aktif karbonlar, zeolitler, kil mineralleri, endüstriyel katı atıklar ve biyomalzemelerdir (Burakov vd., 2018). Adsorpsiyon işlemleri, atık sularından ağır metallerin uzaklaştırılması için çeşitli araştırmacılar tarafından aktif karbon yaygın olarak kullanılmaktadır. Su ve atık su arıtma endüstrilerinde yaygın kullanımına rağmen, aktif karbon pahalı bir malzemedir. Son yıllarda, ağır metallerin kirli

sulardan uzaklaştırılması için güvenli ve ekonomik yöntemlere duyulan ihtiyaç, ticari olarak temin edilebilen aktif karbon düşük maliyetli alternatiflerin üretilmesine yönelik araştırmayı gerekli kılmıştır. Bu nedenle, tüm olası tarıma dayalı ucuz adsorban kaynaklarının araştırılması ve bunların ağır metallerin çıkarılması için fizibilitelerinin ayrıntılı olarak incelenmesi gerekmektedir (Hegazi, 2013).

2.5. Membran Filtrasyon

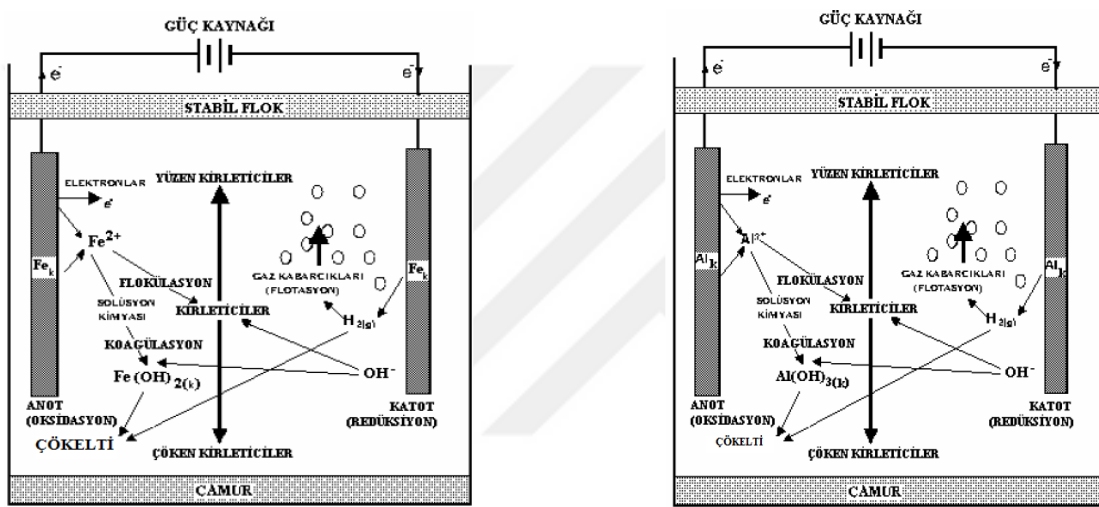
Membran filtrasyon işlemi, farklı boyut ve özelliklere sahip molekülleri ayırma kabiliyeti ile karakterize edilen fiziksel bir ayırma yöntemidir. İtici gücü, özel bir membranın iki tarafı arasındaki basınç farkıdır. Membran teknolojisi, genel üretim maliyetlerini düşürmenizi ve aynı zamanda ürün kalitesini artırmanızı sağlar. Membran filtrasyonu, inorganik atıkların arıtılmasında büyük ilgi görmüştür, askıda katı ve organik bileşikler değil, aynı zamanda ağır metaller gibi kirleticileri de uzaklaştırabilmektedir. Tutulabilen parçacığın boyutuna bağlı olarak, atık sudan ağır metalin uzaklaştırılması için ultrafiltrasyon, nanofiltrasyon ve ters ozmoz gibi çeşitli membran filtrasyonu türleri kullanılabilmektedir (Barakat, 2011).

2.6. Fotokataliz

Fotokataliz, bir ışık kaynağı ile fotokatalizörler olarak adlandırılan yarı iletken malzemelerin yüzeyiyle etkileşime girdiğinde meydana gelen aktivitedir. Bu işlem sırasında, en az iki eşzamanlı fotojenere edilmiş deliklerden oksidasyon ve fotojenere elektronlardan indirgeme reaksiyonu meydana gelmektedir. Fotokatalitik süreç, çevre kirleticilerinin hızlı ve verimli bir şekilde yok edilmesi için kullanılmaktadır. Yarı iletken bant aralığından daha büyük ışık enerjisi ile yarı iletken-elektrolit arayüzünün aydınlatılması üzerine, yarı iletkenin iletiminde ve değerlik bandında sırasıyla elektron deliği çiftleri (e^- / h^+) oluşur. Yarı iletken yüzeyine göç eden bu yük taşıyıcıları, uygun redoks potansiyeline sahip çözelti içindeki türleri azaltabilir veya oksitleyebilir. Çeşitli yarı iletkenler kullanılmıştır: TiO_2 , ZnO , CeO_2 , CdS , ZnS , vb. Genel olarak en iyi fotokatalitik performanslar her zaman titanyum dioksit ile elde edilir. Endüstriyel atık ve tarımsal atık suları arıtma, kendi kendini temizleyebilme özelliği vardır. (Barakat, 2011).

2.7. Elektrokoagülasyon

Son yıllarda EK çevre dostu ve verimli bir teknoloji olması nedeniyle büyük ilgi görmekte ve çeşitli kirlenmelerin gideriminde kullanılmaktadır. EK bir anot ve bir katot içeren elektrolitik bir hücreden oluşur. EK ile işlenecek çözelti reaktöre doldurulur. Aynı veya farklı iletken metalden yapılmış elektrotlar, anot ve katot olarak çözültiye daldırılır ve bir güç kaynağına bağlanır. Al elektrodu ve Fe elektrodu kullanılması halinde süreçte meydana gelen reaksiyonlar Şekil 2.1’de gösterilmektedir.



Şekil 2.1. EK reaktöründe alüminyum (Al) ve demir (Fe) elektrodu kullanılması durumunda gerçekleşen reaksiyonlar (Özlu, 2016)

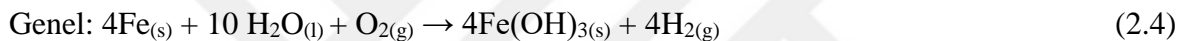
Genel olarak, EK sürecinin birbirini takip eden üç süreci içerdiği kabul edilir;

- Elektrotun elektrolitik oksidasyonu ile pıhtılaştırıcı oluşumu.
- Kirlenmiş maddelerin ve partikül süspansiyonunun dengesizliği ve emülsiyonların kırılması.
- Kararsızlaştırılmış parçacıkların topaklar oluşturmak için toplanması (Yavuz ve Ogütveren, 2017).

EK da yaygın olarak kullanılan elektrotlar Al ve Fe elektrotlardır. Al ve Fe anotlardan akım geçtiğinde sırasıyla Al^{3+} ve Fe^{2+} iyonları oluşur. Katotta hidrojen gazı ve hidroksit iyonları aynı anda salınır. Bu hidroksit iyonları, çözelti içindeki Al^{3+} ve Fe^{2+}

iyonları ile birleşerek pıhtılaştırıcı görevi gören Al ve Fe hidroksitleri ($\text{Al}(\text{OH})_3$, $\text{Fe}(\text{OH})_2$ ve $\text{Fe}(\text{OH})_3$ gibi) oluşturur. Bu metal hidroksitler atıksu ortamındaki farklı kirlilik parametrelerini adsorbe ederek çökmesini sağlar. Metal hidroksit oluşumu suyun pH'ına bağlı olarak değişebilmektedir. EK sonucunda pH'a bağlı olarak $\text{Fe}(\text{H}_2\text{O})_6^{3+}$, $\text{Fe}(\text{H}_2\text{O})_5^{2+}$, $\text{Fe}(\text{H}_2\text{O})_4(\text{OH})_2^+$, $\text{Fe}(\text{H}_2\text{O})_3(\text{OH})_3$ ve $\text{Fe}_2(\text{H}_2\text{O})_6(\text{OH})_4^{4+}$ bileşikleri oluşabilmektedir. Fe elektrotta iki mekanizma önerilmiştir. Eşitlik 2.1-2.8 de gösterildiği gibidir (Chouhan vd., 2018). Eşitlik 2-9 ve 2-10 Al elektrot için mekanizmalar önerilmiştir.

▪ Mekanizma 1:



▪ Mekanizma 2:



Al elektrot reaksiyonları aşağıdaki eşitlik 1.9 ve 1.10 daki gibidir:



EK süreci; ağır metallerin, yağ ve gresin, karmaşık organiklerin, mikroorganizma ve virüslerin, askıda ve koloidal katıların gideriminde, yağ emülsiyonlarının sudan ayrılmasında kullanılır.

EK, kirli atık suyun sürdürülebilir ve ekonomik bir şekilde arıtılmasını sağlayarak klasik arıtma tekniklerinin dezavantajlarını ortadan kaldırma potansiyeline sahiptir (Oncel vd., 2013). Çizelge 2.1'de EK 'ın avantaj ve dezavantajları verilmiştir.

Çizelge 2.1. EK işleminin avantajları ve dezavantajları (Babu vd., 2020)

AVANTAJLARI	DEZAVANTAJLARI
Basit donanımlıdır, daha az bakım gerektirir, kullanımı kolaydır.	Bakım ihtiyacı ve elektrotların düzenli olarak değiştirilmesi gereklidir.
Sisteme herhangi bir harici kimyasal ilavesi olmadığından ikincil bir kirliliğe neden olmaz.	Atık suyun iletkenliği
Renk, koku, KOİ (Kimyasal oksijen ihtiyacı), ÇOI (çözünmüş oksijen ihtiyacı) vb. sorunlar içeren hemen hemen her türlü atık suyu arıtmak için kullanılabilir	Elektrot yüzeyinde oksit tabakası oluşumu elektrotun pasifleşmesine neden olur.
Küçük kolloid partikülleri çökertebilir.	Jelatinimsi maddeler uzun süre ayrılmadan tutulduğunda çözünebilir.
Elektroliz sırasında oluşan gaz kabarcıkları, kirlenici maddeyi çözeltilinin üstüne taşıyabilir ve uzaklaştırılabilir.	
Diğer ayırma yöntemlerine göre daha az çamur oluşur ve oluşan bu çamur çok hızlı çökeltir.	
Metalik oksitler/hidroksitlerin varlığından dolayı susuzlaştırma işlemi oldukça kolaydır.	

Elektrokoagülasyon sürecine etki eden faktörler aşağıda anlatılmıştır.

2.7.1. Akım yoğunluğunun etkisi

EK sürecindeki önemli bir parametre, mevcut yoğunluktur, çünkü reaksiyon kinetiği üzerinde önemli bir etkiye sahiptir. Akım yoğunluğu, anodik çözünmenin boyutu ile ilgilidir. Aynı zamanda, elektrolitik gaz üretim hızı ve kabarcıkların boyutu da uygulanan akım yoğunluğuna bağlıdır. Bu nedenle akım yoğunluğu, pıhtılaştırıcı dozajını, kirlenici maddenin yüzdürme yoluyla uzaklaştırılmasını ve çözeltilinin karıştırılmasını doğrudan etkiler (Ribeiro vd., 2019). Literatür kaynakları, vaka çalışmasına bağlı olarak 1-

100 mA/cm² arasında uygulanan çok çeşitli akım yoğunluklarını bildirmektedir. Açıkta ki, farklı durumlarda farklı akım yoğunlukları arzu edilir. Yüzdürme hücreleri veya büyük çökeltme tanklarını içeren ayırma işlemleri için yüksek akım yoğunluklarına ihtiyaç duyulurken, küçük akım yoğunlukları geleneksel kum ve kömür filtreleriyle entegre olan elektrokoagülatörler için uygundur. Sistematik bir analiz, akım yoğunluğu ve hedeflenen yeniden değer (ayırma) etkileri gerektirir. Tipik bir EK deneyinde, elektrot veya elektrot tertibatı genellikle bir dış doğru akım kaynağına bağlanır (Kabdaşlı vd., 2012)

2.7.2. Başlangıç pH'nın etkisi

Bir çözeltinin başlangıç pH'nın önemli bir faktör olduğu ve elektro pıhtılaşma işleminin performansı üzerinde önemli bir etkiye sahip olduğu tespit edilmiştir (Nwabanne vd., 2018). pH, bir çözeltinin asitlik veya bazlık derecesi hakkında bilgi verir. pH, ortamda oluşan elektrolitik reaksiyonları hemen etkilediğinden büyük öneme taşımaktadır. EK prosesinde katı metal hidroksitlerin oluşumunda pH birinci dereceden etkilidir (Eroğlu Önpeker, 2017).

2.7.3. Destek elektrolit derişiminin etkisi

EK'nın verimini yükseltmek ve atıksuyun iletkenliğini belirlenen düzeye getirmek için sodyum nitrat, sodyum sülfat gibi inert tuzlar, NaCl, KBr gibi halojenli tuzlar ya da deiyonize su kullanılmaktadır. Bu ayarlama atıksuyun başlangıç pH'ında yaklaşık olarak 0,3 birim değişime sebep olmaktadır (Güney 2013).

2.7.4. Başlangıç kirletici derişimi etkisi

EK reaktörünün performansı, başlangıçtaki kirletici derişimine bağlıdır. Farklı farklı derişimler denenmiştir. Kirletici maddelerin derişimini uzaklaştırma verimini etkiler çünkü pıhtılaşma sıfıncı derece reaksiyon kinetiğini takip etmez, daha çok sözde ikinci veya birinci derece kinetiği takip eder (Vepsalainen ve Sillanpaa).

Sıcaklık gibi ilk kirletici derişimi, konumlara ve mevsimlere göre deęişir ve etkisi de kirletici tipinin (çözünür veya çözünmez, inorganik veya organik...) bir fonksiyonudur. Bununla birlikte, kirletici giderme verimlilięi, genellikle sabit bir akım yoğunluęunda kirleticinin başlangıç derişimindeki artışla azalır. Bunun nedeni, üretilen metal hidroksit yumaklarının miktarının, daha yüksek başlangıç kirletici derişimlerinde yüksek miktardaki kirletici molekülleri pıhtılaştırmak için yetersiz olmasıdır. Yüksek kirletici başlangıç derişiminde, akım yoğunluęunun, özellikle EK' nin erken aşamalarında, giderme verimlilięi üzerinde genellikle önemli bir etkisi yoktur. Modirshahla ve vd. , 4-nitrofenolün giderim etkinlięinin, ilk derişimi 15' ten 35 mg/L' ye yükseldięi için % 99.9'dan %88'e düştüğünü bildirmiştir ki bu, kirletici ne olursa olsun, literatürde bildirilen en yaygın eğilimdir (Fayad 2017)

3. ENDÜSTRİYEL SİMBİYÖZ

1989'dan beri endüstriyel ekoloji, endüstriyel gelişim üzerine yeni bir bakış açısı yaratmıştır: Artık endüstriyel kompleksler, enerji, su ve malzeme kaynaklarını en iyi şekilde kullanırken aynı zamanda atıkları en aza indirmek için doğal ekosistemlere benzeyecek şekilde tasarlanmaktadır. Endüstriyel ekolojinin bir parçası olarak, endüstriyel simbiyoz çalışmaları ve teşvikleri giderek artan bir ilgi görmektedir (Heeres vd.,2004). Ortaya çıkan endüstriyel ekoloji alanı çerçevesinde yerel, bölgesel ve küresel ekonomiler aracılığıyla malzeme ve enerji akışına kararlı bir şekilde dikkat edilmesini gerektirir. Endüstriyel ekolojinin bir parçası olan endüstriyel simbiyoz, ayrı işletmeleri/tesisleri, fiziksel malzeme, enerji, su ve yan ürünlerin değişimini içeren fiziksel rekabet avantajına yönelik kolektif bir yaklaşımla birleştirir. ES'un anahtarları, işbirliği ve coğrafi yakınlığın sunduğu olanaklardır (Chertow, 2000).

İşletmeler, birlikte çalışarak, tek başına elde edilebilecekleri bireysel faydalardan daha büyük fayda elde etmeye çalışırlar. Bu tür işbirliği, katılımcılar arasındaki sosyal ilişkileri geliştirebilir, bu gelişim çevredeki komşu işletmelere kadar uzanabilir (Zhu vd., 2007).

Endüstriyel ekoloji alanında, ES, daha eko-verimli bir endüstriyel sisteme ilerlemek için bir değişim yapıları gövdesi olarak ortaya çıktı. ES ağları, farklı organizasyon birimleri arasında işbirliğine dayalı bir bilgi, malzeme ve enerji alışverişi ağı kurarak, işlenmemiş malzeme alımını azaltmayı ve endüstriyel sektör tarafından atık üretimini düşürmeyi amaçlamaktadır. ES ağlarının işleyişinin anlaşılmasına katkı sağlamayı amaçlayan çalışmalar yapılmıştır. Domenech ve Davies (2011)'in yaptıkları çalışmada, Sosyal Ağ Analizi (SAN) ana metodolojik çerçeve olarak benimsemiş ve Kalundborg'daki (Danimarka) ES ağına uygulanmıştır, bu da ağın yapısal özelliklerinin analizinde ve farklı aktörlerin rolünün anlaşılmasında yararlı olduğunu kanıtlamaktadır. Oysa. Makale, SAN'nın ES ağlarının yapısal unsurlarını anlamak için kapsamlı bir metodolojik ve analitik çerçeve sağladığı sonucuna varmışlardır.

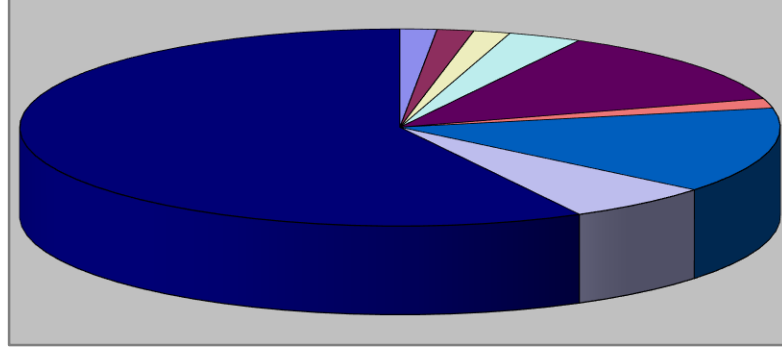
Türkiye'de son otuz yıldır yaşanan hızlı sanayileşme ve kentleşme, atıkların bertarafı, kaynakların daha verimli kullanımı ve daha yeşil endüstriyel yapıya dönüşme ihtiyacı gibi konulara yönelme zorunluluğunu getirmiştir. Türkiye 10. Kalkınma Planı'nda öncelikli hedefleri çevrenin korunması ve kaynakların sürdürülebilir kullanımınıdır. Bu bağlamda, endüstriyel simbiyoz, birçok ulusal politika belgesinde bu hedeflere ulaşmak için stratejik bir araç olarak tanımlanmaktadır. Bölgesel politika belgelerinde ekoverimlilik ve bölgesel rekabet gücü hedeflerine ulaşmak için bir araç olarak da belirtilmektedir (International Synergies Limited, 2019).

Türkiye'de, Ocak 2011-Şubat 2014 tarihleri arasında İskenderun Körfezi'nde (Eroğlu Önpeker, 2017) “Endüstriyel Simbiyoz Projesi-Uygulama Aşaması” kapsamında ES yaklaşımı hayata geçirilmiştir (Alkaya vd., 2014).

Eskişehir Sanayi Odası çeşitli endüstriyel simbiyoz projeleri yürütmektedir. Bu projelerden birinde Horizon-2020 tarafından finanse edilen Uluslararası Sinerjiler ile Organize Sanayi Bölgesi ve Eskişehir Sanayi Odasının ortaklığında yapılan SHAREBOX (Hibe Numarası 680843 - <http://sharebox-project.eu/>) projesidir. Bu proje endüstriyel simbiyozu desteklemek için yeni nesil Bilgi İletişim Teknolojilerinin geliştirilmesi üzerinedir. Proje, Eskişehir'de işletmeleri biraraya getirmek için Ulusal Endüstriyel Simbiyoz Programı (NISP) tarzı olan atölye (workshop) ve SYNERGie® yazılım faaliyetleri ile başlamıştır. (International Synergies Limited, 2019).

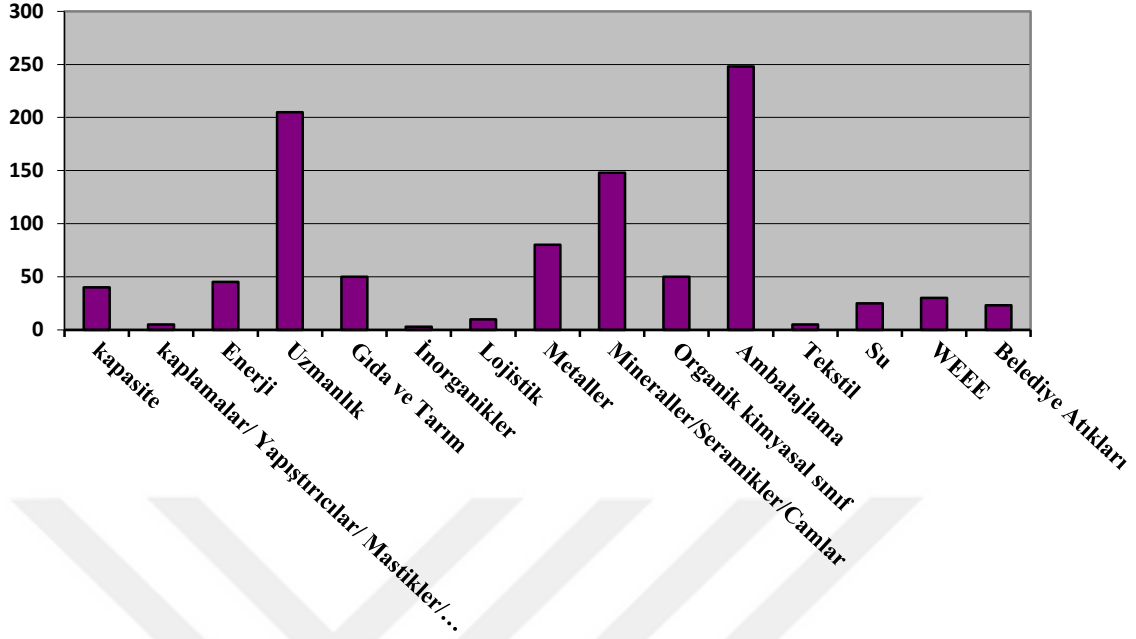
Analizler, SYNERGie® yazılımının raporlama işlevinden alınmıştır. Eskişehir için Şekil 3.1 ve Şekil 3.2' de sunulan ES sonuçları, H₂O₂0 projesi tarafından finanse edilen SHAREBOX11 (2015-2019) proje faaliyetlerin sonucudur. Altmış dört ayrı şirket tesis bu projeye dahil olmuştur: Sektörel dağılımı Şekil 3.1' deki gibidir. Çoğunluğu (64 şirketin 37'si) üretim sektöründendir. 944 kaynağın kategorilere göre dağılımı Şekil 3.2'de gösterilmektedir. Ambalajlama en çok rapor edilen kaynaktır (International Synergies Limited, 2019).

Sektörlere Göre Şirket Sayısı



Şekil 3.1. Endüstriyel simbiyoz projesinde yer alan Eskişehir şirketleri (International Synergies Limited, 2019).

Kaynak sayısı



Şekil 3.2. Endüstriyel simbiyoz vasıtası ile belirlenmiş Eskişehir kaynakları (International Synergies Limited, 2019)

ES, şirketlerin kaynak kullanım verimliliği ve etkinliğinde önemli bir geliştirme sağlayabilir. Bu bağlamda “kaynak” terimi geniş bir anlam içerir ve hammaddeyi, enerji taşıyıcılarını, suyu, üretim altyapısını, taşımayı, lojistik altyapıyı, insan kaynaklarını, atık yönetimi ve bertaraf alt yapı bileşenleri bu kaynakların daha etkin ve verimli kullanılması, çevreye verilen zararın en aza indirilmesini ve rekabet kapasitesini artıracak ekonomik kazanımları sağlayacaktır (Alkaya vd., 2014).

4. LİTERATÜR ARAŞTIRMASI

4.1. Elektrokoagülasyon ile Atık Sudan Ağır Metallerin Giderimi ile ilgili Yapılmış Çalışmalar

Kabdaşlı ve vd. (2009), paslanmaz çelik elektrotlar kullanarak, EK ile Ni ve Zn kaplama atıksuyundan kompleks organik bileşiklerin, Ni ve Zn metallerinin giderimi üzerine çalışmışlardır. Süreç performansına etki eden çeşitli işletme parametrelerini araştırmış ve elektrolit derişiminin arıtım üzerine fazla etkili olmadığı sonucuna varmışlardır. Toplam organik karbon gideriminde ise % 66 verim elde etmişlerdir.

Aji ve vd. (2012), Cu, Ni, Zn ve mangan (Mn) içeren model atık suyun arıtımı için monopolar konfigürasyona sahip Fe elektrotlar kullanarak EK yönteminin performansını araştırmışlardır. Akım yoğunluğunun, başlangıç metal derişiminin ve başlangıç pH'nın arıtım verimi üzerindeki etkilerini ve en iyi deney koşullarını belirlemişlerdir. 25 mA/cm²'lik akım yoğunluğunda, Mn için % 72,6 giderim elde ederken, diğer metaller için 49 kWh/m³ toplam enerji tüketimi ile % 96'dan fazla giderim verimi elde etmişlerdir.

Akbal ve Camcı (2011), metal kaplama atık suyundan Cu, Cr ve Ni giderimi için monopolar yapıda Fe ve Al elektrotlar kullanmışlardır. Elektrot malzemesi, akım yoğunluğu, atık su pH ve iletkenliği gibi parametrelerin arıtıma etkilerini belirleyerek elektrot malzemesinin (Fe, Al) verimliliğini karşılaştırmışlardır. Sonuçta, 10 mA/cm² akım yoğunluğu ve pH 3'te 20 dakikalık EK sonunda % 100 lük Cu, Cr ve Ni giderimi elde ederek Fe-Al elektrot çifti ile yapılan EK' nin çok verimli olduğunu göstermişlerdir.

Lu ve vd. (2015), ağır metal iyonlarının gideriminde sürekli EK giderim mekanizmasını araştırmışlardır. Ni²⁺ içeren su, model atık su kullanarak zorunlu konveksiyon altında EK hücresinde gerçekleşen kütle aktarımını incelemişlerdir. Arıtım performansının geri karıştırma derecesi, akım yoğunluğu veya kalma süresinin artmasıyla arttığını gözlemlemişler. EK işleminde Al iyonu veya Fe iyonunun kullanım oranını ölçmek için yeni bir evrensel parametre olan M/Al'in molar oranı (M ağır metal iyonlarıdır) kavramını kullanmışlardır (M/Al, EK da elektrolitik olarak elde edilen Al

iyonlarının (veya Fe elektrot kullanılıyorsa Fe iyonunun) kullanım oranını ölçmek için kullanılır). M/Al oranının, akım yoğunluğunun ve alıkonma süresinin artmasıyla azaldığını bulmuşlardır. Optimizasyon ve reaktör tasarımı, M/Al oranının optimizasyonuna dayandırmışlardır.

Ferreira ve vd. (2013), Cu, Zn ve Ni ile yapay olarak kirletilmiş, düşük iletkenliğe sahip doğal su (musluk suyu) kullanarak EK yöntemi ile arıtım çalışmışlardır. Al elektrotlar kullanıldığında, 60 dakikalık bir işlem sonrasında % 95'in üzerinde giderim elde edilmiştir. Yüksek giderim verimi elde etmek için destek elektrolit eklenmesinin gerekli olmadığını belirlemiştir.

Heidmann ve Calmano (2008)'nin çalışmasında ağır metal iyonlarını (Zn^{2+} , Cu^{2+} , Ni^{2+} , Ag^+ , $Cr_2O_7^{2-}$) gidermek amacıyla laboratuvar ölçeğinde EK sisteminin Al elektrot ile performansı incelenmiştir. Başlangıç metal derişimi, mevcut metal sayısı ve akım yoğunluğu gibi çeşitli parametrelerin EK süreci üzerindeki etkileri araştırılmıştır. 50 ile 5000 mg/L arasındaki başlangıç derişimleri Zn, Cu, Ni ve Ag, giderim oranlarını etkilemezken, daha yüksek başlangıç derişimleri, Cr giderim oranını etkilemiştir. Akım yoğunluğun artırılması EK sürecini hızlandırmış, ancak daha az verimli hale getirmiştir. Zn, Cu ve Ni'in EK giderim hızlarının birbirine yakın değerler göstermiştir.

Al-Shannag ve vd. (2015), EK yöntemi ile Cu^{2+} , Cr^{3+} , Ni^{2+} ve Zn^{2+} , gibi ağır metalleri monopolar yapıları bir elektrotreaktör kullanarak uzaklaştırmışlardır. Ağır metal iyonlarının giderim etkinliğinin, kalma süresinin ve akım yoğunluğunun artmasıyla arttığını belirlemiştir. 6,25 kWh/m³ spesifik enerji tüketimine ve 1,31 kg/m³ çözünmüş elektrot şartlarında % 97'nin üzerinde ağır metal giderimine ulaşmışlardır. Kinetik çalışma ile de birinci dereceden modele uyduğunu belirlemiştir.

Heidmann ve Calmano (2010)'nin çalışmasında; galvanik atık sudan Ni, Cu ve Cr giderimi için Al elektrotlar kullanılarak EK sisteminin laboratuvar ölçeğinde performansı incelenmiştir. Elektrot malzemesi ve düzeni, başlangıç pH'ı ve uygulanan akım gibi çeşitli parametreler ve bunların EK verimliliği üzerindeki etkilerini araştırılmıştır. Galvanik atık suyun (pH 1,5'te 2 g/L Ni, 2,5 g/L Cu ve 0,7 g/L Cr derişimi özelliklerde) en iyi arıtım sonuçları başlangıç pH'ının 5 den yüksek olduğu şartlarda ve Fe- Al kullanılmasıyla elde

edilmiştir. 0,2 Amper'de Fe elektrotlar ile 1,5 Amperde Al elektrotlar ile ve başlangıç pH'ı 5,0'de, 180 dakika EK sonucunda metal derişimleri 1,5 mg/L Cr, 6,5 mg/L Cu ve 65,3 mg/L Ni derişimlerine düşmüştür.

Rehman ve vd. (2015), endüstriyel atık sudan ağır metallerin uzaklaştırılması için Al ve Fe elektrotları kullanarak EK performansına çalışma parametrelerinin (pH, elektrotlar arası mesafe, hidrolik tutma süresi ve akım yoğunluğu) etkilerini araştırmışlardır. Bir metal kaplama endüstriyel atık suyunun arıtılmasında uygulanması gereken optimum koşulları belirlemek için, Cu, Ni ve Pb içeren yapay atık su kullanmışlardır. Deneysel sonuçlar, optimum deney şartları altında (pH 6,32, akım yoğunluğu 0,026 A cm⁻²), ağır metallerin atık sudan uzaklaştırılma veriminin % 95'ten daha yüksek olduğunu göstermiştir.

Wulan ve vd. (2017), elektrokaplama atık suyunun arıtımında EK reaktörünün pilot ölçeğe ölçeklendirilmesinde optimum koşulu belirlemek amacıyla voltaj deęişiminin ağır metal giderimine etkisini incelemişlerdir. Laboratuvar çalışması, elektrokaplama endüstrisinden gelen atık su ile 1,5 litrelik cam reaktörde, 20, 30 ve 40 voltluk voltaj girişlerinde gerçekleştirilmiştir. Çalışmada 32 cm² lik Al anot, 32 cm² lik Cu katot kullanılmıştır. Artan voltaj girişine baęlı olarak atık sudan ağır metal giderimlerinin arttığı gözlemlenmiştir. 30 V voltaj giriřli pilot ölçekli reaktörde, Cr, Fe, Zn, Cu için sırasıyla % 79, % 89, % 98'e kadar arıtım verimliliğine ulařılmıştır.

Bhagawan ve vd. (2014), metal kaplama endüstriyel atık sularından ağır metallerin (Cr, Cu, Pb, Ni ve Zn) arıtılabilirlięi için EK performansını araştırmışlardır. Çalışmada, elektrot malzemesi, başlangıç pH'ı, elektrotlar arasındaki mesafe, elektrot boyutu ve uygulanan voltaj gibi EK performansını etkileyen parametrelerin etkisini incelemişlerdir. pH 8, 1 cm elektrot arası mesafe, Fe – Fe elektrot çifti, 40 cm²' lik yüzey alanı, 8V' luk geriliminin metal giderimi için en iyi parametreler olduğunu bulmuşlardır. Cr, Ni, Zn, Cu ve Pb metallerinin 30 dakikalık bir reaksiyon süresi sonucunda metal giderim verimlerinin sırasıyla % 96,2, % 96,4, % 99,9, % 98 ve % 99,5 olduğunu görmüşlerdir. Ayrıca, optimum koşullar altında enerji tüketimini 51,40 kWh/m³ olaak hesaplamışlardır. Elektrokaplama atıklarından ağır metallerin uzaklaştırılmasında EK'un çok etkili bir yöntem olduęu sunucuna varmışlardır.

Tezcan Ün ve Öcal (2015) tarafından yapılan çalışmada, kesikli silindirik demir reaktör kullanılarak EK yöntemi ile simüle edilmiş atık sudan Cd, Cu ve Ni giderimi incelenmiştir. İlk pH (3, 5, 7), akım yoğunluğu (30, 40, 50 mA/cm²) ve başlangıç ağır metal derişimi (10, 20, 30 ppm) gibi çeşitli çalışma parametrelerin giderim verimi üzerindeki etkileri araştırılmıştır. Elde edilen sonuçlardan, uygulanan akım yoğunluğu ve pH'ın uzaklaştırma verimini önemli ölçüde etkilediği görülmüştür. Deneysel sonuçlar, 90 dakikalık EK den sonra, destekleyici elektrolit (0,05 M Na₂SO₄) kullanılarak, 30 mA/cm² akım yoğunluğunda ve pH 7'de sırasıyla % 99,78, % 99,98, % 98,90 ile en yüksek Cd, Ni, Cu gideriminin elde edildiğini göstermiştir.

4.2. Metal İçeren Atıkların Değerlendirilmesi İle İlgili Endüstriyel Simbiyoz Çalışmaları

Omolaoye ve vd. (2010), bu çalışmada galvanik çamurda toksik metallerin stabilizasyonu amaçlı uyguladıkları çok sayıda prosedür, kil gibi bağlayıcıların eklenmesine dayanmaktadır. Ardından seramik üretmek için termal olarak işlenir. Galvanik çamurun stabilizasyon derecesi genellikle ısı işlem görmüş karışımlardan çıkan metal sızıntı miktarı gözlemlenir. Kaolin Oka kili, galvanik çamur ve kum karışımının ısı işlemine toksik metalleri etkisiz hale getirebileceği ortaya çıkmıştır. Bununla birlikte, atmosferik koşulların etkisi altında bu metaller kolaylıkla aktive edilebilir (Krstic vd., 2018). Tarihsel olarak, yüzeyi korumak ve dayanıklılığı arttırmak için seramik eşya üretiminde Pb sırlar kullanılmıştır.

Eroğlu Önpeker (2017), Cr (VI) içeren endüstriyel bir atıksuyun EK ve elektrofenton yöntemleri ile arıtımını gerçekleştirmiştir. EK da, Rushton tipi Fe anot ve silindirik Fe katot kullanmıştır. Deneylerde pH, akım yoğunluğu, destek elektrolit tipi ve destek elektrolit derişimi parametrelerini çalışmış, en iyi arıtım verimini pH 2,4, akım yoğunluğu 20 mA/cm² ve elektrolit derişimi 0,05 M NaCl şartlarında elde etmiştir. Eroğlu'nun yaptığı bu çalışmada, 1000 mg/L'lik başlangıç Cr (VI) derişimi, 2,68 kWh/m³'lük enerji tüketimi ile 0,017 mg/L'e düşürülmüştür. EK çamurunun, XRD (X-Işını Kırınımı Yöntemi) ve XRF (X Işını Floresans) cihazları ile karakterizasyonu sonucu zengin Fe ve Cr kaynağı olduğu belirlenmiş ve seramik pigmentleri üretmek için yeniden kullanılabilirliği görülmüştür. % 100 Cr (VI) gideriminin yanı sıra çamurdan kırmızımsı

kahverengi ve siyah renkte pigmentler üretilerek atık çamurun tekrar kullanımı sağlanmıştır. Böylece birinin atığının diğerinin hammaddesi olarak yararlı kullanımının ortaya çıktığı sıfır atıklı iki farklı sektörün ES uygulaması gerçekleştirilmiştir.

Kallas ve vd. (2018), kiremit üretimi için hammadde olarak Ni cürufunun kullanılmasını araştırmışlardır. Optimize edilmiş ürün özelliklerine yönelik kompozisyonu bulmak için kil kütesine farklı cüruf yüzdeleri eklenerek testler yapılmışlar ve sonuçta olarak % 25'e kadar Ni cürufunun eklenmesinin, yoğunluk artışı ve mekanik mukavemet artışı ile geçirgenlik ve su emiliminin azaltılması yönünde avantaj sağladığını görmüşlerdir.

Krstic ve vd.nin (2018) yaptıkları çalışmada, galvanik çamurun fizikokimyasal parametrelerinin incelenmesi ile atık cam ve Al cürufu dahil olmak üzere atık malzemelerin cam seramik olarak adlandırılan eko-tasarımlı bir malzemeye dönüştürülmesiyle stabilize edilmesi amaçlanmıştır. Elde edilen ürünlerin XRD analizleri, arıtılmış galvanik çamurda kimyasal ve faz dönüşümlerinin meydana geldiğini ve toksik metallerin (Al^{3+} , Cr^{3+} , Cu^{2+} , Cd^{2+} , Ni^{2+} , Pb^{2+} , Zn^{2+}) kristal fazlara bağlandığını doğrulamıştır.

Wang ve vd. (2010), Ni cürufu, yüksek fırın cürufu ve az miktarda kuvars kumundan oluşan bir karışımdan hazırlanan cam seramiklerin kristalizasyon sürecini incelemişlerdir. Önce karışımın ana hattı hazırlanmıştır. Daha sonra, ana cam için ısı işlem uygulanarak cam seramikler elde edilmiştir. Kristalleşme davranışı, DSC (diferansiyel taramalı kalorimetri), XRD ve FESEM (alan emisyonu taramalı elektron mikroskobu) ile incelenmiştir. Cam 700 °C'ye ısıtıldığında çok sayıda küçük küresel kristaller, 820 °C'ye kadar ısıtıldığında ise radyal kristaller gözlenmiştir. Ayrıca kristalleşmenin aktivasyon enerjisi Kissinger yöntemi ile değerlendirilmiştir.

Zhu (2016), büyük miktarlarda Fe, Cr ve Ni içeren ve çevresel kirlenmeye neden olan paslanmaz çelik üretim endüstrisi atık tozunun, seramik endüstrisinde potansiyel inorganik siyah pigment hammaddesi olarak geri dönüştürülebilmesi üzerine çalışmıştır. Paslanmaz çelik fabrika tozunun geri dönüşümü yoluyla elde edilen siyah pigment ile

hazırlanan seramik karolar, yığın yoğunluğu, su emme, görünen gözeneklilik ve hacim büzülme oranı gibi fiziksel özellikler uzun vadeli sızdırma davranışı açısından karakterize edilmiştir.



5. MATERYAL VE YÖNTEM

Bu çalışmada Nikel (Ni) içeren sentetik atıksuyun elektrokoagülasyon yöntemi ile arıtımı gerçekleştirilmiştir. Arıtımı etkileyen akım yoğunluğu (1, 2,5, 4 mA/cm²), pH 3, 6, 9), destek elektrolit derişimi (0,05, 0,275 ve 0,5M NaCl) ve başlangıç Ni derişimi (50, 175 ve 300 ppm) gibi işletme parametrelerinin artım verimi üzerindeki etkileri incelenmiş ve deney tasarımı kullanılarak optimum şartlar belirlenmiştir. Çalışmalar demir ve alüminyum elektrotlar kullanılarak iki farklı başlık altında gerçekleştirilmiştir.

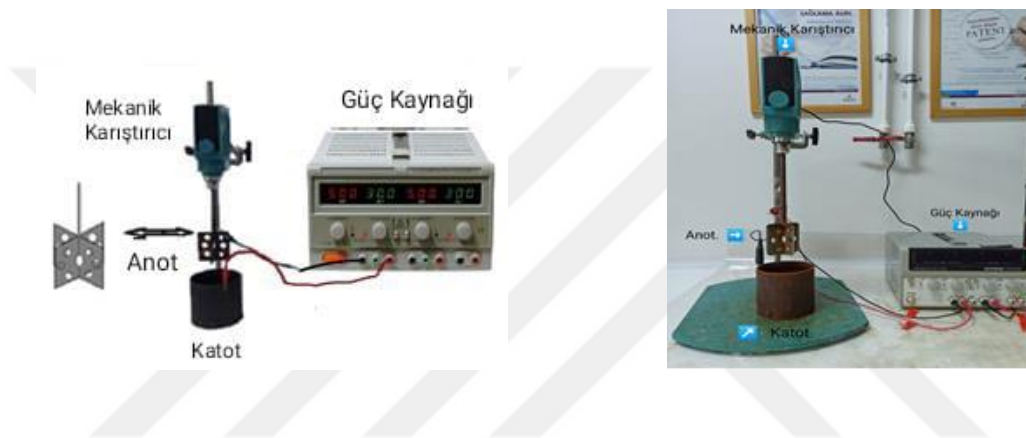
5.1. Atıksu ve Kimyasallar

Deneysel çalışmalarda Ni içeren atık su, NiCl₂.6H₂O (SureChem EEC Label: 231-743-0) ve distile su kullanılarak sentetik olarak hazırlanmıştır. Çözeltilerin pH'ı 0,1 M H₂SO₄ (Sigma Aldrich CAS Number: 7664-93-9) ve/veya 0,1 M NaOH (Sigma Aldrich CAS Number: 1310-73-2.) kullanılarak ayarlanmıştır. İletkenliği artırmak ve voltajı düşürmek için destekleyici elektrolit olarak NaCl eklenmiştir.

5.2. Elektrokoagülasyon Deney Prosedürü

Deneysel çalışmalar iki farklı deney seti kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Deney setinin birincisi demir katot ve anottan oluşurken, diğer set birinci set ile aynı ölçü ve şekilde olan alüminyum anot ve katottan oluşmaktadır. Katot olarak 10 cm çapında ve 10 cm yüksekliğinde silindirik demir/alüminyum bir kap, anot olarak ise 4 adet dikdörtgen kanatlı bir Fe/Al karıştırıcı kullanılmıştır. Her kanadın üzerinde 1,2 cm çapa sahip delikler bulunmaktadır. Dikdörtgen kanatlar anot olarak görev görürken aynı zamanda mekanik karıştırıcıya bağlanarak atıksu ve koagülantların homojen karışımını sağlamaktadır. Kanatlar üzerindeki delikler karışım performansını artırıcı etkisi vardır. Toplam anot yüzey alanı 94 cm² 'dir. Her deneysel çalışma başında katot olarak kullanılan silindirik reaktörün içine 500 mL Ni içeren çözelti konulmuş ve pH'ı istenilen değere ayarlanmıştır. Anot olarak görev alan karıştırıcı çözelti içerisine daldırılmış ve mekanik karıştırıcıya bağlanmıştır. Karışım pıhtılaşmaya da yardımcı olan, bir mekanik karıştırıcı (CAT R50) ile 60 rpm' de karıştırılmıştır. Daha sonra, güç kaynağının (Statron T-25) eksi kutbu, katot

olarak çalışan reaktöre, artı kutbu ise Şekil 5.1'deki görüldüğü gibi anot olarak çalışan karıştırıcıya bağlanmıştır. Başlangıç Ni derişimini belirlemek için bir numune alınmış, daha sonra 15 dakikalık bir süre boyunca güç kaynağı ile devreye akım uygulanmıştır. Elektrokogülasyon süresince gerilim ve pH değerleri gözlenmiş ancak kontrol edilmemiştir. Periyodik olarak belli zaman aralıklarında numuneler alınmış ve santrifüjlenmiştir. Alınan örneklerde Ni analizi yapılmış, pH değerleri belirlenmiştir. Deneysel çalışmaların sonunda oluşan elektrokoagülasyon çamurları çökeltilerek alınmıştır.



Şekil 5.1. Deney düzeneği

5.3. Analiz ve Hesaplamalar

5.3.1. Ni derişiminin belirlenmesi

Çalışmada belirli aralıklarla atıksu örnekleri alınmış ve örnekteki çamur artıklarını bertaraf etmek için mavi bant filtre kâğıtları kullanılarak süzölmüştür. Ham atıksuda ve süzöntü içerisindeki Ni derişimleri, ICP-MS (indüktif eşleşmiş plazma kütle spektrometresi) (Thermo iCAP RQ) kullanılarak belirlenmiştir. Ni iyonlarının başlangıç ve son derişimlerine göre arıtım verimleri hesaplanmıştır.

5.3.2. Hesaplamalar

Elektrokoagülasyon sürecinin değerlendirilmesinde giderim verimi ve elektrik enerjisi tüketimi en önemli parametrelerdir. Giderim verimi aşağıdaki eşitlik ile hesaplanmıştır.

$$\% \text{Giderim} = \frac{C_0 - C_1}{C_0} \quad (5.1)$$

C_0 : Kirleticinin başlangıç derişimini,

C_1 : Kirleticinin reaksiyon süresi sonundaki derişimini ifade eder.

Elektrik enerjisi tüketimi aşağıdaki eşitlik ile hesaplanmıştır.

$$ET = \frac{U \times I \times t}{V} 10^{-3} \quad (5.2)$$

ET : Enerji tüketimi (kWh/m³)

U : Uygulanan voltaj (V)

I : Akım (A)

t : Zaman (sa)

V : Atıksu hacmi (m³)

5.4. Cevap Yüzey Yöntemi (CYY; Response Surface Method)

CYY, ilk olarak Box ve Wilson tarafından, bir kimyasal sürecin çalışma koşullarını bulmak için cevapların optimize edildiği istatistiksel bir araç olarak önerilmiştir. CYY, genellikle süreçleri iyileştirmek ve optimize etmek için kullanılan matematiksel ve istatistiksel tekniklerin bir bileşimidir (Box ve Draper, 1987).

Faktörler, Çizelge 5.1'de görüldüğü gibi alt seviyeleri temsil eden (-1), merkez noktaları gösteren (0) ve üst seviyeleri gösteren (+1) olarak kodlanmıştır. 4 faktör (pH, akım yoğunluğu, başlangıç derişimi, NaCl derişimi) 5 düzeyde (-2,-1, 0, +1, +2) hem Fe hem de Al elektrot kullanılarak yapılan 30 ar adet deneyin verileri kullanılmış, Ni giderim

$$Y_i = b_0 + \sum_{i=1}^n b_i x_i + \sum_{i=1}^n b_{ii} x_i^2 + \sum_{j=i+1}^n b_{ij} x_i x_j \quad (5.4)$$

Burada Y_i , gideriminin değeri, b_0 sabit katsayı, b_i doğrusal katsayılar, b_{ii} ikinci dereceden katsayılar, etkileşim katsayıları b_{ij} ve x_i, x_j faktörlerin kodlanmış değerleridir.

Merkezi karma tasarımları (Box ve Wilson tasarımları) bir tam (“tam”: deney tasarımının mümkün olan tüm faktör kombinasyonlarından oluştuğu anlamına gelir) faktörlü (“faktör”: tüm faktörlerin tüm seviyelerinin kodlandığı anlamına gelir) veya kesirli (“kesirli”: deney tasarımının yalnızca bazı olası kombinasyonlardan oluştuğu anlamına gelir) tasarımdan oluşur. Deneysel alanın merkezindeki noktalar ve bu alanın dışındaki “yıldız” noktaları, yanıt yüzeyinin eğriliğini tahmin etmeyi mümkün kılar. Faktöriyel tasarımın noktalarının seviyeleri ± 1 ve bir “yıldız” tasarım üzerindeki $\pm \alpha'$ dır, burada $|\alpha| \geq 1$. Üç tür merkezi karma planı vardır. α parametresinin değeri, hesaplama olasılıklarına ve yüzey tepkisinin tahmini için gerekli kesinliğe göre belirlenir. Tahminin kalitesi, noktaların konumuna göre belirlenir. Alanın merkezindeki α değerinin ayarı ve deneme sayısı, tahminin kesinliğini etkiler.

Merkezi karma tasarım yöntemi, değerlendirilecek deneylerin sayısını belirlemek, değişkenlerin ve yanıtların optimizasyonu için kullanılır. Her değişkenin minimum, orta ve maksimum değerleri sırasıyla -1, 0 ve +1 olarak etiketlenir. Bir deney tasarımının kalitesi, katsayılarının tahmininin değişkenliği ve sonuç olarak yanıt tahmininin değişkenliği ile ölçülür. Önemli bir özellik, dönüş başına izo varyansıdır (dönebilirlik). Bu, tahmin hatasının, alanın merkezinden aynı mesafede bulunan tüm noktalar için aynı olduğu anlamına gelir. Döndürülebilir tasarım, alanın merkezindeki ortogonal tasarımdan daha az doğru bir tahmin sağlar. Döndürülebilir ve ortogonal tasarım, bu ikisi arasında bir uzlaşmadır. Deneylerin tasarımına yönelik işleme yazılımı, seçilen kaliteler için α değerlerini ve merkezdeki nokta sayısını sağlar. Cevap yüzey yöntemindeki yanıt değişkenleri için ikinci dereceden bir polinom oluşturmak için sıklıkla kullanılır (Ait-Amir vd., 2015).

5.5. Elektrokoagülasyon Çamurunun Karakterizasyonu

Her bir deney sonrası, çamur içeren arıtılmış atıksu, cam bir kaba transfer edilmiş ve çamurun çökmesi için 24 saat bekletilmiştir. Atıksuyun üst duru kısmı behere boşaltılarak

uzaklaştırmış, alt kısımda çöken çamur ise etüvde (Nuve Model No: FN 120) 80° C’de, 24 saat süreyle nem kalmayınca kadar kurutulmuştur.

EKÇ ve diğer atık malzemelerin kimyasal analizleri X-ışını floresans spektrometresi (XRF) (Panalytical Zetium) ile yapılmıştır. Bir gonyometre (45-kV anot ve 40-mA filaman akımı) ile donatılmış bir Panalytical Emperian difraktometre ile toz X-ışını kırınımı (XRD) ile karakterize edilmiştir.

5.6. Elektrokoagülasyon Çamuru Katkılı Seramik Karo Üretimi

Demir elektrotla yapılan deneyler sonucu elde edilen EKÇ nin (ağırlıkça % 5-25) madencilik, seramik ve fayans atıkları içeren 200 gramlık bir karışımla karıştırılmasıyla seramik karo üretimi için reçeteler hazırlanmıştır. Her bileşim, bir saat boyunca % 80 su ilave edilerek Şekil 5.2’te görüldüğü gibi bilyeli değirmende yaş öğütmeye tabi tutulmuştur.



Şekil 5.2. Öğütme işlemlerinde kullanılan bilyalı değirmen

Elde edilen seramik çamur kurutulmuş, daha sonra boyut küçültmeye tabi tutularak granül haline getirilmiştir. Elde edilen granüller % 6 oranında nemlendirilmiş ve nem homojenizasyonunu sağlamak için kapalı torbalarda 24 saat bekletilmiştir. Sonrasında 40 ton yük altında hidrolik kuru preste preslenmiştir. Preslenen numuneler ayrı ayrı 1020 ve 1050 °C’de 30 dakika süre ile sinterlenmiştir. Sinterleme işlemleri Şekil 5.3’te verilen Protherm marka kamara tipi fırında yapılmıştır.



Şekil 5.3. Kamara tipi yüksek sıcaklık fırını

5.7. Üretilen Seramik Karoların Karakterizasyonu

Seramik malzemelerde yoğunluk önemlidir. Malzemelerin mekanik özelliklerini, termal özelliklerini ve ortam içinde bulunan malzemelerden dolayı korozyon ve mekanik aşınma davranışlarını etkilemektedir. Yoğunluk ölçümü Arşimet prensibine dayanmaktadır. Bu metot katı malzemelerin yoğunluklarının belirlenmesinde yaygın olarak kullanılır. Sinterlenen numunelerinin bulk yoğunluğu, su emme ve gözeneklilik değerlerinin belirlenmesi Arşimet prensibine dayalı yoğunluk kitli hassas terazi kullanılarak yapılmıştır.

Bulk yoğunluk (A), % su emme (B) ve % gözeneklilik (C) verileri aşağıdaki eşitlikler ile hesaplanmıştır.

$$A = \frac{m_x}{m_y - m_z} \quad (5.5)$$

$$B = \frac{m_y - m_x}{m_x} * 100 \quad (5.6)$$

$$C = \frac{m_y - m_x}{m_y - m_z} * 100 \quad (5.7)$$

Bu eşitliklerde m_x kuru numunenin havadaki ağırlığı, m_y su emdirilmiş numunenin havadaki ağırlığı, m_z su emdirilmiş numunenin su içindeki asılı ağırlığıdır.

Üretilen karolardan fiziksel test sonuçlarına göre en yüksek yoğunluğa, en az su emilimi ve gözenekliliğe sahip olan seramik örneklerinden, görsel ve dekoratif özellikleri de uygun olanların taramalı elektron mikroskopisi (SEM) ile ((Hitachi Regulus 8230) görüntüleri alınmış, EDS dedektörü vasıtasıyla da örnekte bulunan elementlerin bollukları tespit edilmiştir. Ayrıca XRD bir gonyometre (45-kV anot ve 40-mA filaman akımı) ile donatılmış bir Panalytical Emperian difraktometre ile toz X-ışını kırınımı (XRD) ile karakterize edilmiştir.



6. BULGULAR VE TARTIŞMA

6.1. Matematiksel Model

EK deney sonuçları Merkezi karma tasarım (Central Composite Design) Design Expert 11 programı ile değerlendirilerek parametrelerin birbiriyle ilişkileri incelenmiştir. Modelde kullanılan parametreler ve değerleri Bölüm 5 Çizelge 5.1’de verilmiştir. Çizelgede görüldüğü gibi 4 faktör (akım yoğunluğu, pH, başlangıç derişimi, NaCl derişimi) beş düzeyde hem Fe hem de Al elektrot ile modelin belirlediği 30’ar adet 15 dakika EK deneyi, Çizelge 6.1’de verilen sıralama da yapılarak giderim verimi çıktı olarak alınmıştır. Modelin belirlediği deneyler ve sonuçları Çizelge 6.1’de verilmiştir.

Çizelge 6.1. Modelin belirlediği deneyler ve sonuçları

Test. No	pH	I (mA/cm ²)	NaCl derişimi (M)	Başlangıç Ni Derişimi (ppm)	% giderim (Fe elektrot)	Enerji tüketimi (kWh/m ³)	% giderim (Al elektrot)	Enerji tüketimi (kWh/m ³)
1	6,0	2,50	0,2750	300,0	45	3,6250	55	5,0000
2	4,5	3,25	0,3875	112,5	44	3,4125	92	5,2000
3	7,5	3,25	0,1625	112,5	55	6,3375	92	10,8875
4	7,5	1,75	0,3875	112,5	63	1,5750	85	2,4500
5	7,5	3,25	0,1625	237,5	38	7,6375	76	9,2625
6	6,0	1,00	0,2750	175,0	23	0,7500	48	1,5000
7	4,5	3,25	0,3875	237,5	40	5,0375	75	5,0375
8	4,5	1,75	0,1625	112,5	40	2,4500	70	2,8000
9	3,0	2,50	0,2750	175,0	43	3,7500	63	6,7500
10	6,0	2,50	0,2750	175,0	52	3,1250	65	4,2500
11	7,5	1,75	0,1625	237,5	33	2,7125	64	3,0625
12	6,0	2,50	0,5000	175,0	13	2,5000	71	3,3750
13	6,0	2,50	0,0500	175,0	57	8,0000	80	12,0000
14	4,5	3,25	0,1625	112,5	47	6,9875	82	8,4500
15	4,5	3,25	0,1625	237,5	35	6,8250	71	7,4750
16	6,0	2,50	0,2750	175,0	50	3,5000	65	5,0000
17	6,0	2,50	0,2750	175,0	55	3,6250	67	4,3750
18	6,0	2,50	0,2750	175,0	50	3,1250	65	4,7500
19	6,0	2,50	0,2750	175,0	53	3,1250	68	5,2500
20	4,5	1,75	0,1625	237,5	30	2,9750	58	2,8000
21	6,0	2,50	0,2750	175,0	50	3,3750	65	4,6250

Çizelge 6.1. Modelin belirlediği deneyler ve sonuçları. (devamı)

22	7,5	1,75	0,1625	112,5	42	2,2750	83	4,2875
23	7,5	3,25	0,3875	112,5	69	4,7125	98	6,9875
24	4,5	1,75	0,3875	112,5	45	1,4875	73	2,0125
25	7,5	3,25	0,3875	237,5	50	4,8750	72	6,9875
26	6,0	4,00	0,2750	175,0	56	8,6000	82	9,4000
27	6,0	2,50	0,2750	50,0	73	3,2500	99	4,2500
28	4,5	1,75	0,3875	237,5	24	2,4500	60	2,1000
29	9,0	2,50	0,2750	175,0	38	3,0000	58	6,3750
30	7,5	1,75	0,3875	237,5	59	1,5750	71	2,6250

6.2. Demir Elektrot Kullanılarak Elde Edilen Deney Tasarımı Sonuçları

6.2.1. Model sonuçları

Merkezi karma tasarım modelinin çalıştırılması sonucunda Çizelge 6.2' den de görüldüğü gibi kuadratik modelin deneysel sonuçların yorumlanması için uygun olduğu görülmektedir. Ayarlanan (adjusted) ve öngörülen (predicted) korrelasyon katsayısı (R^2) en yüksek kuadratik modelde elde edilmiştir.

Çizelge 6.2. Korelasyon katsayıları

Model	Ardışık (Sequential) p-değeri	Uyum eksikliği (Lack of fit) p-değeri	Ayarlanan (Adjusted) R^2	Öngörülen (Predicted) R^2	
Linear	0,0047	0,0008	0,3855	0,1598	
2FI	0,7503	0,0005	0,3033	-0,2562	
Kuadratik	< 0,0001	0,0308	0,8859	0,5972	Önerilen
Kübik	0,1739	0,0255	0,9297		

İndirgenmiş kuadratik model için ANOVA testi Çizelge 6.3'de görülmektedir. Çizelge 6.3'de görüldüğü gibi Model F değeri 24,00 çıkmıştır ve bu da modelin anlamlı olduğunu belirtmektedir. F değerinde gürültüden dolayı yalnızca % 0,01'lik değişim olmuştur. P değerinin 0,0500'den daha düşük olması modelin anlamlı olduğunu gösterir. Değişkenlerin ilişkisinin doğrusal, birbiriyle etkileşimli ve karesiyle orantılı olduğu görülmüştür. Modelde A, B, D, AD, BC, BD, CD, A^2 , C^2 , D^2 terimleri önemli çıkmış, bazı

terimlerin ise P değeri 0,1'den büyük olduğu için model içerisinde önemli olmadığı belirlenmiştir. Çizelge 6.3'de ayrıca görüldüğü gibi Uyum eksikliğinin (Lack of Fit) 4,44 olması, önemsiz olduğunu (not significant) göstermektedir.

Çizelge 6.3. İndirgenmiş kuadratik model için ANOVA Testi*

Kaynak	Kareler Toplamı	df	Ortalama Kare	F-değer	p-değer	
Model	3707,330	11	337,03	24,0000	< 0,0001	önemli
A-pH	709,800	1	709,80	50,5400	< 0,0001	
B-I akım yoğunluğu	115,760	1	115,76	8,2400	0,0117	
C-NaCl derişimi	359,360	1	359,36	25,5900	0,0001	
D-Başlangıç Ni derişimi	962,670	1	962,67	68,5400	< 0,0001	
AB	9,000	1	9,00	0,6408	0,4359	
AC	324,000	1	324,00	23,0700	0,0002	
BC	20,250	1	20,25	1,4400	0,2485	
A ²	635,460	1	635,46	45,2500	< 0,0001	
B ²	490,010	1	490,01	34,8900	< 0,0001	
C ²	190,050	1	190,05	13,5300	0,0022	
D ²	86,870	1	86,87	6,1900	0,0251	
Artık	210,670	15	14,04			
Uyum eksikliği (Lack of Fit)	189,330	10	18,93	4,4400	0,0569	önemsiz
Hata (pure error)	21,330	5	4,27			
Düzeltilmiş Toplam	3918,000	26				

*Bu analiz için şu satırlar göz ardı edildi: 9, 26, 12 nolu deneyler

Çizelge 6.4'de görüldüğü gibi 0,8205 olan öngörülen (predicted) R², 0,9068 olan ayarlanmış (adjusted) R² ile makul bir uyum içindedir. Fark 0,2' den azdır. "Yeterli hassasiyet", sinyal-gürültü oranını ölçer. 4' ten büyük bir oran arzu edilir. 19,479 olan oran yeterli bir sinyali gösterir. Bu model, tasarım alanında gezinmek için kullanılabilir.

Çizelge 6.4. Uyum istatistikleri.

St. Sapma	Ortalama	V. K. % Varyasyon katsayısı	R ²	Ayarlanmış (Adjusted) R ²	Öngörülen (Predicted) R ²	Yeterli hassasiyet (Adequed Precision)
3,75	46,67	8,03	0,9462	0,9068	0,8205	19,4792

Modelin önerdiği değişkenler arasındaki ilişkiyi gösteren eşitlik ise Eşitlik (6.1)'de verilmiştir. Bu denklem her faktörün belirli seviyelerinde yanıtlar hakkında tahminde bulunmak için kullanılabilir.

$$Y = -87,3760087 + 34,22222X_1 + 63,20370X_2 - 243,99177X_3 - 0,265600X_4 - 0,666667X_1 \times X_2 + 26,66667X_1 \times X_3 - 13,33333X_2 \times X_3 - 2,96296X_1^2 - 10,40741X_2^2 + 288,06584X_3^2 + 0,000469X_4^2 \quad (6.1)$$

X₁ : pH

X₂ : Akım yoğunluğu

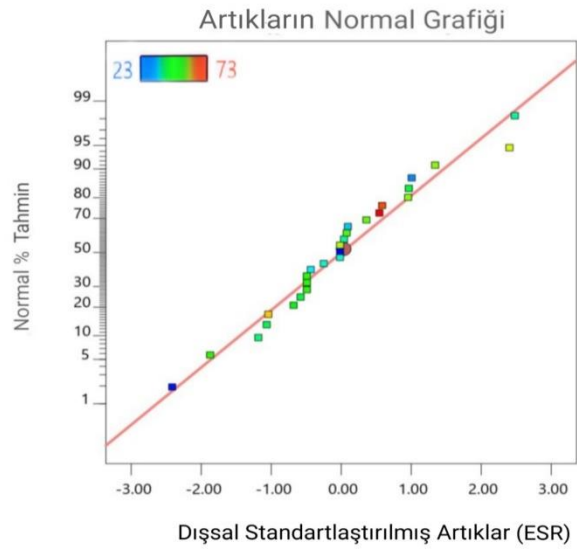
X₃ : NaCl derişimi

X₄ : Başlangıç derişimi

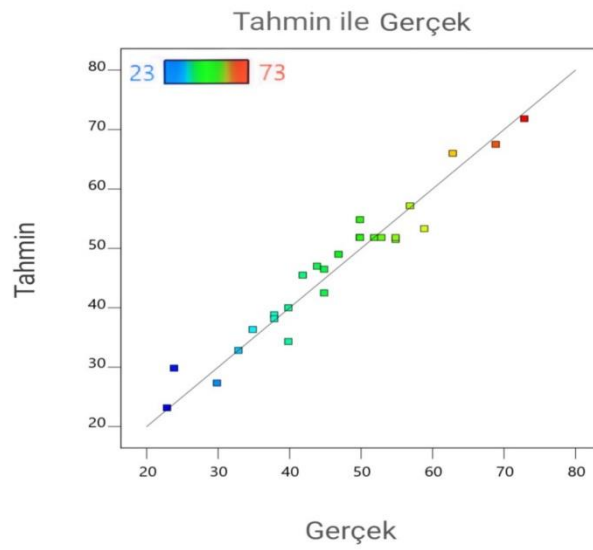
Gerçek faktörler cinsinden denklem, her faktörün belirli seviyeleri için yanıt hakkında tahminlerde bulunmak için kullanılabilir.

6.2.2. Diagnostik grafikler

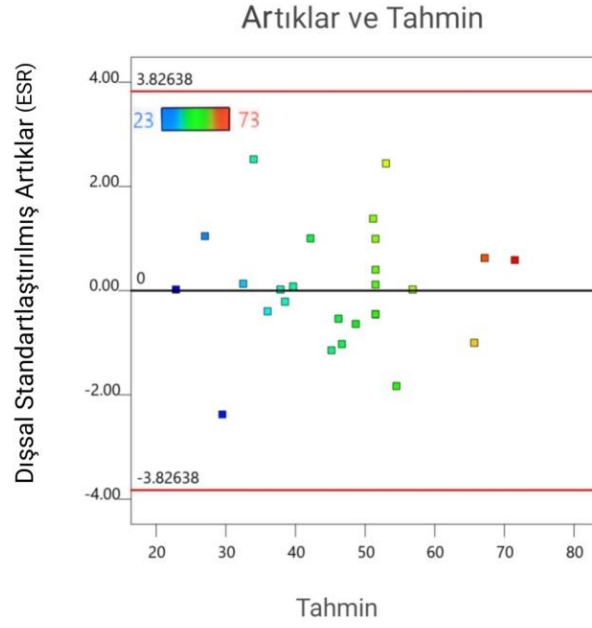
Modelleme sonucun da elde edilen tahmin dağılım grafiği Şekil 6.1'de, tahmin ve gerçek dağılım grafiği Şekil 6.2'de, hata dağılım grafiği Şekil 6.3'de, deney yapılış sırasına göre hata dağılım grafiği Şekil 6.4'de verilmiştir.



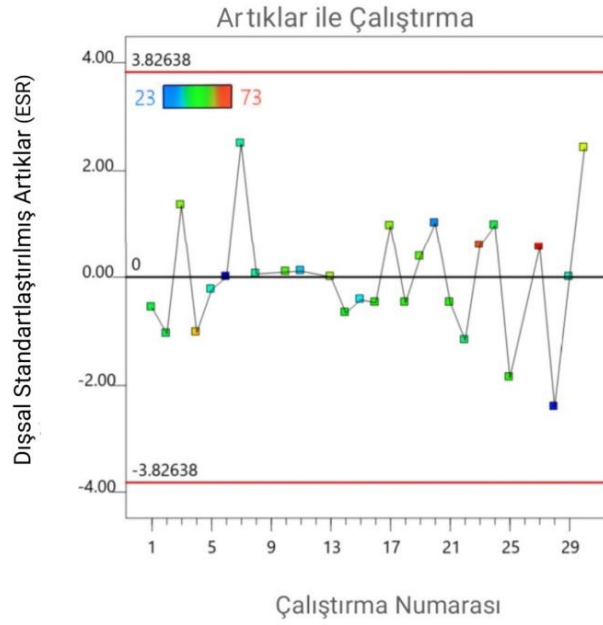
Şekil 6.1. Tahmin dağılım grafiđi



Şekil 6.2. Tahmin ve gerçek dağılım grafiđi



Şekil 6.3. Hata dağılım grafiği



Şekil 6.4. Deney yapılış sırasına göre hataların dağılımı

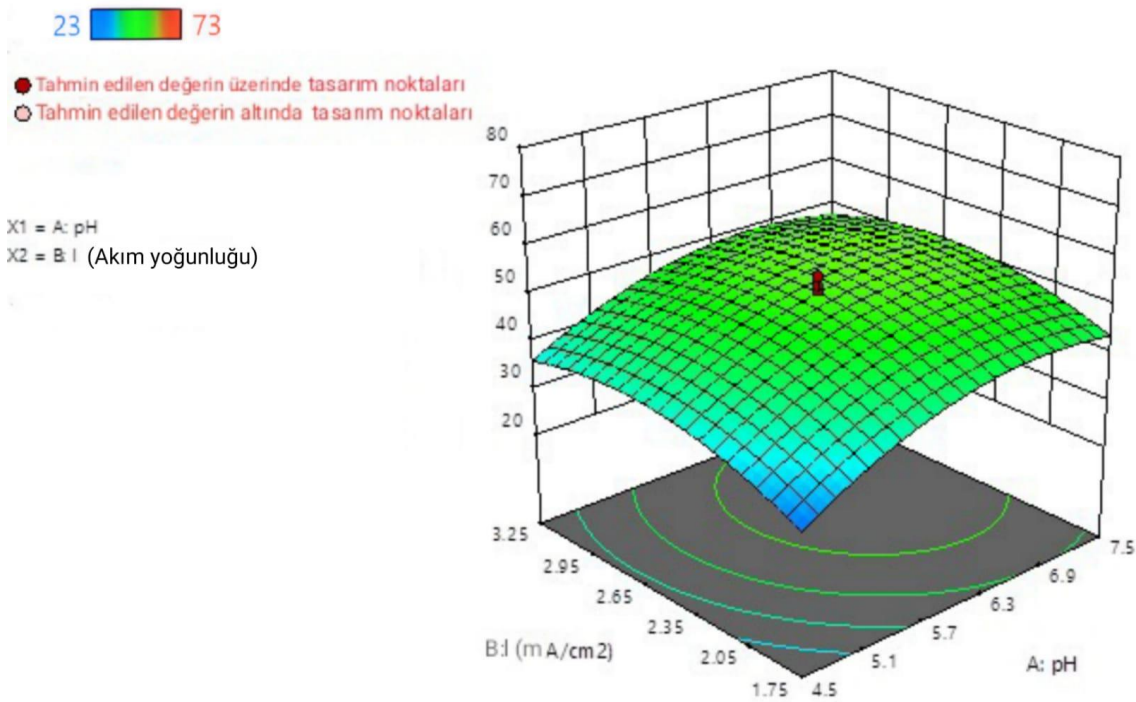
6.2.3. Akım yoğunluğu ile pH'ın giderim verimine etkisi

EK sürecini çeşitli parametreler etkileyebilir. Faraday Yasasına Eşitlik (6.2) göre, akım yoğunluğu en önemli operasyonel parametredir. EK sistemine akım beslemesi, anottan salınan Fe^{2+} iyonlarının miktarını ve ortaya çıkan pıhtılaştırıcı miktarını belirler. Flok üretimindeki artış aynı zamanda temizleme verimini de artırır.

$$m = \frac{ItM}{nF} \quad (6.2)$$

burada m, çözülmüş demir kütlesi ($Fe \text{ g/cm}^2$); I, akım yoğunluğu (mA/cm^2); t, zaman (s); M, Fe'nin moleküler ağırlığı ($M=56$); n, oksidasyon reaksiyonunda yer alan elektron sayısı ($n=2$); F, Faraday sabiti, 96.500 C/mol .

Şekil 6.5' de görüldüğü gibi akım yoğunluğu $2,6 \text{ mA/cm}^2$, pH $6,75$ de olduğunda maksimum verim (% 53,4) gözlenmektedir. Akım yoğunluğu ve pH'ın ara değerlerinde yüksek verim elde edilmiştir.

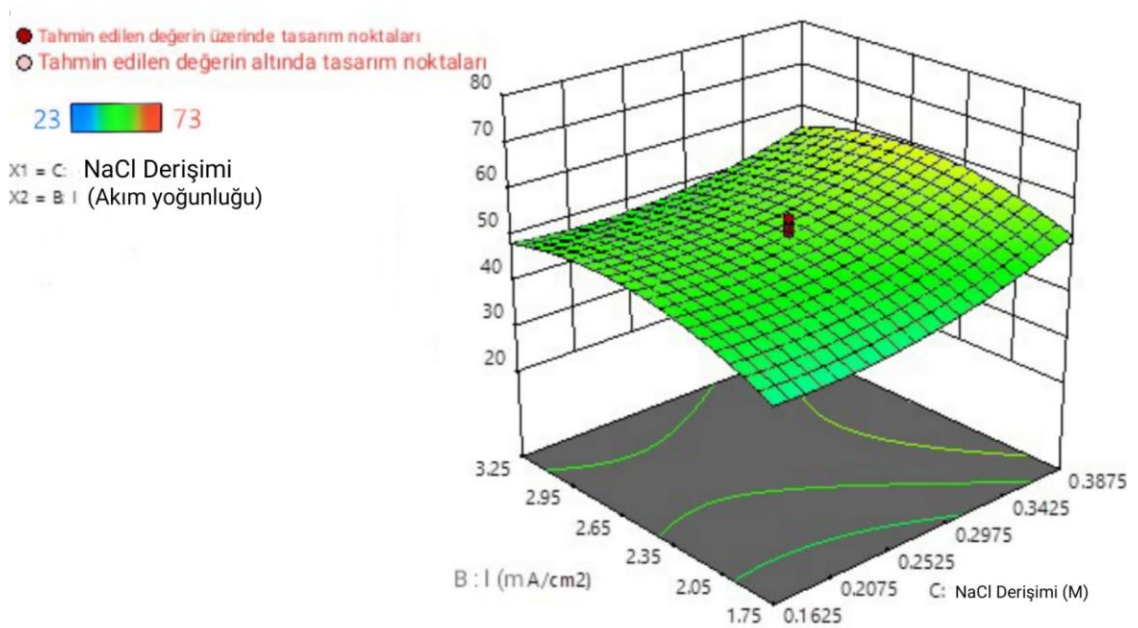


Şekil 6.5. Akım yoğunluğu ile pH'ın giderim verimine etkisi.

6.2.4. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin giderim verimi üzerine etkisi

Genellikle atıksuyun veya arıtılacak suyun iletkenliğini artırmak için tuz kullanılmaktadır. Tuz ilavesi ile su ortamında klorür iyonları elektriksel yüke katkıda bulunurken ortamda bulunan ve olumsuz etkisi olan SO_4^{-2} ve HCO_3^- gibi anyonların etkileri de büyük oranda azaltılmaktadır. Su ortamında bulunan Ca^{+2} ve Mg^{+2} iyonları elektrotların yüzeyinde izolasyon tabakası oluşturmakta ve su ortamında bulunması durumunda sülfat veya karbonat iyonları Ca^{+2} ve Mg^{+2} iyonlarını çöktürmektedir. Suda bulunan Ca^{+2} ve Mg^{+2} iyonlarının oluşturduğu izolasyon tabakası ise Fe ve Al elektrotlar arasındaki potansiyeli attırmakta ve akım verimini önemli bir ölçüde düşürmektedir. EK işleminde bu nedenle mevcut anyonlar içinde atıksu ve su arıtımında normal çalışmayı sağlamak için Cl^- 'nin % 20 oranında olması gerekir. İletkenliği arttırmak elektrik tüketiminin azalmasını sağlamaktadır. Suya NaCl ilave edilmesi sonucunda ortamda elektrokimyasal olarak üretilen klor aynı zamanda suyun dezenfeksiyon edilmesinde etkilidir (Bağcı 2019).

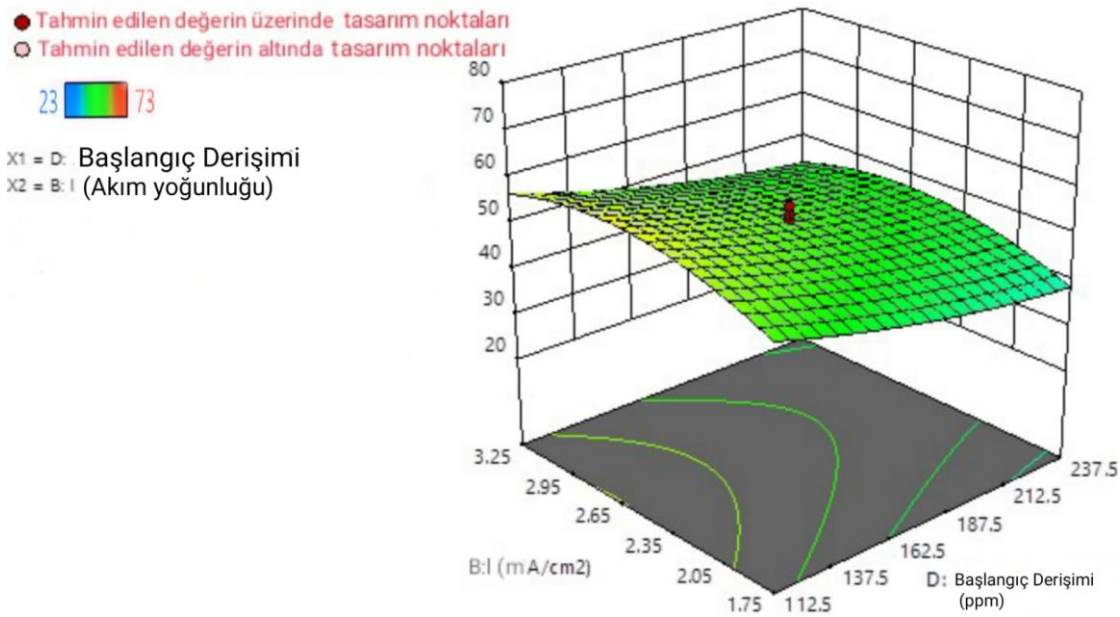
Şekil 6.6'da göüldüğü üzere yüksek NaCl derişiminde verimde artmaktadır. En yüksek verim % 59,8 (2,61 akım yoğunluğu ve 0,3875 M NaCl derişimde) en düşük % 41,2 (1,75 mA/cm² akım yoğunluğunda ve 0,1625 M NaCl derişiminde) dir.



Şekil 6.6. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin giderim verimi üzerine etkisi

6.2.5. Başlangıç Ni derişimi ve akım yoğunluğunun giderim verimine etkisi

Şekil 6.7’de görüldüğü gibi tüm akım yoğunluklarında başlangıç derişimi arttıkça verim düşmüştür. En yüksek verim % 59,9 (akım yoğunluğu 2,6 mA/cm², başlangıç derişimi 112,5 ppm’de). En düşük verim % 39,1 (akım yoğunluğu 1,75 mA/cm², başlangıç derişimi 237,5 ppm’de) dir.



Şekil 6.7. Başlangıç Ni derişimi ve akım yoğunluğunun giderim verimine etkisi

6.2.6. Optimizasyon Sınırlılıkları ve Raporu

Demir elektrot kullanılarak gerçekleştirilen elektrokoagülasyon çalışmalarının sonuçları model ile değerlendirildiğinde değişkenlerin alt ve üst limitleri Çizelge 6.5’de görülmektedir. Modelin önerdiği çözümler Ek Açıklamalar-A’da verilmiştir.

Çizelge 6.5. Alt ve Üst Limitler

İsim	Amaç	Alt Limit	Üst Limit	Alt Ağırlık	Üst Ağırlık	Önem
A:pH	Aralık içinde	4,00	9,0000	1	1	3
B:Akım yoğunluğu	Aralık içinde	1,00	3,2500	1	1	3
C:NaCl derişimi	Aralık içinde	0,05	0,3875	1	1	3
D:Başlangıç Ni derişimi	Aralık içinde	50,00	300,0000	1	1	3
Deney süresi: 15 dk için % Giderim	Maksimize	23,00	73,0000	1	1	3

6.2.7. Enerji tüketiminin değerlendirilmesi

Bölüm 5’de Çizelge 5.1’de verilen modelin belirlediği 30 adet deneyin sonuçlarına göre Eşitlik (5.2) kullanılarak enerji tüketim miktarları hesaplanmıştır (Çizelge 6.1). Çıktı olarak enerji tüketim miktarları alınarak deney parametrelerinin enerji tüketimi üzerine etkisi model kullanılarak belirlenmiştir. İndirgenmiş kuadratik modele göre ANOVA testi Çizelge 6.6’da verilmiştir. Model F değeri 45,11 modelin önemli olduğunu gösterir. F değerinde gürültüden dolayı yalnızca % 0,01’lik değişim olmuştur. 0,0500’den küçük P değerleri, model terimlerinin anlamlı olduğunu gösterir. Bu durumda B, C, D, BC, B², C² önemli model terimlerdir. 0,1000’den büyük değerler, model terimlerinin önemli olmadığını gösterir.

Çizelge 6.6’da uyum eksikliğinin (Lack of Fit) 4,61 olması, önemsiz olduğunu (not significant) göstermektedir. Gürültü nedeniyle bu kadar büyük bir Uyum eksikliği F değerinin oluşma olasılığının % 5,36 olduğu anlamına gelir.

Çizelge 6.6. Enerji tüketimi için kuadratik model ANOVA testi*

Kaynak	Kareler Toplamı	df	Ortalama Kare	F-değer	p-değer	
Model	101,5700	14	7,2600	45,1100	< 0,0001	önemli
A-pH	0,0846	1	0,0846	0,5260	0,4802	
B-I (Akım yoğunluğu)	80,7600	1	80,7600	502,0800	< 0,0001	
C-NaCl Derişimi	11,6400	1	11,6400	72,3900	< 0,0001	
D-Başlangıç Derişimi	1,3100	1	1,3100	8,1200	0,0128	
AB	0,3985	1	0,3985	2,4800	0,1378	
AC	0,0244	1	0,0244	0,1518	0,7027	
AD	0,0689	1	0,0689	0,4284	0,5234	
BC	2,5800	1	2,5800	16,0400	0,0013	
BD	0,0625	1	0,0625	0,3886	0,5431	
CD	0,0264	1	0,0264	0,1642	0,6915	
A²	0,0136	1	0,0136	0,0847	0,7753	
B²	3,2200	1	3,2200	20,030	0,0005	
C²	0,7951	1	0,7951	4,9400	0,0432	
D²	0,0390	1	0,0390	0,2423	0,6302	
Artık (residual)	2,2500	14	0,1608			
Uyum eksikliği (Lack of Fit)	2,0100	9	0,2233	4,6100	0,0536	önemsiz
Hata (pure error)	0,2422	5	0,0484			
Düzeltilmiş Toplam	103,8200	28				

*Analiz için 9.ve 13. deneyler ihmal edildi.

Çizelge 6.7’de öngörülen (predicted) R^2 0,8715 olan, ayarlanan (adjusted) R^2 0,9566 olan ile makul bir uyum içindedir; yani fark 0,2’den azdır.

Yeterli hassasiyet (Adeq precision), sinyal-gürültü oranını ölçer. 4’ten büyük bir oran arzu edilir. 25,439 oranımız yeterli bir sinyali gösterir.

Çizelge 6.7. Uyum İstatistiği

St. Sapma	Ortalama	V. K. % Varyasyon katsayısı	R ²	Ayarlanmış (Adjusted) R ²	Öngörülen (Predicted) R ²	Yeterli hassasiyet (Adequed Precision)
0,4011	3,7500	10,7000	0,9783	0,9566	0,8715	25,4387

Bu model, tasarım alanında gezinmek için kullanılabilir. Modelin önerdiği değişkenler arasındaki ilişkiyi gösteren eşitlik ise Eşitlik 6.3'te verilmiştir.

$$\begin{aligned}
Y = & 3,99287 - 0,451991X_1 - 0,410185X_2 - 7,51502X_3 - 0,000414X_4 + \\
& 0,140278X_1 \times X_2 + 0,231481X_1 \times X_3 - 0,0007X_1 \times X_4 - 4,75926X_2 \times X_3 + \\
& 0,001333X_2 \times X_4 + 0,005778X_3 \times X_4 + 0,010046X_1^2 + 0,617963X_2^2 + \\
& 17,61317X_3^2 + 9,78667 \times 10^{-6}X_4^2
\end{aligned} \tag{6.3}$$

X₁ : pH

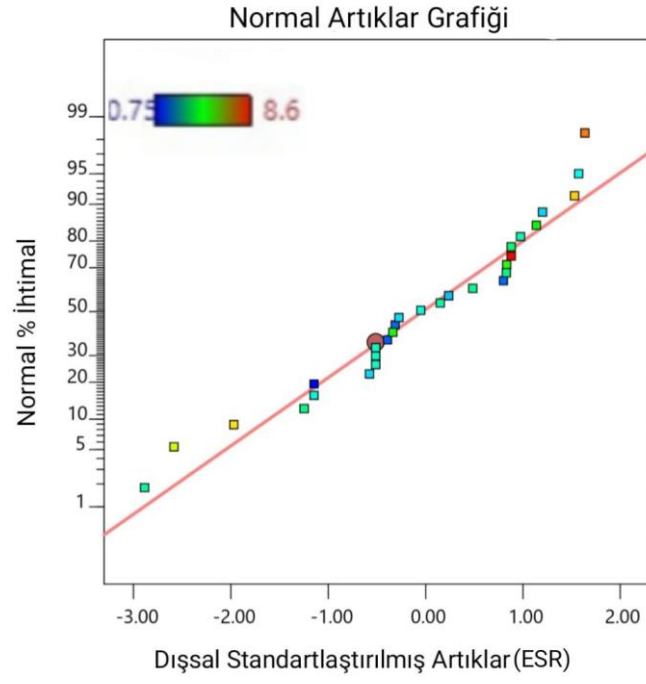
X₂ : Akım yoğunluğu

X₃ : NaCl derişimi

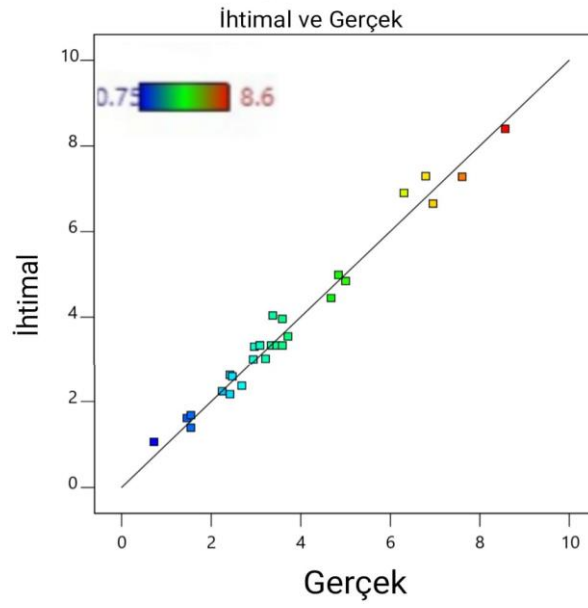
X₄ : Başlangıç derişimi

6.2.7.1. Diagnostik grafikler

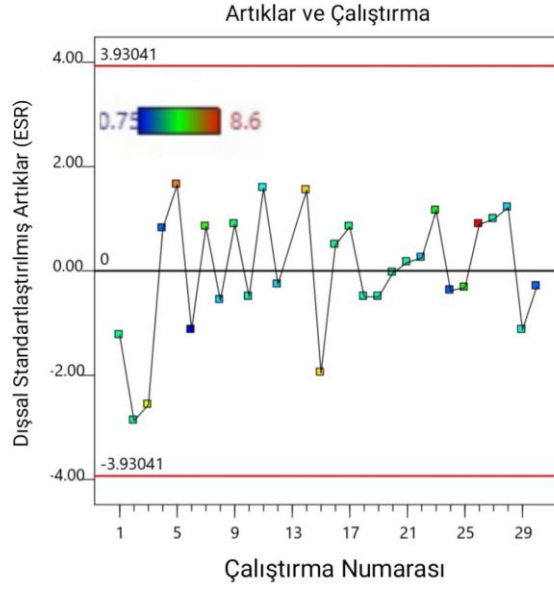
İhtimal dağılım grafiği Şekil 6.8'de, ihtimal ve gerçek dağılım grafiği Şekil 6.9 'da, deney yapılış sırasına göre hataların dağılımı Şekil 6.10'da verilmiştir.



Şekil 6.8. İhtimal dağılım grafiği



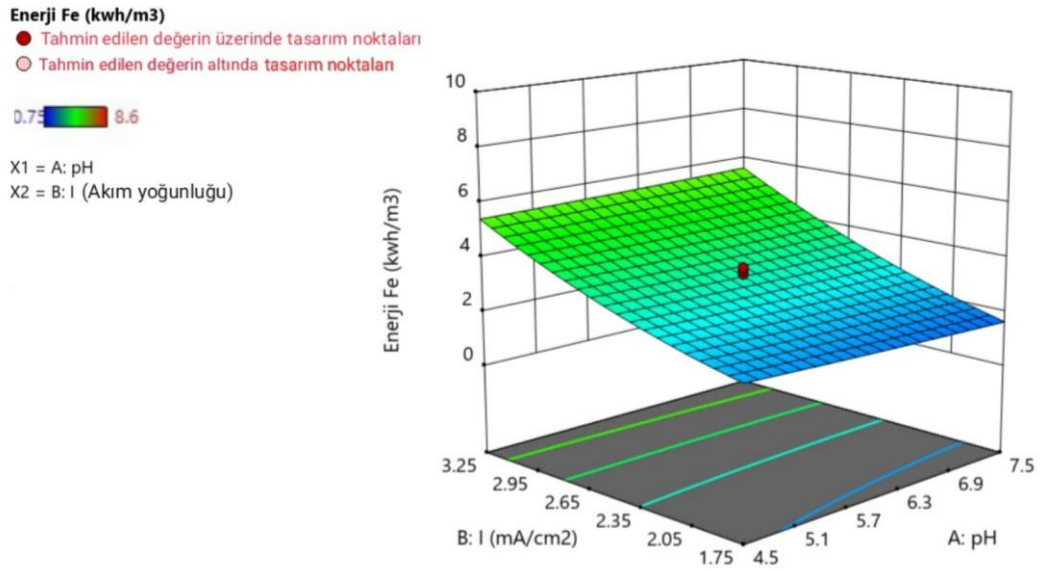
Şekil 6.9. İhtimal ve gerçek dağılım grafiği



Şekil 6.10. Deney yapılış sırasına göre hataların dağılımı

6.2.7.2. Akım yoğunluğu ve pH'ın enerji tüketimi üzerine etkisi

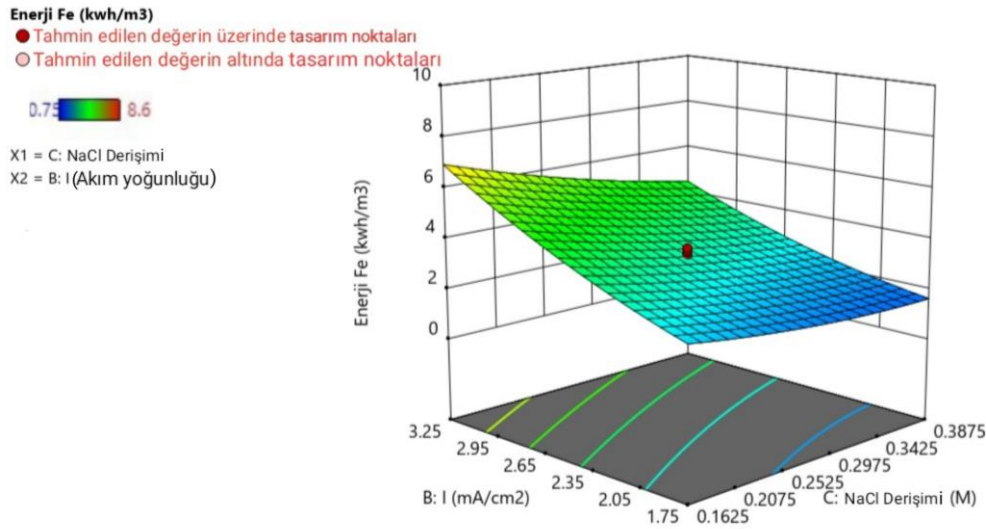
Şekil 6.11'de görüldüğü üzere, tüm akım yoğunluklarında pH'ın enerji tüketimi üzerine etkisi görülmemektedir.



Şekil 6.11. Akım yoğunluğu ile pH'ın enerji tüketimi üzerine etkisi

6.2.7.3. Akım yoğunluğu ve destek elektrolitin enerji tüketimi üzerine etkisi

Şekil 6.12’de görüldüğü üzere akım yoğunluğunun enerji tüketimi üzerine etkisi düşük NaCl derişimlerinde daha fazladır. Akım yoğunluğu arttıkça NaCl derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi de artmaktadır.

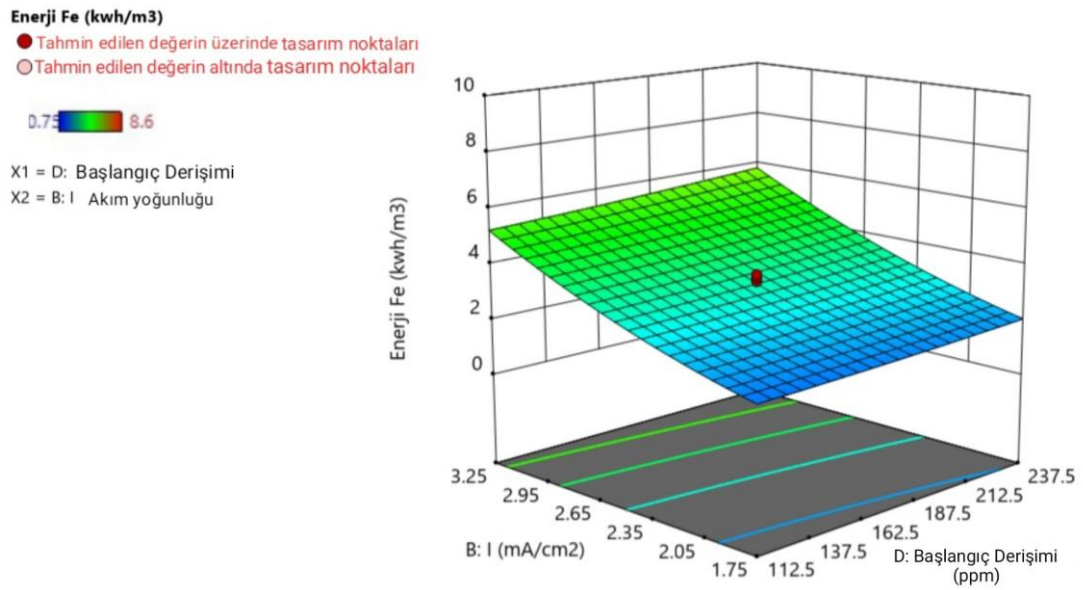


Şekil 6.12. Akım yoğunluğu ile NaCl derişiminin enerji tüketimine etkisi

6.2.7.4. Akım yoğunluğu ve başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi

Şekil 6.13’de görüldüğü üzere düşük akım yoğunluklarında başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi yoktur. Yüksek akım yoğunluğunda ise başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine bir miktar etkisinin olduğu görülmektedir.

Demir elektrot kullanılarak gerçekleştirilen elektrokoagülasyon çalışmaları enerji tüketimi açısından model ile değerlendirildiğinde deęişkenlerin alt ve üst limitleri Çizelge 6.8’de görülmektedir. Modelin önerdiği çözümler Çizelge 6.9’da verilmiştir.



Şekil 6.13. Akım yoğunluğu ile başlangıç derişiminin enerji tüketimine etkisi

Çizelge 6.8. Alt ve üst limitler

İsim	Hedef	Alt limit	Üst Limit	Alt Ağırlık	Üst Ağırlık	Önem
A:pH	aralık içinde	3,0000	9,0	1	1	3
B:I	aralık içinde	1,0000	4,0	1	1	3
C:NaCl Derişimi	aralık içinde	0,1625	0,5	1	1	3
D:Başlangıç Derişimi	aralık içinde	50,0000	300,0	1	1	3
Deney süresi 15 dk için % Giderim	maksimize	13,0000	100,0	1	1	3
Enerji tüketimi kWh/m³	minimize	0,7500	8,6	1	1	3

Çizelge 6.9. Model tasarımında bulunan çözümler

No	pH	I	NaCl Derişimi (M)	Başlangıç Derişimi (ppm)	% Giderim	Enerji tüketimi kWh/m ³	Arzu edilen enerji tüketimi kWh/m ³	
1	9,000	1,647	0,362	50,000	75,578	1,226	0,822	Seçilen
2	9,000	1,649	0,362	50,000	75,594	1,228	0,822	
3	9,000	1,648	0,361	50,000	75,590	1,228	0,822	
4	9,000	1,647	0,363	50,000	75,576	1,226	0,822	
5	9,000	1,655	0,361	50,000	75,666	1,237	0,822	
6	9,000	1,641	0,361	50,001	75,519	1,219	0,822	
7	9,000	1,648	0,364	50,000	75,588	1,228	0,822	
8	9,000	1,652	0,363	50,003	75,626	1,232	0,822	
9	9,000	1,657	0,364	50,000	75,680	1,239	0,822	
10	8,996	1,658	0,362	50,001	75,688	1,240	0,822	

6.3 Alüminyum Elektrot kullanılarak Elde Edilen Deney Tasarım Sonuçları

6.3.1. Model sonuçları

Merkezi karma tasarım modelinin çalıştırılması sonucunda Çizelge 6.10'dan da görüldüğü gibi kuadratik model deneysel sonuçların yorumlanması için uygun olduğu görülmektedir. Ayarlanmış (adjusted) ve öngörölmüş (predicted) korelasyon katsayısı (R^2) en yüksek kuadratik modelde elde edilmektedir.

Çizelge 6.10. Korelasyon katsayıları

Model	Ardışık (Sequential) p-değeri	Uyum eksikliği (Lack of Fit) p-değeri	Ayarlanan (Adjusted) R^2	Öngörölen (Predicted) R^2	
Liner	< 0,0001	0,0009	0,7688	0,7118	
2FI	0,1885	0,0011	0,8053	0,6265	
Kuadratik	< 0,0001	0,0413	0,9610	0,8394	önerilen
Kübik	0,0413		0,9890		

İndirgenmiş kuadratik model için ANOVA testi Çizelge 6.11’de görülmektedir. Çizelgeden de görüldüğü gibi Model F değeri 54,41 çıkmıştır ve bu da modelin anlamlı olduğunu belirtmektedir. F değerinde gürültüden dolayı yalnızca % 0,01’lik değişim olmuştur. P değerinin 0,0500’den daha düşük olması modelin anlamlı olduğunu gösterir. Değişkenlerin ilişkisinin doğrusal, birbiriyle etkileşimli ve karesiyle orantılı olduğu görülmüştür. Modelde A, B, D, AD, BC, BD, CD, A², C², D² terimleri önemli çıkmış, bazı terimler ise P değeri 0,1’den büyük olduğu için model içerisinde önemli olmadığı belirlenmiştir. Çizelge 6.11’de ayrıca görüldüğü gibi Uyum eksikliğinin (Lack of Fit) 4,71 olması, önemsiz olduğunu (not significant) göstermektedir.

Çizelge 6.11. İndirgenmiş kuadratik model için ANOVA testi

Kaynak	Kareler Toplamı	df	Ortalama Kare	F-değeri	p-değeri	
Model	4099,39	13	315,34	54,41	< 0,0001	Önemli
A-pH	177,54	1	177,54	30,63	< 0,0001	
B-I	1323,98	1	1323,98	228,43	< 0,0001	
C-NaCl Derişimi	26,29	1	26,29	4,54	0,0529	
D-Başlangıç derişimi	2124,07	1	2124,07	366,47	< 0,0001	
AB	13,88	1	13,88	2,39	0,1457	
AC	11,84	1	11,84	2,04	0,1765	
AD	43,25	1	43,25	7,46	0,0171	
BC	78,73	1	78,73	13,58	0,0027	
BD	35,44	1	35,44	6,11	0,0280	
CD	120,10	1	120,10	20,72	0,0005	
A²	39,24	1	39,24	6,77	0,0219	
C²	195,24	1	195,24	33,68	< 0,0001	
D²	253,66	1	253,66	43,76	< 0,0001	
Artık	75,35	13	5,80			
Uyum eksikliği (Lack of Fit)	66,52	8	8,31	4,71	0,0524	önemsiz
Hata (Pure Error)	8,83	5	1,77			
Düzeltilmiş Toplam	4174,74	26				

*Bu analiz için şu satırlar göz ardı edildi: 28, 30, 29

Çizelge 6.12’de modelin öngörülen ve düzeltilmiş korelasyon katsayısı (Predicted R²) değerleri verilmiştir. Bu değerler sırasıyla 0,8481 ve 0,9639’dur ve ikisi arasındaki fark 0,2’den azdır. Bu da bu değerlerin uyum içinde olduğunu gösterir. Adeq Precision, sinyal gürültü oranını ölçer, 4’ten büyük olması arzu edilir, 29,12 oranı tatmin edici bir değerdir, bu modelin tasarım için kullanılabileceğini gösterir.

Çizelge 6.12. Uyum İstatistikleri

St. Sapma	Ortalama	V. K. % Varsayılan Katsayılar	R ²	Ayarlanmış (Adjusted) R ²	Öngörülen (Predicted) R ²	Yeterli hassasiyet (Adeq Precision)
2,41	73,48	3,28	0,9820	0,9639	0,8481	29,1202

Modelin önerdiği değişkenler arasındaki ilişkiyi gösteren eşitlik ise Eşitlik (6.2)’de verilmiştir. Bu denklem her faktörün belirli seviyelerinde yanıtlar hakkında tahminde bulunmak için kullanılabilir. Ortaya çıkan matematiksel Eşitlik (6.4) de verilmiştir.

$$\begin{aligned}
 Y = & 94,36798 + 1,00632X_1 + 1,47243X_2 - 90,00588X_3 - 0,294135X_4 - \\
 & 0,924162X_1 \times X_2 - 5,69077X_1 \times X_3 - 0,019577X_1 \times X_4 + 31,51088X_2 \times X_3 + \\
 & 0,038053X_2 \times X_4 - 0,467019X_3 \times X_4 + 0,723104X_1^2 + 211,87537X_3^2 + \\
 & 0,000782X_4^2
 \end{aligned} \tag{6.4}$$

X₁ : pH

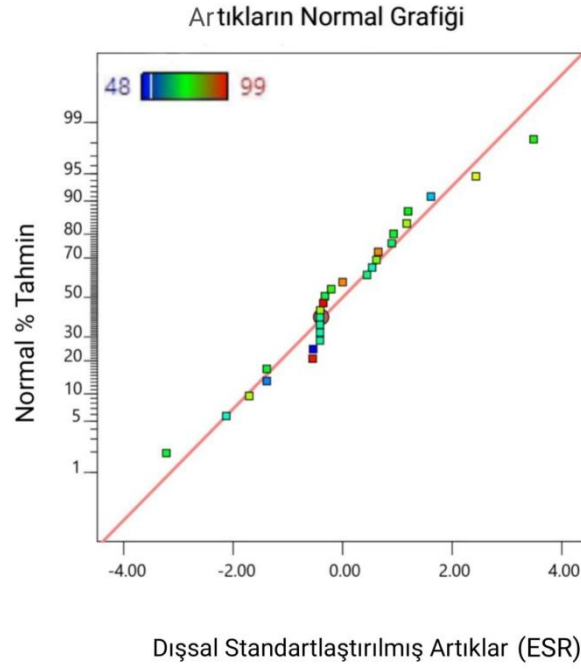
X₂ : I

X₃ : NaCl Derişimi

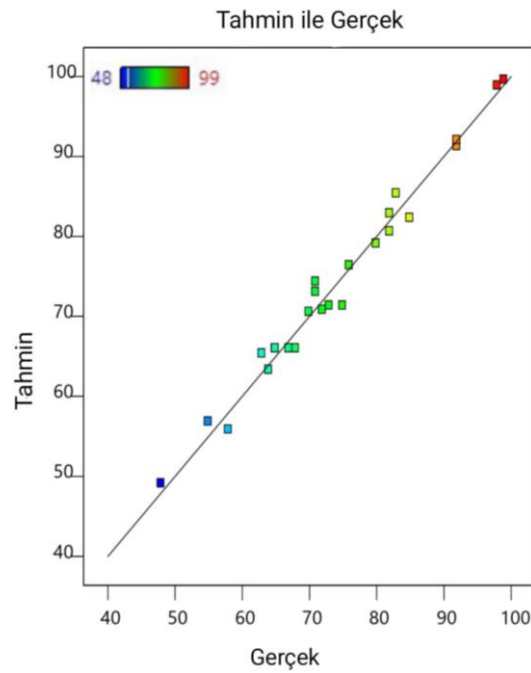
X₄ : Başlangıç Derişimi

6.3.2. Diagnostik grafikler

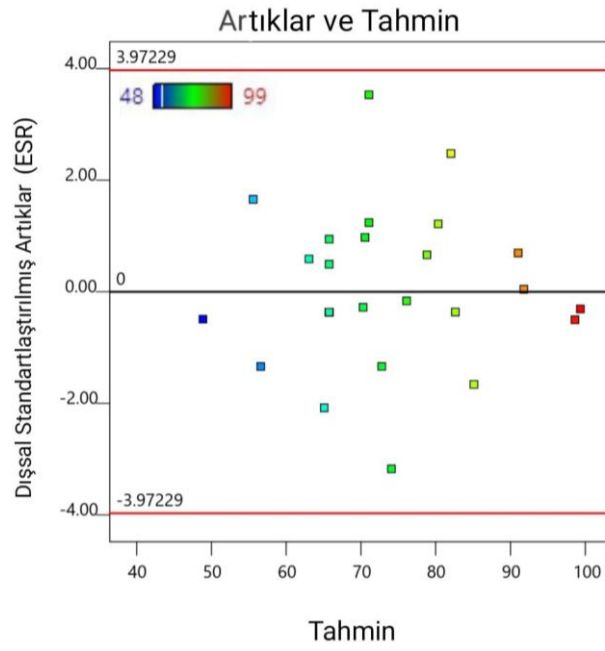
Şekil 6.14’de Olasılık dağılım grafiği, Şekil 6.15’de olasılık ve gerçek dağılım grafiği, Şekil 6.16’da hata dağılım grafiği, Şekil 4.17’de deney yapılış sırasına göre hataların dağılım grafiği verilmiştir.



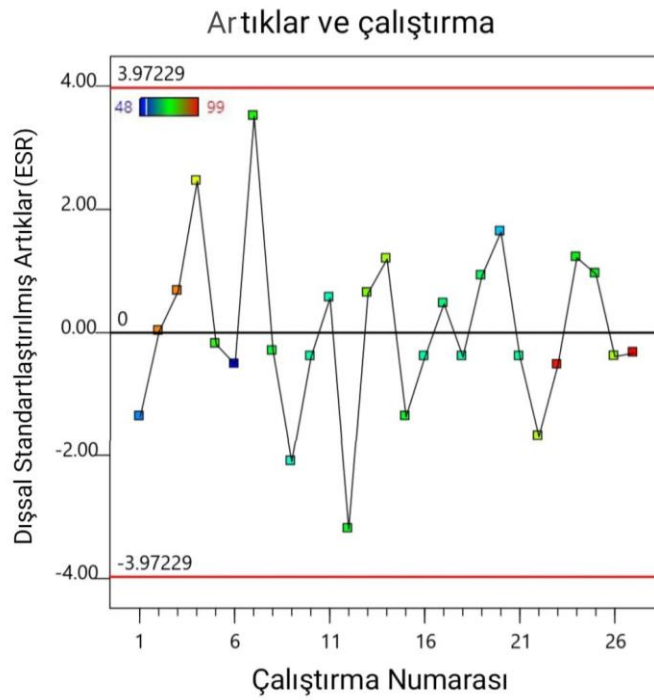
Şekil 6.14. Olasılık dağılım grafiği



Şekil 6.15. Olasılık ve Gerçek Dağılım Grafiği



Şekil 6.16. Hata dağılım grafiği

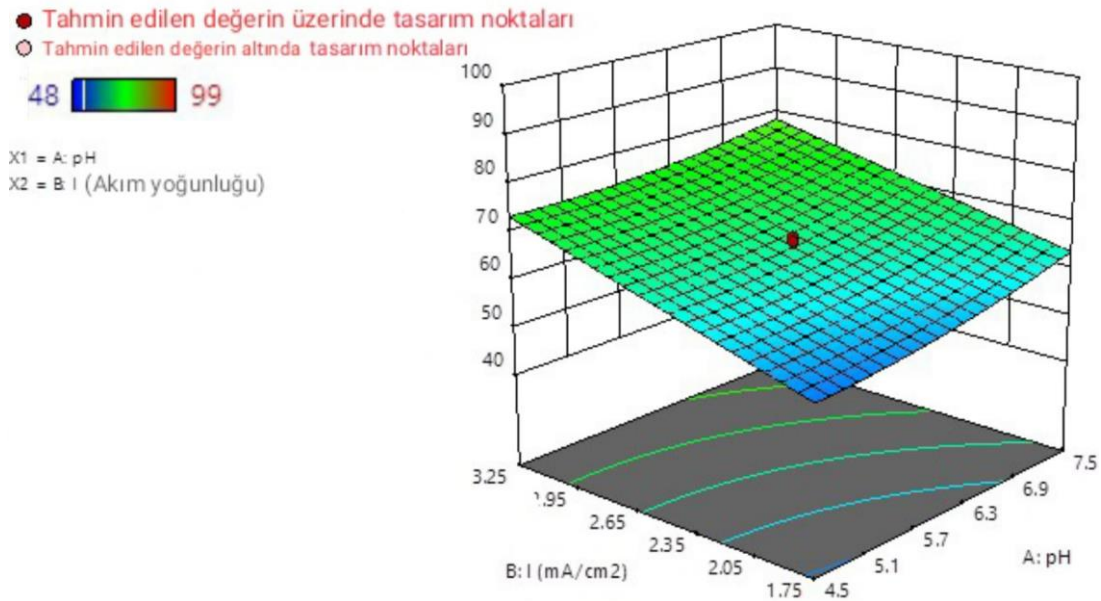


Şekil 6.17. Deney yapılış sırasına göre hataların dağılımı

6.3.3. Akım yoğunluğu ile pH'ın giderim verimine etkisi

Şekil 6.18'den görüldüğü gibi akım yoğunluğu ile giderim verimi artmıştır. Tüm pH değerleri için aynı eğilim görülmüştür. Yüksek pH'larda verim artışı daha fazladır. En

yüksek giderim % 78,03 değeri, pH 7,5 ve akım yoğunluğu 3,25 mA/m² dedir. En düşük % 54,7 ile en düşük pH ve akım yoğunluğunda görülmektedir.

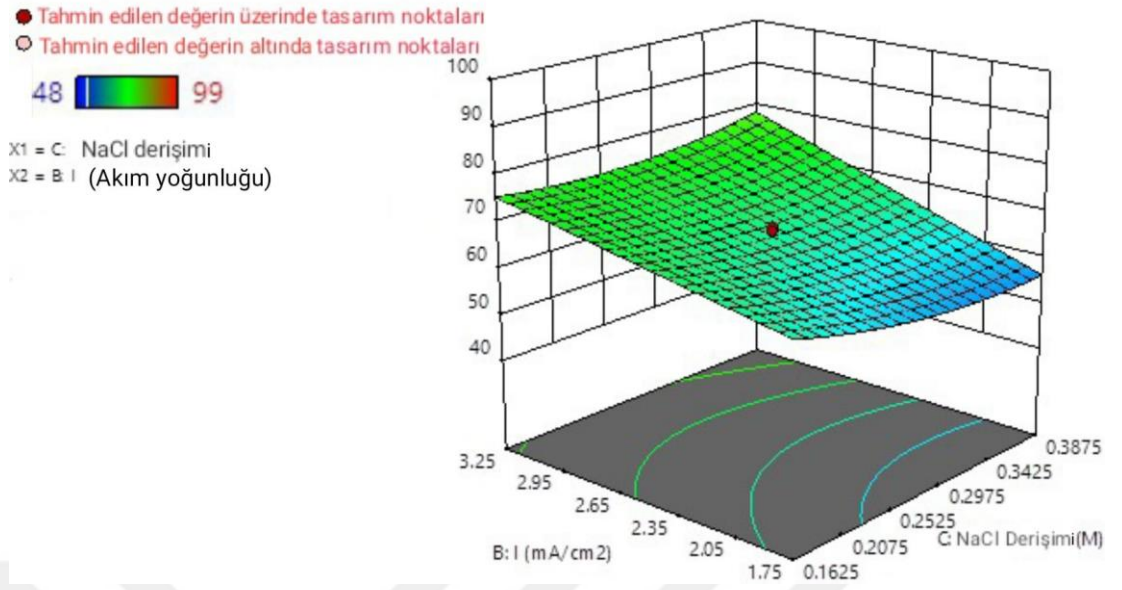


Şekil 6.18. Akım yoğunluğu ve pH'in giderim verimine etkisi

6.3.4. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin giderim üzerine etkisi

EK işlemleri, çözeltinin elektrolitik iletkenliğinden etkilenir. Destekleyici elektrolit miktarının uzaklaştırma verimi üzerindeki etkisi, destekleyici elektrolit olarak NaCl kullanılarak değerlendirilmiştir.

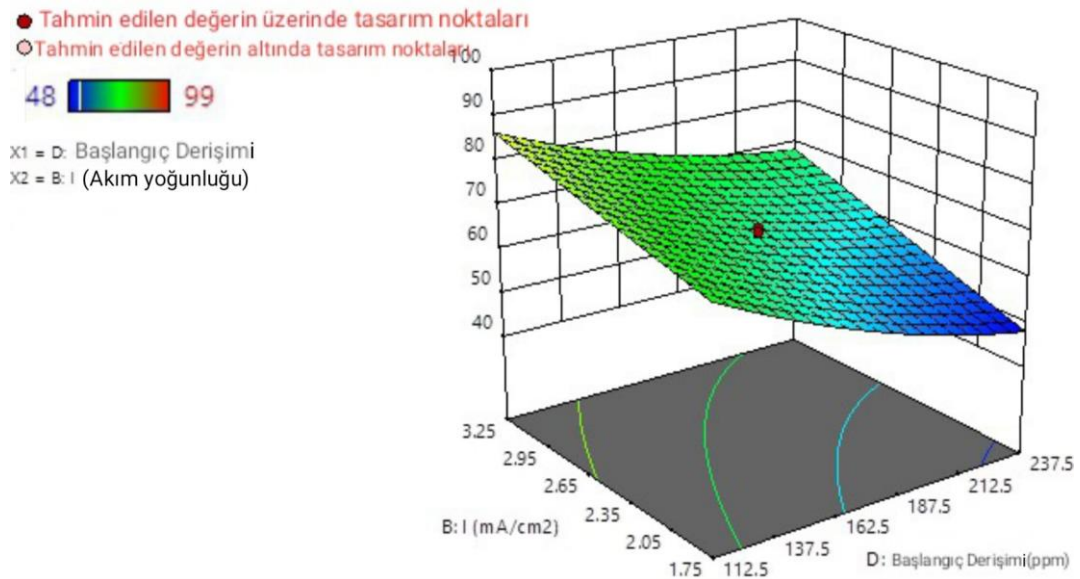
Şekil 6.19'de akım yoğunluğu ve destek elektrolitinin giderim verimi üzerine etkisi görülmektedir. Akım yoğunluğu 1,75 iken düşük elektrolit derişimi daha yüksek verim sağlamıştır. Elektrolit derişiminin etkisi düşük akım yoğunluğunda daha fazladır. Akım yoğunluğu yüksek olduğunda (2,65 ve üzeri) elektrolit derişiminin giderim verimine etkisi daha azdır. En yüksek verim (%77,95) akım yoğunluğu ve elektrolit derişimi en yüksek değerlerde elde edilmiştir. En düşük verim (%56,5), 0,3854 M NaCl derişiminde ve 1,75 mA/cm² akım yoğunluğundadır.



Şekil 6.19. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin giderim üzerine etkisi

6.3.5. Başlangıç Ni derişimi ve akım yoğunluğunun giderim verimine etkisi

Şekil 6.20’de görüldüğü gibi başlangıç derişimi ve akım yoğunluğunun her ikisinin de giderim verimine etkisi yüksektir. Bütün akım yoğunluklarında derişim arttıkça verim azalmaktadır. En yüksek giderim verimi % 86 (3,25 mA/cm² ve 112,5 ppm). En düşük % 48,3 (1,75 mA/cm² ve 237,5 ppm) dir.



Şekil 6.20. Başlangıç Ni derişimi ve akım yoğunluğunun giderim verimine etkisi

6.3.6. Optimizasyon sınırlılıkları ve raporu

Al elektrot kullanılarak gerçekleştirilen EK çalışmalarının sonuçları model ile değerlendirildiğinde değişkenlerin alt ve üst limitleri Çizelge 6.13'de görülmektedir. Modelin önerdiği çözümler Ek Açıklamalar-B'de verilmiştir.

Çizelge 6.13. Alt ve üst limitler

İsim	Amaç	Alt Limit	Üst Limit	Alt Ağırlık	Üst Ağırlık	Önem
A: pH	Aralık içinde	3,00	7,5	1	1	3
B: Akım yoğunluğu	Aralık içinde	1,00	4,0	1	1	3
C: NaCl Derişimi	Aralık içinde	0,05	0,5	1	1	3
D: Başlangıç Der.	Aralık içinde	50,00	300,0	1	1	3
Deney süresi: 15 dk için % Giderim	Makimize	48,00	99,0	1	1	3

6.3.7. Enerji Tüketiminin Değerlendirilmesi

Bölüm 5 Çizelge 5.1'de verilen modelin belirlediği 30 adet deneyin sonuçlarına göre Eşitlik (5.2) kullanılarak enerji tüketim miktarları hesaplanmıştır (Çizelge 6.1). Çıktı olarak enerji tüketim miktarları alınarak deney parametrelerinin enerji tüketimi üzerine etkisi model kullanılarak belirlenmiştir. İndirgenmiş kuadratik modele göre ANOVA testi Çizelge 6.14'de verilmiştir. Çizelge 6.14'de model F değeri 49,71 modelin önemli olduğunu gösterir. Gürültü nedeniyle bu kadar büyük bir F değerinin oluşma ihtimali yalnızca % 0,01' dir.

0,0500' den küçük P değerleri, model terimlerinin anlamlı olduğunu gösterir. Bu durumda A, B, C, AB, BC önemli model terimleridir. 0,1000'den büyük değerler, model terimlerinin önemli olmadığını gösterir. 1,97'lik Uyum eksikliği F değeri, Uyum eksikliğinin saf hataya göre önemli olmadığını gösterir. Gürültü nedeniyle bu kadar büyük

bir Uyum eksikliği F değerinin oluşma ihtimali % 23,67' dir. Önemli olmayan uyum eksikliği iyidir - modelin uymasını istiyoruz.

Çizelge 6.14. Enerji tüketim için kuadratik model ANOVA testi*

Kaynak	Kareler Toplamı	df	Ortalama Kare	F-değer	p-değer	
Model	157,2000	14	11,2300	49,7100	< 0,0001	önemli
A-pH	7,4400	1	7,4400	32,9300	< 0,0001	
B-I	121,2800	1	121,2800	536,8900	< 0,0001	
C-NaCl Derişimi	16,3100	1	16,3100	72,1900	< 0,0001	
D-Başlangıç Der.	0,2063	1	0,2063	0,9132	0,3567	
AB	1,7200	1	1,7200	7,6300	0,0162	
AC	0,1016	1	0,1016	0,4498	0,5142	
AD	0,1650	1	0,1650	0,7306	0,4082	
BC	4,1000	1	4,1000	18,1500	0,0009	
BD	0,2025	1	0,2025	0,8965	0,3610	
CD	0,9629	1	0,9629	4,2600	0,0595	
A²	0,1332	1	0,1332	0,5897	0,4563	
B²	0,9445	1	0,9445	4,1800	0,0617	
C²	0,4134	1	0,4134	1,8300	0,1992	
D²	0,0070	1	0,0070	0,0309	0,8632	
Artık	2,9400	13	0,2259			
Uyum eksikliği	2,2300	8	0,2785	1,9700	0,2367	önemsiz
Hata	0,7083	5	0,1417			
Düzeltilmiş Toplam	160,1300	27				

*Bu analiz için şu satırlar göz ardı edildi: 9, 13

Çizelge 6.15'de görüldüğü gibi 0,8970'lik Öngörülen R², 0,9619'luk düzeltilmiş R² ile makul bir uyum içindedir; yani fark 0,2'den azdır. Yeterli hassasiyet, sinyal-gürültü oranını ölçer. 4'ten büyük bir oran arzu edilir. 27,390 oranınız yeterli bir sinyali gösterir.

Çizelge 6.15. Uyum istatistikleri

St. Sapma	Ortalama	V. K. % Varyasyon katsayısı	R ²	Ayarlanan (Adjusted) R ²	Öngörülen (Predicted) R ²	Yeterli hassasiyet (Adeq Precision)
0,4753	5,0200	9,4700	0,9817	0,9619	0,8970	27,3904

Bu model, tasarım alanında gezinmek için kullanılabilir. Bu model için bulunan Eşitlik (6.5)'de verilmiştir.

$$\begin{aligned}
Y = & 0,670123 - 0,471181X_1 + 1,62895X_2 - 4,21684X_3 + 0,002884X_4 + \\
& 0,291667X_1 \times X_2 - 0,472222X_1 \times X_3 - 0,001083X_1 \times X_4 - 6,00000X_2 \times X_3 - \\
& 0,002400X_2 \times X_4 + 0,034889X_3 \times X_4 + 0,041937X_1^2 + 0,337654X_2^2 + \\
& 13,13443X_3^2 - 4,1778 \times 10^{-6}X_4^2
\end{aligned} \quad (6.5)$$

X₁ : pH

X₂ : Akım yoğunluğu

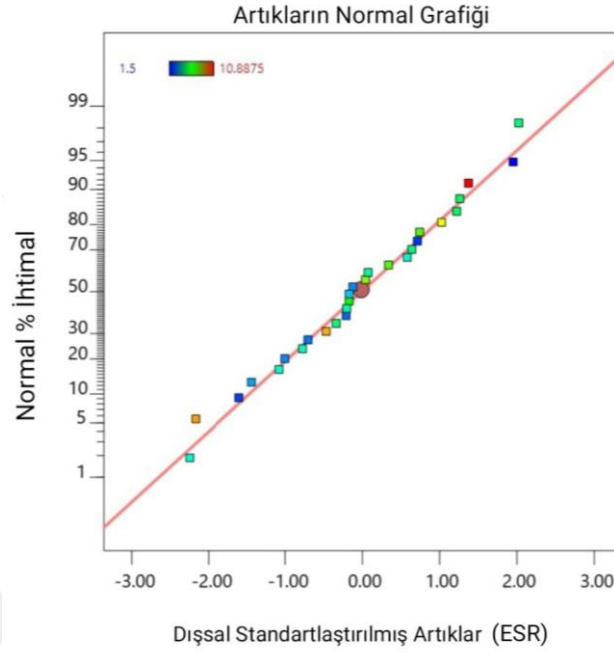
X₃ : NaCl derişimi

X₄ : Başlangıç derişimi

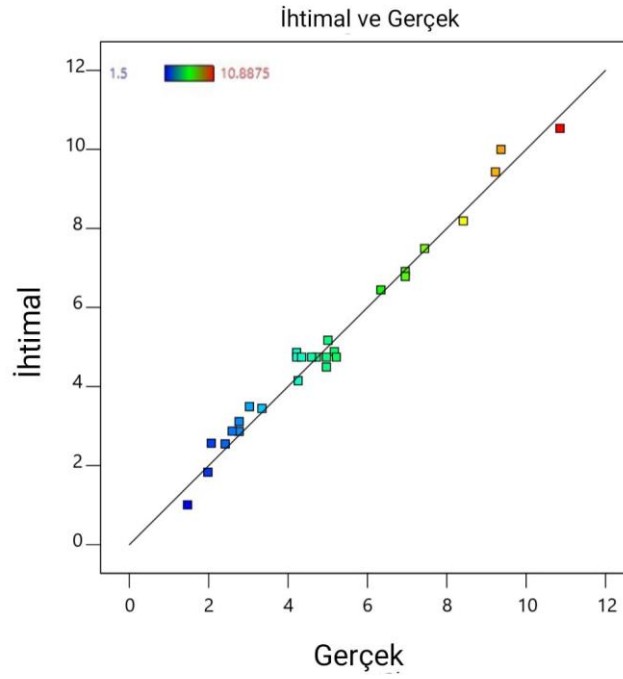
Gerçek faktörler cinsinden denklem, her faktörün belirli seviyeleri için yanıt hakkında tahminlerde bulunmak için kullanılabilir. Burada seviyeler, her faktör için orijinal birimlerde belirtilmelidir. Bu denklem, her faktörün göreceli etkisini belirlemek için kullanılmamalıdır, çünkü katsayılar her faktörün birimlerini barındıracak şekilde ölçeklenir ve kesişme, tasarım alanının merkezinde değildir.

6.3.7.1. Dianostik grafikler

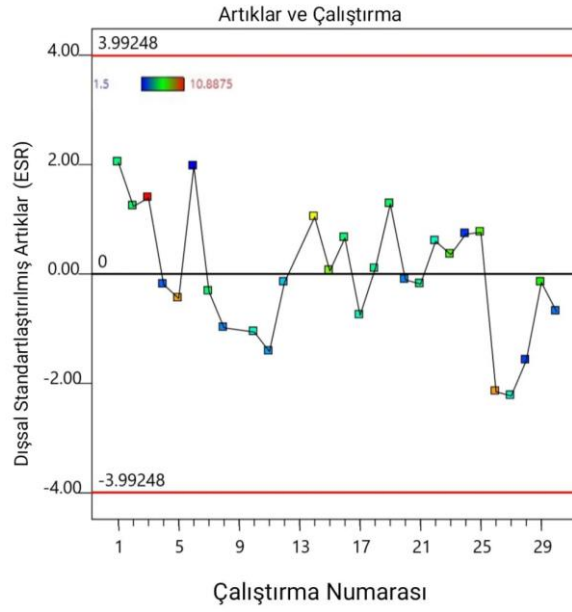
Olasılık dağılım grafiği Şekil 6.21'de, ihtimal ve gerçek grafiği Şekil 6.22'de, deney yapılış sırasına göre hataların dağılım grafiği Şekil 6.23'de verilmektedir.



Şekil 6.21. Olasılık dağılım grafiği



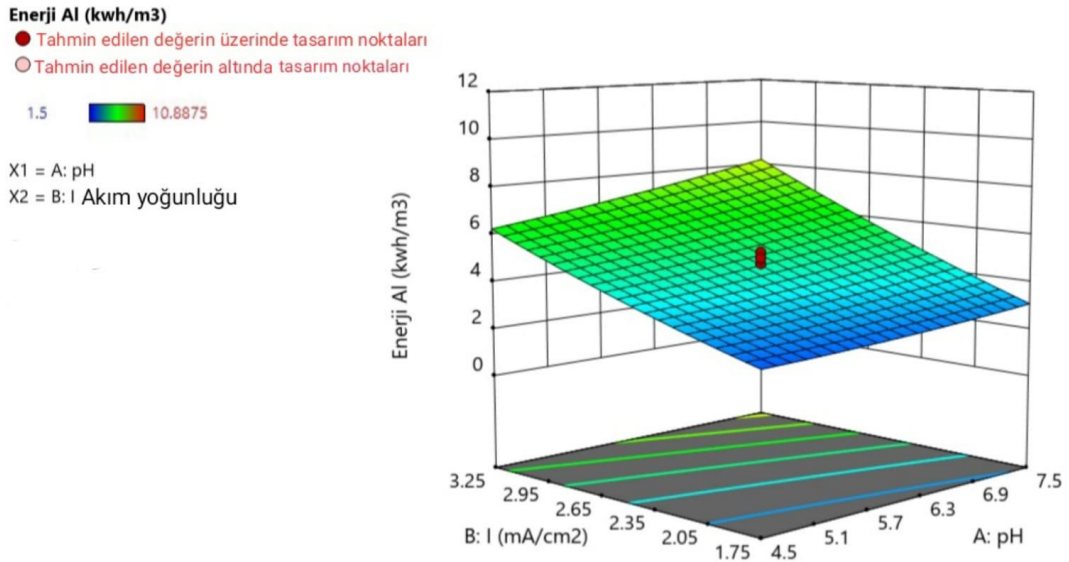
Şekil 6.22. İhtimal ve gerçek grafiği



Şekil 6.23. Deney yapılış sırasına göre hataların dağılım grafiği

6.3.7.2. Akım yoğunluğu ve pH'nin enerji tüketimi üzerine etkisi

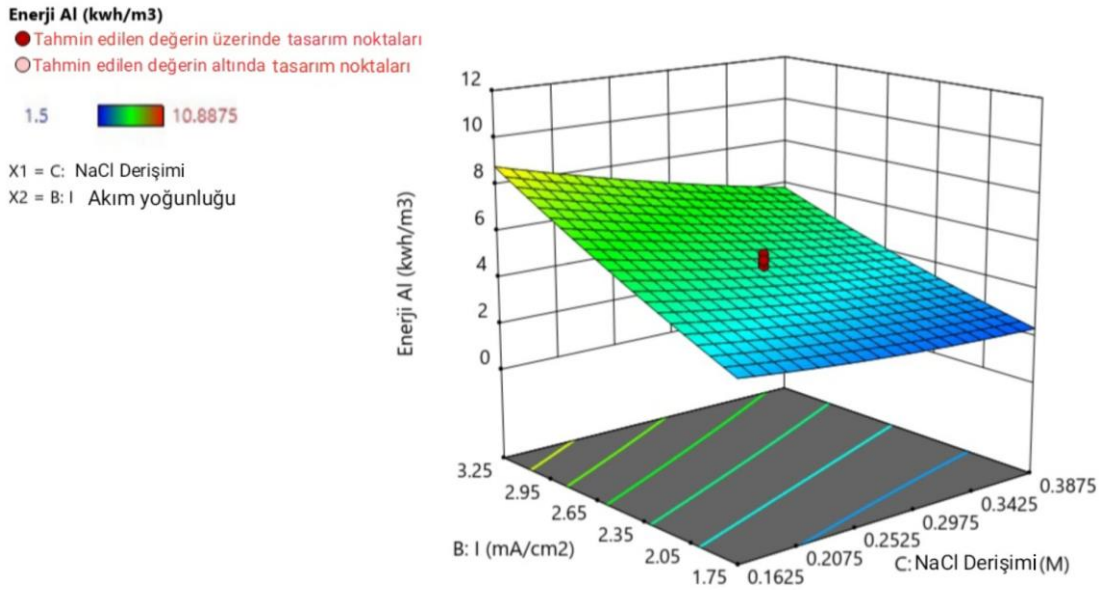
Şekil 6.24'de görüldüğü gibi akım yoğunluğu pH'nin enerji tüketimi üzerinde etkisi yüksekken, düşük akım yoğunluklarında pH'nin enerji tüketimi üzerine fazla etkisi yoktur.



Şekil 6.24. Akım yoğunluğu ve pH'nin enerji tüketimi üzerine etkisi

6.3.7.3. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi

Şekil 4.25’de görüldüğü üzere yüksek akım yoğunluğunda NaCl derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi yüksektir. Düşük akım yoğunluğunda ise NaCl derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi fazla değildir.

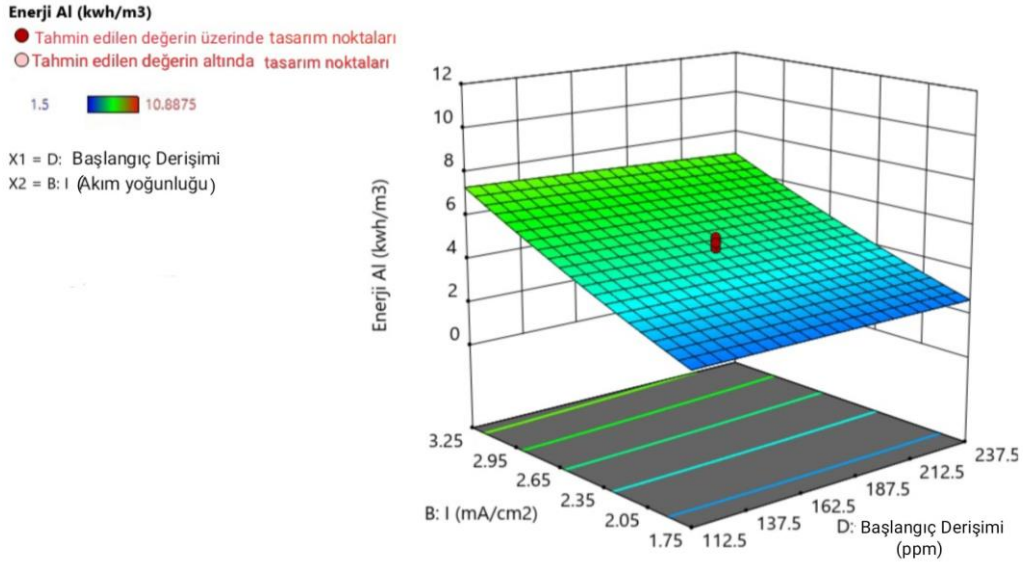


Şekil 6.25. Akım yoğunluğu ve destek elektrolit derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi

6.3.7.4. Akım yoğunluğu ve başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi

Şekil 6.26’den görüldüğü gibi başlangıç derişiminin enerji tüketimimne etkisi yoktur.

Al elektrot kullanılarak gerçekleştirilen EK çalışmaları enerji tüketimi açısından model ile değerlendirildiğinde değişkenlerin alt ve üst limitleri Çizelge 6.16’de görülmektedir. Modelin önerdiği çözümler Çizelge 6.17’de verilmiştir.



Şekil 6.26. Akım yoğunluğu ve başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi

Çizelge 6.16. Alt ve üst limitler

İsim	Amaç	Alt Limit	Üst Limit	Alt Ağırlık	Üst Ağırlık	Önem
A:pH	Aralık içinde	4,5000	9,0000	1	1	3
B: Akım yoğunluğu	Aralık içinde	1,0000	4,0000	1	1	3
C: NaCl Derişimi	Aralık içinde	0,1625	0,5000	1	1	3
D: Başlangıç Derişimi	Aralık içinde	50,0000	300,0000	1	1	3
Deney Süresi 15 dk için % Giderimi	makimize	48,0000	99,0000	1	1	3
Enerji Tüketimi kwh/m³	minimize	1,5000	10,8875	1	1	3

Çizelge 6.17. Model tasarımında bulunan çözümler

No	pH	I	NaCl Deriş. (M)	Başlan. Deriş. (ppm)	% Giderim	Enerji tüketim kWh/m ³	Arzu edilen enerji tüketim kWh/m ³	
1	6,992	1,147	0,491	76,415	99,611	0,888	1,000	seçilen
2	5,222	1,727	0,494	54,824	105,069	1,142	1,000	
3	4,545	2,157	0,500	50,539	109,213	1,477	1,000	
4	7,096	1,563	0,462	55,935	106,392	1,429	1,000	
5	8,936	1,212	0,437	71,042	101,851	1,454	1,000	
6	7,467	1,058	0,394	51,451	100,516	0,681	1,000	
7	4,829	1,950	0,470	53,507	102,854	1,416	1,000	
8	4,515	1,765	0,486	54,583	101,315	1,090	1,000	
9	6,730	1,413	0,466	65,663	100,812	1,141	1,000	
10	5,927	1,650	0,407	50,220	99,024	1,428	1,000	

6.4. Hammaddelerin ve Elektrokoagülasyon Çamurunun Karakterizasyonu

Hammaddenin ve elektrokoagülasyon çamurlarının XRF kimyasal analizleri Çizelge 6.18’de verilmiştir.

Çizelge 6.18. Hammaddelerin kimyasal analizi

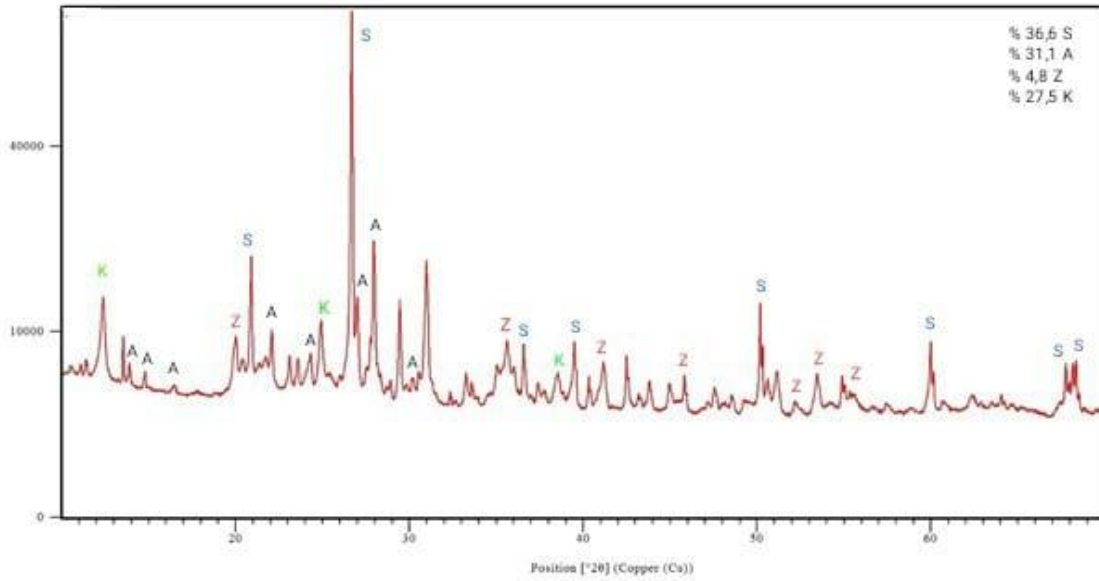
Bileşen	Atık Malzemeler % ağırlık	EKÇ-Fe % ağırlık	EKÇ-Al % ağırlık
SiO ₂	47,149	----	----
Al ₂ O ₃	16,366	----	42,688
CaO	5,756	----	----
MgO	4,136	----	----
Fe ₂ O ₃	2,512	62,564	----
Na ₂ O	2,239	13,361	14,256
ZrO ₂	1,355	----	----
TiO ₂	0,658	----	----
K ₂ O	0,641	----	----

Çizelge 6.18. Hammaddelerin kimyasal analizi. (devamı)

ZnO	0,494	-----	-----
Cl	-----	12,925	13,826
NiO	-----	1,680	1,613
Kızdırma Kaybı	17,819	8,874	27,00

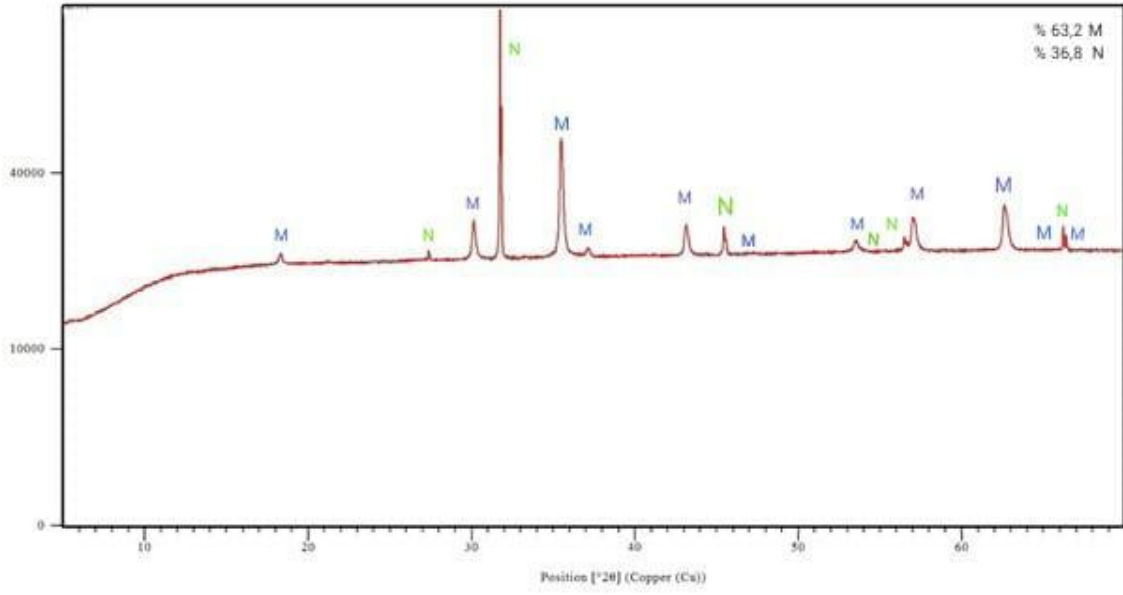
*% ağırlık < 0,05 olan bileşenler dahil edilmemiştir.

Numuneler, bir gonyometre (45-kV anot ve 40-mA filaman akımı) ile donatılmış bir Panalytical Emperian difraktometre ile toz X-ışını kırınımı (XRD) ile karakterize edilmiştir. 0,1542 nm dalga boyuna sahip nikel filtreli Cu Ka radyasyonu, numunelere enine yönde yönlendirilmişti. Gonyometrenin tarama hızı 0,133 °/s ve adım boyutu 0.01 °'dir. Ölçüm aralığı 10–70 °(2θ) dir (Şekil 6.27, 6.28, 6.. 29)



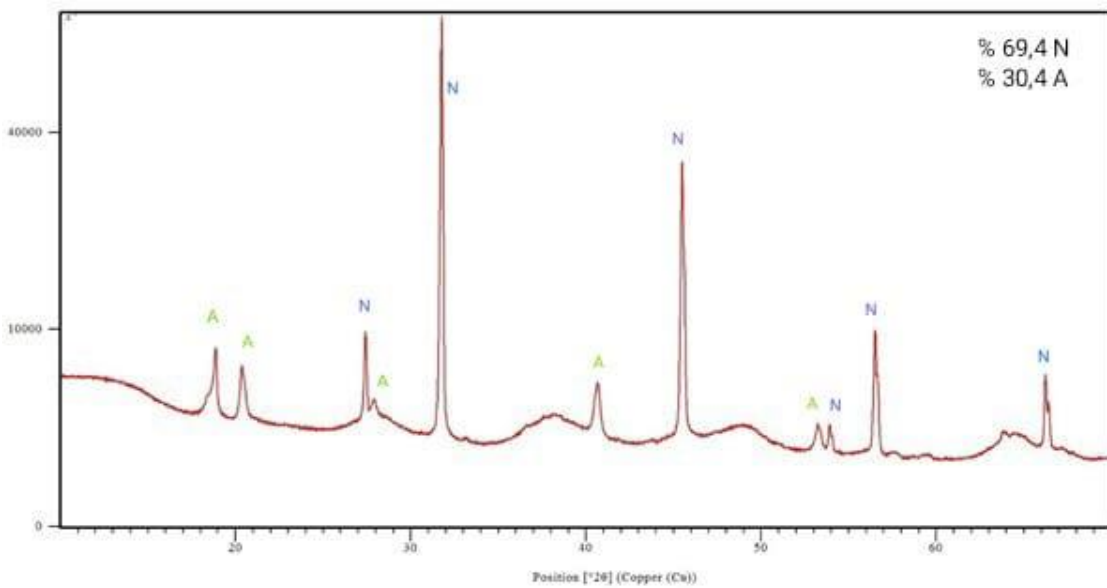
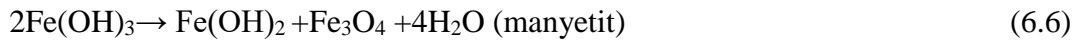
Şekil 6.27. Hammaddenin XRD spektrumu (K: Kaolinit, A: Albit, Z: Zirkon, S: Silikon Oksit)

Ham maddenin XRD analiz sonucuna göre; % 36,6 Silikon okst (SiO_2 , kart no:04-007-0522) % 31,1 Albit ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ kart no: 04-017-1022), % 4,8 zirkon (ZrSiO_4 kart no: 01-072-6856) ve % 27,5 kaolinit ($(\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$), kart no:98-006-8698) fazları bulunmaktadır.



Şekil 6.28. EKÇ-Fe nin XRD spektrumu (M: Manyetit, N: NaCl)

EKÇ-Fe nin XRD analiz sonucuna göre; % 63,2 manyetit ($\text{Fe}_{2,9}\text{O}_4$, kart no: 98-005-0273) ve % 36,8 tuz (Halite) (NaCl ; kart no:04-012-7883) fazları ortaya çıkarmaktadır. Elektrokoagülasyon sırasında demir ve demir hidroksitleri oluşmuş ve daha sonra Eşitlik (6.6)'de verilen denkleme göre magnetite dönüşmüştür.



Şekil 6.29. EKÇ-Al'nin XRD Spektrumu (N: NaCl, A: $\text{Al}(\text{OH})_3$)

EKÇ-Al'nin XRD analiz sonucuna göre; % 30,4 bayerit ($\text{Al}(\text{OH})_3$, kart no:01-074-1119) ve % 69,4 tuz (Halite) (NaCl ; kart no:98-006-0280) fazları ortaya çıkarmaktadır.

6.5. Seramik Karoların Karakterizasyonu

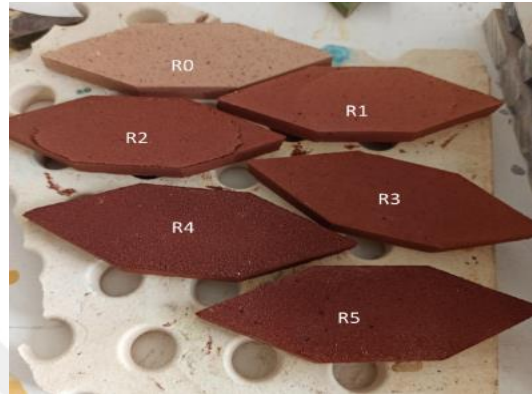
Hazırlanan seramik karoların su emme, yoğunluk ve gözeneklilik değerleri Çizelge 6.19' de verilmiştir. 1020 ve 1050 °C'de sinterlenen numunelerde EKÇ miktarı arttıkça yoğunluk azalmakta, gözeneklilik ve emilim miktarı önce azalmakta sonra artmaktadır. Çizelge 6.19'den görülebileceği gibi, EKÇ oranı % 10'a çıktığında sinterleme üzerindeki etki de artmış, dolayısıyla su emilimi ve gözeneklilik azalmıştır. EKÇ oranının daha da artması, ötektik etkinin bozulması sonucu sinterleme etkisinin azalmasına neden olur, ardından su emilimi ve gözeneklilik değerleri artar. 1020 °C' den 1050 °C'ye yükselen sıcaklıkla birlikte, seramik gövdelerde beklendiği gibi sinterleme etkisi artmaktadır. Taneler arasındaki boşlukların azalması nedeniyle su emme ve gözeneklilik azalmış, yoğunluk arttı.

Çizelge 6.19. Seramiklerin fiziksel özellikleri

Reçete*	Bulk Yoğunluk (g/cm ³)		Gözeneklilik (%)		Su Emme (%)	
	1020 °C	1050 °C	1020 °C	1050 °C	1020 °C	1050 °C
R0	1,61	1,95	39,24	24,26	24,50	12,43
R1	1,72	2,24	37,97	12,68	22,11	5,65
R2	1,79	2,38	35,85	10,19	20,57	3,89
R3	1,62	1,99	43,65	40,19	27,07	14,38
R4	1,42	1,61	47,74	66,07	33,74	24,79
R5	1,54	1,73	45,45	62,12	29,51	22,11

*R0:0 % EKÇ; R1:5 % EKÇ; R2:10 % EKÇ; R3:15 % EKÇ; R4:20 % EKÇ; R5:25 % EKÇ

Ayrıca EKÇ oranı arttıkça örneklerin renginin pembeden kırmızıya ve koyu kırmızıya değiştiği görülmüştür (Şekil 6.30). Bu durum, EKÇ' de % 62,564 oranında bulunan Fe_2O_3 'ten kaynaklanmaktadır. Bilindiği üzere Fe, seramiklerde kırmızı renkli gövde elde etmek için kullanılmaktadır.

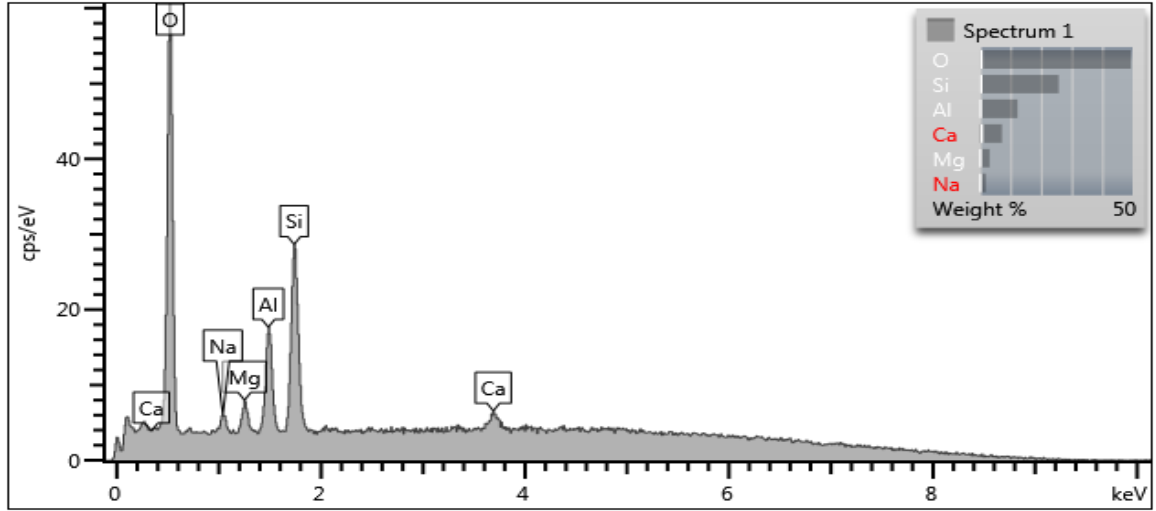


Şekil 6.30. Sinterlenmiş seramik örnekleri.

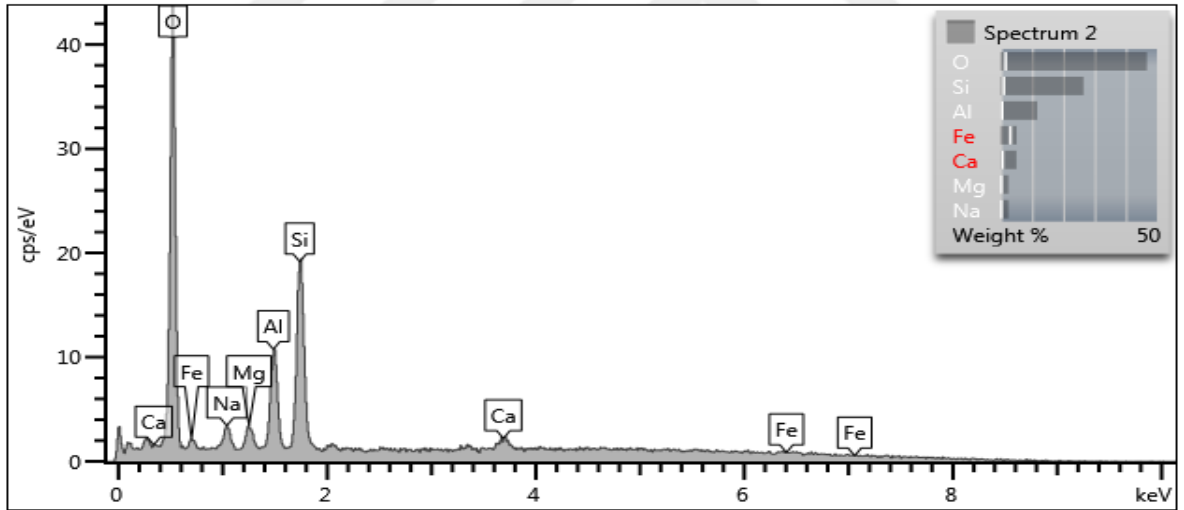
Üretilen R0 ve R2 (su emilim, ve gözeneklilik değerleri en düşük örnek) seramik örneklerinin SEM-EDX sonuçları ve SEM-EDX spektrumları Çizelge 6.20 ile Şekil 6.31-6.34'de verilmiştir.

Çizelge 6.20. Seramik örneklerin SEM analizi

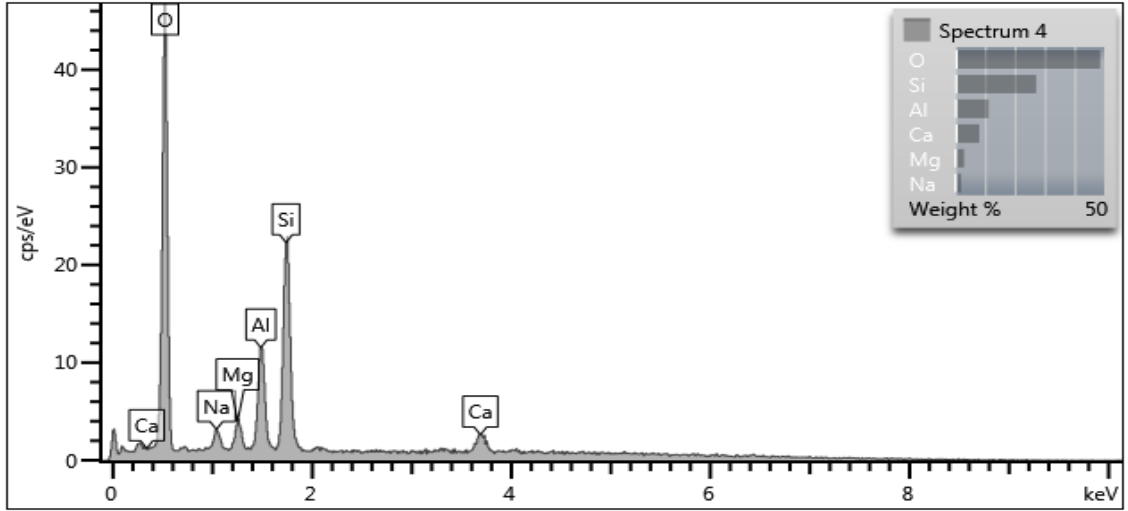
Element	% ağırlık, 1020 °C		% ağırlık, 1050 °C	
	R0	R2	R0	R2
O	48,80±0,53	43.61±1,5	47,54±0,52	44,29± 1,13
Na	1,70± 0,29	2,55±0,423	2,10±0.20	2,30±0,19
Mg	3,87±0.20	2,40±0,21	3,43±0,20	2,69±0,18
Al	12,07±0,28	11,52±0,48	12,27±0,30	11,54±0,37
Si	25,50±0,39	25,45±0,94	26,97±0,43	24,24±0,68
Ca	8,07±0,63	5,75±0,6	7,69±0,55	6,87±0,50
Fe	-----	8,65.73±3	-----	8,59±2,14



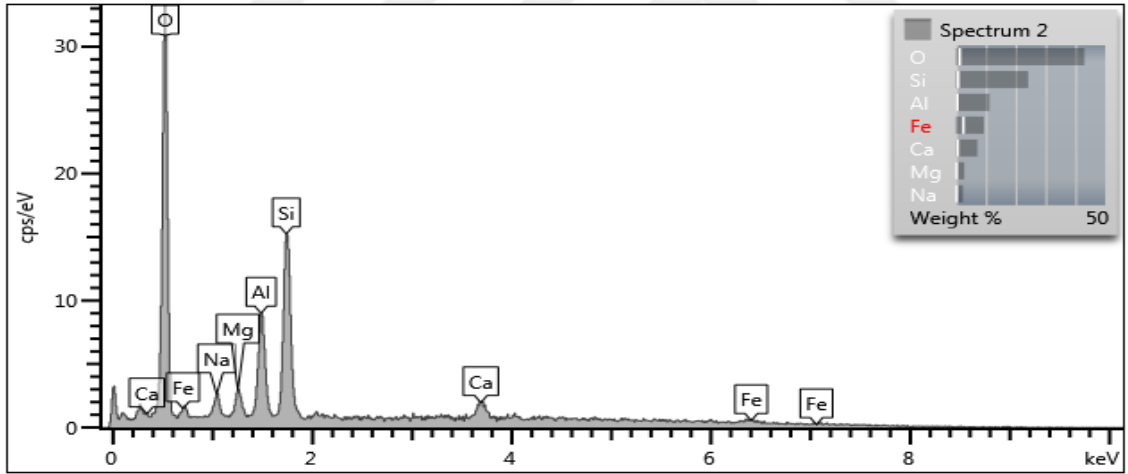
Şekil 6.31. 1020 °C’de R0 örneğinin SEM-EDX spektrumu



Şekil 6.32. 1020 °C’de R2 örneğinin SEM-EDX spektrumu

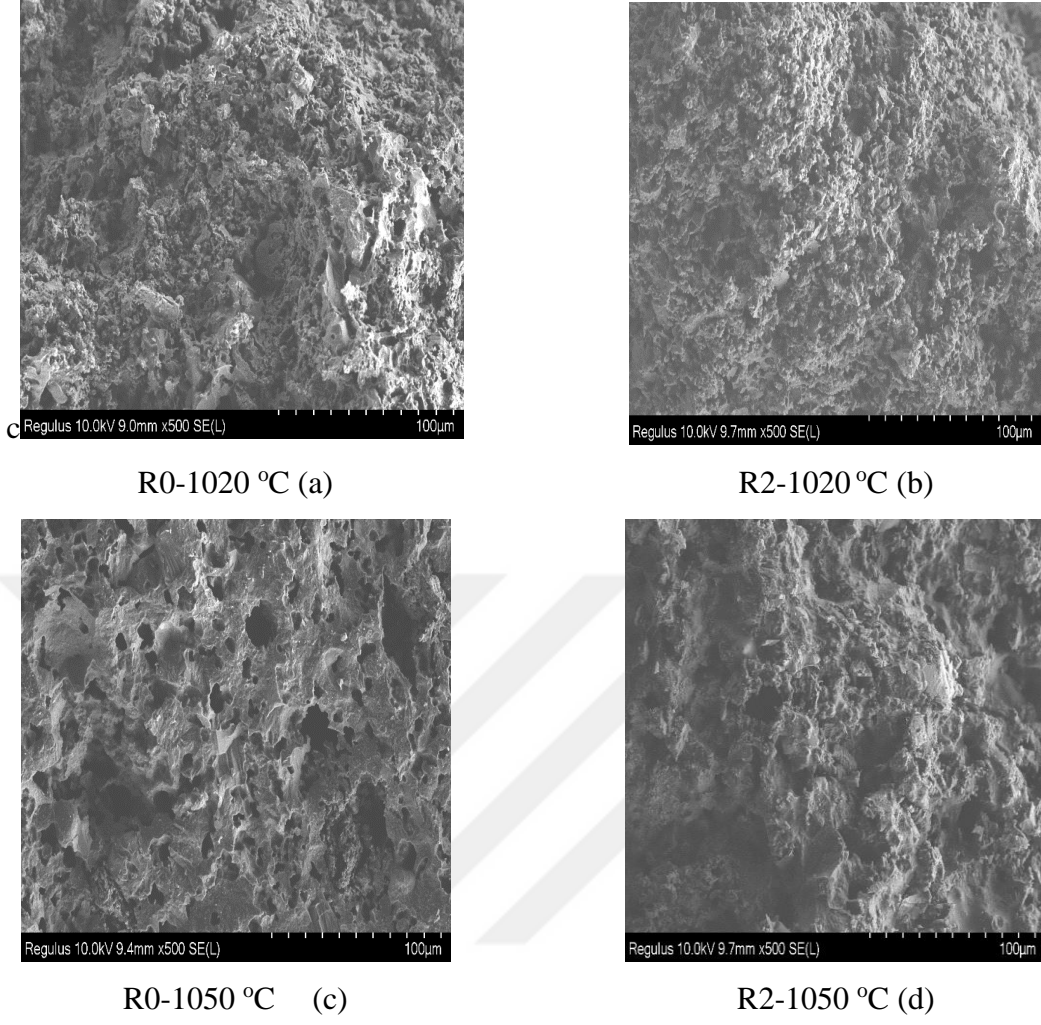


Şekil 6.33. 1050 °C’de R0 örneğinin SEM-EDX spektrumu



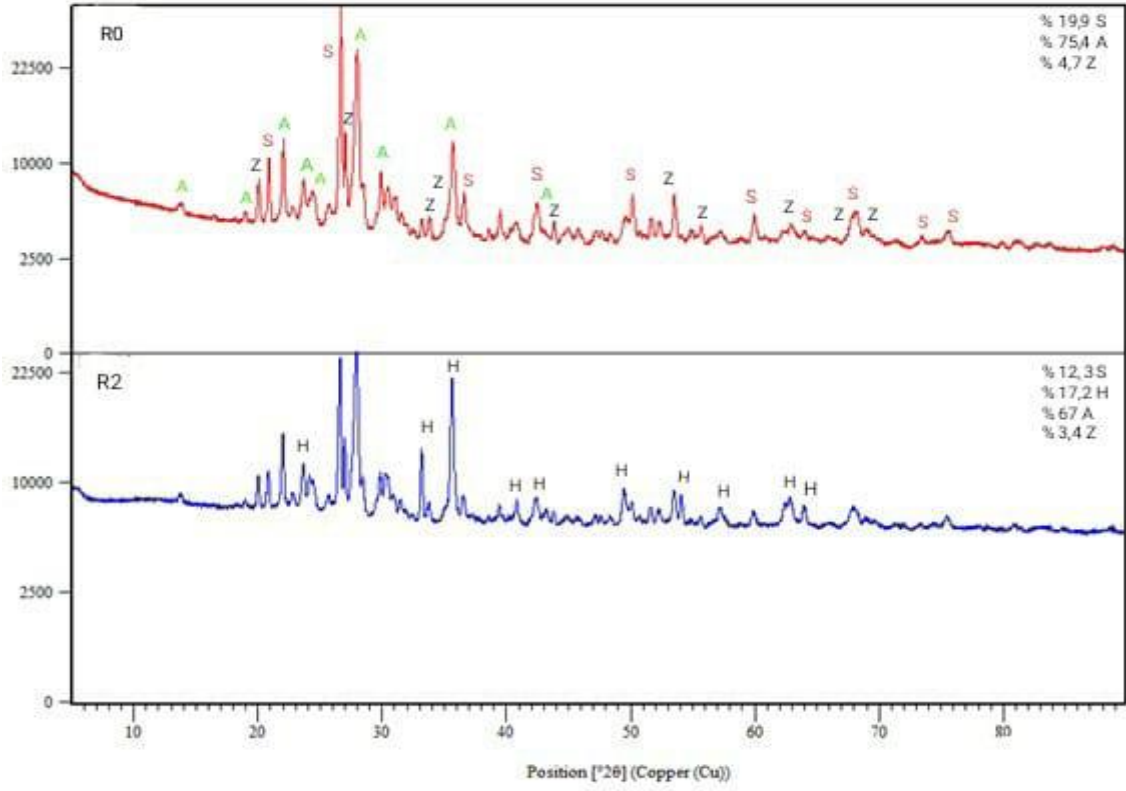
Şekil 6.34. 1050 °C’de R2 örneğinin SEM-EDX spektrumu

Şekil 6.35’de R0 ve R2 örneklerin SEM görüntüleri verilmiştir. Her iki sinterleşme sıcaklığında da R0 ve R2 de ki gözeneklerin kapanma eğilimi SEM görüntülerinde de görülmektedir.



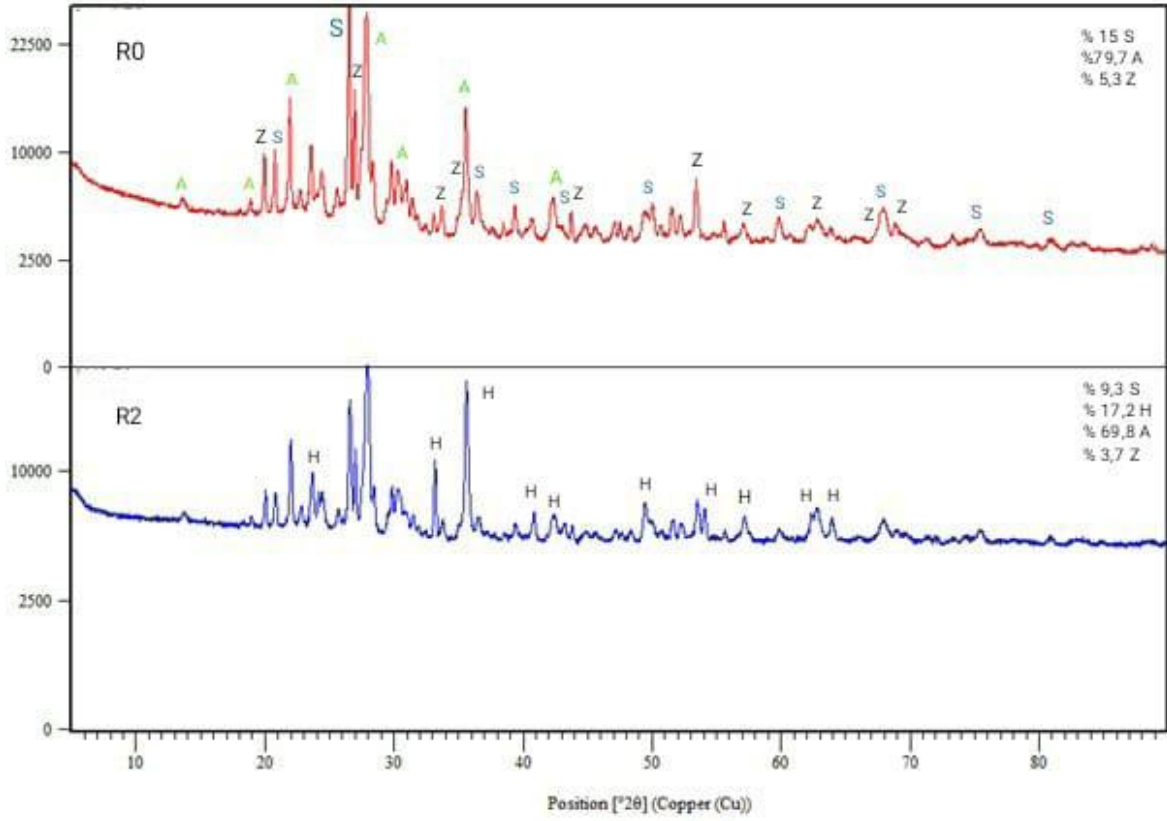
Şekil 6.35. Örneklerin (a) R0-1020 °C, (b) R2-1020 °C, (c) R0-1050 °C, (d)R2-1050 °C SEM görüntüleri

R0 ve R2 örneklerinin faz yapılarını gösteren XRD spektrumları Şekil 6.36 ve Şekil 6.37’de verilmiştir.



Şekil 6.36. R0 ve R2 örneklerinin 1020 °C deki XRD spektrumu (A: Anorthit Z: Zirkon, S: Silikon Oksit, H: Hematit)

Şekil 6.36’da R0 örneğinin % 19,9 Silikon oksit (SiO_2 , kart no:01-007-1060), %75,4 Anorthit ($\text{Al}_{1,66}\text{Ca}_{0,66}\text{Na}_{0,34}\text{O}_8\text{Si}_{2,34}$ kart no: 98-024-8972), %4,7 zirkon (ZrSiO_4 kart no: 98-009-6733). R2 örneğinde % 12,3 Silikon oksit (SiO_2 , kart no:01-007-1060), % 17,2 Hematit (Fe_2O_3 kart no: 98-002-2505), % 67 Anorthit ($\text{Al}_{1,66}\text{Ca}_{0,66}\text{Na}_{0,34}\text{O}_8\text{Si}_{2,34}$ kart no: 98-024-8972), % 3,4 zirkon (ZrSiO_4 kart no: 98-009-6733).



Şekil 6.37. R0 ve R2 örneklerinin 1050 °C deki XRD spektrumu (A: Anorthit Z: Zirkon, S: Silikon Oksit, H: Hematit)

Şekil 6.37’de R0 örneğinde % 15 Silikon oksit (SiO_2 , kart no:04-007-0522), % 79,7 Anorthit ($\text{Al}_{1,66}\text{Ca}_{0,66}\text{Na}_{0,34}\text{O}_8\text{Si}_{2,34}$ kart no: 98-024-8972), % 5,3 zirkon (ZrSiO_4 kart no: 98-009-6734). R2 örneğinde % 9,3 Silikon oksit (SiO_2 , kart no:04-007-0522), % 17,2 Hematit (Fe_2O_3 kart no: 98-002-2505), % 69,8 Anorthit ($\text{Al}_{1,66}\text{Ca}_{0,66}\text{Na}_{0,34}\text{O}_8\text{Si}_{2,34}$ kart no: 98-024-8972), % 3,7 zirkon (ZrSiO_4 kart no: 98-009-6734).

7. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu çalışmada Ni içeren atık suyun EK ile arıtımı gerçekleştirilmiştir. Özel tasarlanmış reaktör, silindirik Fe/Al katot ve 4 adet dikdörtgen kanatlı bir Fe/Al karıştırıcı görevi de gören anottan oluşmaktadır.

EK deney sonuçları Merkezi Karma Tasarım (Central Composite Design) Design Expert 11 programı ile değerlendirilerek indirgenmiş kuadratik modele göre parametrelerin birbiriyle olan ilişkileri incelenmiştir. Hem Fe hem de Al elektrot ile yapılan deneylerde 4 faktör (akım yoğunluğu, pH, başlangıç derişimi, NaCl derişimi) beş düzeyde, modelin belirlediği 30'ar adet 15 dakikalık EK deneylerinde giderim verimi çıktı olarak alınmıştır. Modelin belirlediği 30 adet deneyin enerji tüketim miktarları hesaplanmış, deney parametrelerinin enerji tüketimi üzerine etkisi yine en uygun model olarak seçilen indirgenmiş kuadratik modele göre belirlenmiştir.

Modelin belirlediği deney serisi içinde 15 dakikalık EK deneyleri sonucunda (Çizelge 6.1) Fe elektrot kullanıldığında en az % 23 en fazla % 73, Al elektrot kullanıldığında en az % 48 en fazla % 90 Ni giderim verimi elde edilmiştir. Fe elektrot kullanıldığında en az 0,75 kwh/m³ en fazla 8,6 kwh/m³, Al elektrot kullanıldığında ise en az 1,5 kwh/m³, en fazla 10,8875 kwh/m³ enerji tüketimi olmuştur.

Birim enerji tüketimi başına en yüksek giderim Fe elektrotla yapılan 4 nolu deney şartlarında (pH: 7,5, I: 1,75 mA/cm² akım yoğunluğunda, 112,5 ppm başlangıç Ni derişiminde, 0,3875 M NaCl derişiminde), Al elektrotla yapılan 24 nolu deney şartlarında (pH: 4,5, I: 1,75 mA/cm² akım yoğunluğunda, 112,5 ppm başlangıç derişiminde, 0,3875 M NaCl derişiminde) elde edilmiştir.

Modele göre Fe elektrot ile yapılan EK deney sonuçları değerlendirildiğinde;

- Akım yoğunluğu 2,6 mA/cm², pH 6,75 de olduğunda maksimum verim (% 53,4) gözlenmektedir. Akım yoğunluğu ve pH'ın ara değerlerinde yüksek verim elde edilmiştir.

- Yüksek NaCl derişiminde verimde artmaktadır. En yüksek verim % 59,8 (2,61 mA/cm² akım yoğunluğunda ve 0,3875 M NaCl derişiminde) en düşük verim % 41,2 (1,75 mA/cm² akım yoğunluğunda ve 0,1625 M NaCl derişiminde) dir.
- Tüm akım yoğunluklarında başlangıç derişimi arttıkça verim düşmüştür. En yüksek verim % 59,9 (akım yoğunluğu 2,6 mA/cm², başlangıç derişimi 112,5 ppm'de). En düşük verim % 39,1 (akım yoğunluğu 1,75 mA/cm², başlangıç derişimi 237,5 ppm'de) dir.
- Tüm akım yoğunluklarında pH'ın enerji tüketimi üzerine etkisi görülmemektedir.
- Düşük akım yoğunluklarında başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi yoktur. Yüksek akım yoğunluğunda ise başlangıç derişiminin enerji tüketimi üzerine bir miktar etkisinin olduğu görülmektedir.
- Akım yoğunluğunun enerji tüketimi üzerine etkisi düşük NaCl derişimlerinde daha fazladır. Akım yoğunluğu arttıkça NaCl derişiminin enerji tüketimi üzerine etkisi de artmaktadır.

Modele göre Al elektrot ile yapılan EK deney sonuçları değerlendirildiğinde;

- Akım yoğunluğu ile giderim verimi artmıştır. Tüm pH değerleri için aynı eğilim görülmüştür. Yüksek pH'larda verim artışı daha fazladır. En yüksek giderim % 78,03 ile pH 7,5 ve akım yoğunluğu 3,25 mA/m² dedir. En düşük giderim % 54,7 ile en düşük pH ve akım yoğunluğunda görülmektedir.
- Akım yoğunluğu 1,75 mA/m² iken düşük elektrolit derişimi daha yüksek verim sağlamıştır. Elektrolit derişiminin etkisi düşük akım yoğunluğunda daha fazladır. Akım yoğunluğu yüksek olduğunda (2,65 mA/m² ve üzeri) elektrolit derişiminin giderim verimine etkisi daha azdır. En yüksek verim (%77,95) akım yoğunluğu ve elektrolit derişimi en yüksek değerlerde elde edilmiştir. En düşük verim (%56,5), 0,3854 M NaCl derişiminde ve 1,75 mA/cm² akım yoğunluğundadır.

- Bařlangıç deriřimi ve akım yoęunluęunun her ikisinin de giderim verimine etkisi yksektir. Btn akım yoęunluklarında deriřim arttıķa verim azalmaktadır. En yksek giderim verimi % 86 (3,25 mA/cm² ve 112,5 ppm), en dřk giderim verimi % 48,3 (1,75 mA/cm² ve 237,5 ppm) dir.
- Yksek akım yoęunluęunda pH'ın ve NaCl deriřiminin enerji tketimi zerinde etkisi yksekken, dřk akım yoęunluklarında pH'ın enerji tketimi zerine fazla etkisi yoktur.
- Bařlangıç deriřiminin enerji tketimine etkisi nemsizdir.

Atık suyun EK ile arıtılmasından sonra, EK'den kaynaklanan amur, amurun olumsuz evresel etkilerini azaltmak amacıyla seramik karo retiminde kullanılmıřtır. EK sırasında oluřan amurun seramik karo retiminde Fe kaynaęı olarak kullanılmasıyla amur katma deęerli bir rne dnřtrmřtir. Bu sayede, aęır metal ieren atık suyun arıtımı yapılırken, aynı zamanda da arıtım amurunun yarattıęı evresel probleme de zm saęlanmıřtır.

1020 ve 1050 °C'de sinterlenen numunelerde EK miktarı arttıķa yoęunluk azalmakta, gzeneklilik ve emilim miktarı nce azalmakta sonra artmaktadır. EK oranı % 10'a ıktıęında sinterleme zerindeki etki de artmıř, dolayısıyla su emilimi ve gzeneklilik azalmıřtır.

Al elektrotla yapılan deneyler sonucu elde edilen Al'ce zengin EK amuru da alüminyum tabanlı seramik retiminde deęerlendirilebilir.

KAYNAKLAR DİZİNİ

- Ait-Amir, B., Pougnet, P., El Hmi, A., 2015, 6 - Meta-Model development, embedded mechatronic systems 2 analysis of failures, Modeling, Simulation and Optimization 2015, 151-179.
- Aji, B. A., Yavuz, Y., Koparal, A. Ş., 2012, Electrocoagulation of heavy metals containing Model wastewater using monopolar iron electrodes, Separation and Purification Technology 86 (2012) 248–254.
- Akbal, F. and Camcı, S., 2011, Copper, Chromium and Nickel removal from metal plating wastewater by electrocoagulation, Desalination 269 (2011) 214–222.
- Alkaya, E., Böğürücü, M., Ulutaş, F., 2014, Industrial Symbiosis in Iskenderun Bay: A journey from Pilot Applications to a National Program in Turkey.
- Al-Shannag, M., Al-Qodah, Z., Bani-Melhem, K., Qtaishat, M. R., Alkasrawi, M., 2015, Heavy metal ions removal from metal plating wastewater using electrocoagulation: Kinetic study and process performance, Chemical Engineering Journal 260 (2015) 749–756.
- Al-Qodah, Z. & Al-Shannag, M., 2017, Heavy metal ions removal from wastewater using electrocoagulation processes: A comprehensive review, Separation Science and Technology, 52:17, 2649-2676.
- Babu, D. S., Anantha Singh, T. S., Nidheesh, P. V., Suresh, K.M., 2020, Industrial wastewater treatment by electrocoagulation process, Separation Science and Technology 55:17, 3195-3227, DOI: 10.1080/01496395.2019.1671866.
- Bağcı, Y., 2019, İçme-Kullanma Sularında Elektrokoagülasyon Prosesi ile Arsenik Gideriminin Araştırılması, Yüksek Lisans Tezi. Harran Üniversitesi, Fen Bilimler Enstitüsü.
- Barakat, M.A., 2011, New trends in removing heavy metals from industrial wastewater, Arabian Journal of Chemistry (2011) 4, 361–377.
- Bashir, A., Malik, L. A., Ahad, S., Manzoor, T., Bhat, M. A., Dar, G. N., Pandith, A. H., 2019, Removal of heavy metal ions from aqueous system by ion-exchange and biosorption methods, Environmental Chemistry Letters (2019) 17:729–754. /doi.org/10.1007/s10311-018-00828-y.
- Bazrafshan, E., Mohammadi, L., Ansari-Moghaddam, A., Hossein Mahvi. A., 2015, Heavy metals removal from aqueous environments by electrocoagulation process– a systematic review, Journal of environmental health science & engineering.
- Bhagawan, D., Poodari, S., Pothuraju, T., Srinivasulu, D., Shankaraiah, G., Yamuna Rani, M., Himabindu, V., Vidyavathi, S., 2014, Effect of operational parameters on heavy metal removal by electrocoagulation, Environ Sci Pollut Res (2014) 21:14166–14173 DOI 10.1007/s11356-014-3331-8.
- Box, G. E. P., Draper, N. 1987, Empirical model-building and responsesurfaces. John Wiley & Sons, New York, 669 p.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devamı)

- Burakov, A. E., Galunin, E. V., Burakova, I. V., Kucherova, A. E., Agarwal, S., Tkachev, A. G., Gupta, V.K., 2018, Adsorption of heavy metals on conventional and nanostructured materials for wastewater treatment purposes: A review, *Ecotoxicology and Environmental Safety* 148 (2018) 702–712.
- Chertow Marian, R., 2000, Industrial symbiosis: Literature and Taxonomy, *Energy Environ.* 2000. 25:313–37.
- Chen, G., 2003, Electrochemical technologies in Wastewater Treatment, Separation and Purification Technology 38 (2004) 11–41.
- Chouhan, A., Thakur, L. S., Patidar, K., Varma, A. K., 2018, A Review on Removal of Heavy Metals from Water/Wastewater by Electrocoagulation Process, *International Research Journal of Engineering and Technology (IRJET)* Volume: 05 Issue: 12 e-ISSN: 2395-0056 p-ISSN: 2395-0072.
- Cora- Hernandez, M. G.R., 1992, Electrocoagulation/Flotation (EFC) Tecnology Used İn The Treatment Of Wastewater Containing Variable Concentrations Of Heavy Metals And Organic Pollutants, Master of Science in Engineering. The University of Akron.
- Crittenden, JC., Trussell, RR., Hand, DW., Howe, KJ., 2012, Tchobanoglous G: MWH's water treatment: principles and design. 3rd ed. John Wiley & Sons.
- Danış, Ü., 1996, Çapraz akış ultrafiltrasyon tekniği ile endüstriyel atıksulardan ağır metal giderimi, Doktora Tezi. Atatürk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Değirmencioğlu, A., ve Yazgı, A., 2006, Tepki Yüzeyleri Meteorolojisi Optimizasyon Esaslı Çalışmalara İlişkin Teorik Esaslar ve Tarımsal Mekanizasyon Uygulamaları, *Tarım Makinaları Bilim Dergisi* 2006,2 (2), 111-115.
- Domenech, T., Davies, M., 2011, Structure and morphology of industrial symbiosis networks: The case of Kalundborg, *Procedia Social and Behavioral Sciences* 10 (2011) 79–89
- El-Ashtoukhy, E-S.Z., Amin, N.K., Fouad, Y.O., Hamad, H.A., 2020, Intensification of a new electrocoagulation system characterized by minimum energy consumption and maximum removal efficiency of heavy metals from simulated wastewater, *Chemical Engineering & Processing: Process Intensification* 154 - 108026.
- Eroğlu, Önpeker S., 2017, Ağır metal içeren elektrokoagülasyon atığının değerlendirilmesi için bir endüstriyel simbiyoz uygulamasının geliştirilmesi, Yüksek Lisans tezi. Anadolu Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Fayad, N., 2017, The application of electrocoagulation process for wastewater treatment and for the separation and purification of biological media, *Chemical and Process Engineering*. Université Clermont Auvergne.
- Ferreira, A. de M., Marchesiello, M., Thivel, P.-X., 2013, Removal of copper, zinc and nickel present in natural water containing Ca^{2+} and HCO_3^- ions by electrocoagulation, *Separation and Purification Technology* 107 (2013) 109–117.
- Fu, F., and Wang, Q., 2010, Removal of heavy metal ions from wastewaters: A review, *Journal of Environmental Management* 92 (2011) 407-418.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devamı)

- Güney, S. 2013, Elektrokoagülasyon prosesinin çevre mühendisliğindeki uygulamaların araştırılması, Yüksek Lisans tezi. Uludağ Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü,
- Heeres, R.R., Vermeulen, W.J.V., Walle, F.B. de, 2004, Eco-industrial park initiatives in the USA and the Netherlands: first lessons, *Journal of Cleaner Production* 12 (2004) 985–995.
- Hegazi, H. A. 2013. Removal of heavy metals from wastewater using agricultural and industrial wastes as adsorbents. *HBRC Journal*, 9, 276-283.
- Heidmann, I., and Calmano, W., 2008, Removal of Zn(II), Cu(II), Ni(II), Ag(I) and Cr(VI) present in aqueous solutions by aluminium electrocoagulation, *Journal of Hazardous Materials* 152 (2008) 934–941.
- Heidmann, I., and Calmano, W., 2010, Removal of Ni, Cu and Cr from a galvanic wastewater in an electrocoagulation system with Fe- and Al-electrodes, *Separation and Purification Technology* 71 (2010) 308–314.
- Holt, P.K, Barton, G.W., Wark, M., Mitchell, C.A., 2002, A quantitative comparison between chemical dosing and electrocoagulation, *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, vol.211, pp.233-248.
- International Synergies Limited, 2019, A Roadmap for a National Industrial Symbiosis Programme for Turkey.
- Kabdaşlı, I., Arslan, T., Ölmez-Hancı, T., Arslan-Alaton, I., Tünay, O., 2009, Complexing agent and heavy metal removals from metal plating effluent by electrocoagulation with stainless steel electrodes, *Journal of Hazardous Materials* 165 (2009) 838–845.
- Kabdaşlı, I., Arslan-Alaton, I., Ölmez-Hancı, T., Tünay, O., 2012, Electrocoagulation applications for industrial wastewaters: a critical review, *Environmental Technology Reviews*, ISSN: 2162-2515 (Print) 2162-2523 (Online) Journal homepage:<https://www.tandfonline.com/loi/tetr20>.<https://doi.org/10.1080/21622515.2012.715390>
- Kallas, P., Montedo, R.K. and Innocentini, M.D.M., 2018, Use of Nickel Slag as Raw Material for Roof Tiles Production, *Materials Science Forum* ISSN: 1662-9752, Vol. 912, pp 212-217. doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.912.212, 912, 212-217
- Krstic, I., Zec, S., Lazarevic, V., Stanisavljevic, M., Golubovic, T., 2018, Use of Sintering to Immobilize Toxic Metals Present in Galvanic Sludge into a Stable Glass-Ceramic Structure, *Science of Sintering*, 50 (2018) 139-147 doi:<https://doi.org/10.2298/SOS1802139K>.
- Lu, J., Li, Y., Yin, M., Ma, X., Lin, S., 2015, Removing heavy metal ions with continuous aluminum electrocoagulation: A study on back mixing and utilization rate of electro-generated Al ions, *Chemical Engineering Journal* 267 (2015) 86–92.
- Moussa, D. T., El-Naas, M. H., Nasser, M., Al-Marri, M. J., 2016, A comprehensive review of electrocoagulation for water treatment: Potentials and challenges, *Journal of Environmental Management* 186 (2017) 24-41.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devamı)

- Nwabanne, J.T., Igwegbe, C.A., Okpo, S.O., 2018, Removal of Copper, Nickel, and chromium from simulated wastewater using electrocoagulation technique, 2018 international conference proceedings: faculty of engineering, unizik, Page 448 of 1135.
- Omolaoye, J.A., Uzairu, A., Gimba, C.E., 2010, Heavy metal assessment of some ceramic products imported into Nigeria from China, Scholars Research Library Archives of Applied Science Research, 2010, 2 (5):120-125.
- Öncel, M.S., Muhcu, A., Kobya, M., 2013, A comparative study of chemical precipitation and electrocoagulation for treatment of coal acid drainage wastewater, Journal of Environmental Chemical Engineering 1 (2013) 989–995.
- Özlü, E., 2016, Metal kaplama endüstrisi atıksularının ileri arıtım yöntemleriyle ritilmesinin İncelenmesi, Yüksek Lisans tezi. Yıldız Teknik Üniversitesi FİEn Bilimleri nstitüsü.
- Özyonar F., 2020, Su ve atıksu arıtımında elektroflotasyon prosesi, NÖHÜ Müh. Bilim. Derg. / NOHU J. Eng. Sci., 2020; 9(2): 730 – 745. ISSN: 2564-6605.
- Parmar, M. and Thakur, L. S., 2013, Heavy metal Cu, Ni and Zn: toxicity, health hazards and their removal techniques by low cost adsorbents: a short overview, International Journal of Plant, Animal and Environmental Sciences.
- Patrikar, A., Nigam, R., Malviya, P., 2020, Wastewater treatment by electrocoagulation process: A Review, International Journal for Research in Applied Science & Engineering Technology (IJRASET) ISSN: 2321-9653; IC Value: 45.98; SJ Impact Factor: 7.429 Volume 8 Issue IX.
- Pohl, A., 2020, Removal of heavy metal ions from water and wastewaters by sulfur-containing precipitation agents, Water Air Soil Pollut (2020) 231: 503. /doi.org/10.1007/s11270-020-04863-w.
- Rehman, A., Kim M., Reverberic A., Fabianoa B., 2015, Operational parameter influence on Heavy metal removal from metal plating wastewater by electrocoagulation process, Chemical engineering transactions vol. 43.
- Ribeiro, T. S., Grossi, C. D., Merma, A. G., Santos, B. F., Torem, M. L., 2019, Removal of boron from mining wastewaters by electrocoagulation method: Modelling experimental data using artificial neural networks, Minerals Engineering 131 (2019) 8–13.
- Sahu, O., Mazumdar, B., Chaudhari, P. K., 2013, Treatment of wastewater by electrocoagulation: a review, Environ Sci Pollut Res (2014) 21:2397–2413 DOI 10.1007/s11356-013-2208-6.
- Shahedi, A., Darban, A. K., Taghipour, F. Jamshidi-Zanjani, A., 2020, A review on industrial wastewater treatment via electrocoagulation processes, Current Opinion in Electrochemistry, 22:154–169.
- Sharma, S. K., 2015, Heavy metals in water Presence, Removal and Safety, Department of Chemistry, JECRC University, Jaipur, India. The Royal Society of Chemistry 2015.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devamı)

- Sillanpaa, M. ve Vepsalainen, M., (editör), Electrocoagulation in the treatment of industrial waters and wastewaters, Advanced Water Treatment Electrochemical Method, Department of Civil and Environmental Engineering, Florida International University, Miami, FL, United States. 23 page.
- Tezcan Ün, Ü. and Özel, E., 2013, Electrocoagulation of yogurt industry wastewater and the production of ceramic pigments from the sludge, Separation and Purification Technology, vol. 120, pp. 386-391.
- Tezcan Ün, Ü. and Ocal, S. E., 2015, Removal of heavy metals (Cd, Cu, Ni) by electrocoagulation, International Journal of Environmental Science and Development, Vol. 6, No. 6.
- Tezcan Ün, Ü., Topal, S., Ates, F., 2016, Electrocoagulation of tissue paperwastewater and an evaluation of sludge for pyrolysis, Desalination and Water Treatment, vol. 57, pp. 28724-28733.
- Wang, C.-T., Chou, W.-L., Kuo, Y.-M., 2009, Removal of COD from laundry wastewater by electrocoagulation/electroflotation, Journal of Hazardous Materials, vol.164, pp. 81–86.
- Wang, Z., Ni, W., Jia ,Y., Zhu, L., Huang, X., 2010, Crystallization behavior of glass ceramics prepared from the mixture of nickel slag, blast furnace slag and quartz sand, Journal of Non-Crystalline Solids 356 (2010) 1554–1558.
- Wulan, D. R., Cahyaningsih, S., Djaenudin, 2017, Influence of voltage input to heavy metal removal from electroplating wastewater using electrocoagulation process, 1st International Symposium on Green Technology for Value Chains 2016 IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science 60 (2017) 012026 doi:10.1088/1755-1315/60/1/012026.
- Yavuz, Y., Ögütveren, Ü.B., 2017, Treatment of industrial estate wastewater by the application of electrocoagulation process using iron electrodes, Journal of Environmental Management 207 (2018) 151e158.
- Yılmaz, E. A., Boncukcuoğlu, R., Kocakerim M., and Karakas İ.H., 2011, Waste utilization: The removal of textile dye (Bomplex Red CR-L) from aqueous solution on sludge waste from electrocoagulation as adsorbent, Desalination, vol. 277, pp. 156-163.
- Zhu, R., Ma, G., Cai, Y., Chen, Y., Yang, T., Duan, B., Xue, Z., 2016, Ceramic tiles with black pigment made from stainless steel plant dust: Physical properties and long-term leaching behavior of heavy metals, Journal of the Air & Waste Management Association, 66:4, 402-411, DOI: 10.1080/10962247.2016.1140096.
- Zhu, Q., Lowe, E. A., Wei, Y., , Barnes, D., 2007, Industrial Symbiosis in China A Case Study of the Guitang Group, Special Feature on Industrial Symbiosis.

EK AÇIKLAMALAR

Ek Açıklamalar-A: Demir Elektrot İçin Model Tarafından Bulunan Çözümler

No	pH	I	Elektrolit Derişimi M	Başlangıç Derişimi ppm	% Giderim	Arzu edilirlik (Desirabilit y)	
1	6,131	2,576	0,053	60,018	74,732	1,000	Seçilen
2	5,874	2,829	0,056	67,562	73,979	1,000	
3	6,147	2,164	0,382	62,375	75,932	1,000	
4	7,634	2,935	0,365	75,189	74,156	1,000	
5	6,527	2,550	0,384	82,012	76,100	1,000	
6	6,506	2,858	0,309	56,473	73,539	1,000	
7	6,966	3,010	0,376	86,475	73,514	1,000	
8	5,664	2,589	0,078	53,577	74,429	1,000	
9	6,752	2,597	0,074	50,026	73,022	1,000	
10	7,524	3,100	0,371	68,248	74,982	1,000	
11	8,113	2,337	0,387	88,441	74,071	1,000	
12	5,293	2,891	0,052	67,579	73,886	1,000	
13	6,545	2,380	0,314	50,092	75,273	1,000	
14	5,695	2,993	0,375	55,119	73,758	1,000	
15	7,324	2,111	0,370	73,462	75,161	1,000	
16	5,646	2,510	0,098	50,252	73,156	1,000	
17	6,650	2,543	0,386	75,667	77,960	1,000	
18	5,605	2,625	0,387	57,242	75,117	1,000	
19	6,281	3,009	0,086	50,945	73,808	1,000	
20	6,280	3,246	0,385	54,957	75,952	1,000	
21	6,491	2,670	0,084	50,641	73,786	1,000	
22	6,144	2,677	0,114	50,290	73,065	1,000	
23	6,110	2,389	0,063	50,852	74,720	1,000	
24	5,930	2,586	0,062	63,046	73,799	1,000	

25	6,238	2,247	0,052	53,726	73,208	1,000	
26	4,575	2,969	0,051	54,807	73,456	1,000	
27	5,983	2,463	0,059	62,334	73,379	1,000	
28	6,372	2,736	0,055	61,891	73,946	1,000	
29	6,162	3,113	0,050	61,737	74,134	1,000	
30	5,794	2,690	0,087	57,130	73,411	1,000	
31	6,498	2,452	0,386	59,127	80,638	1,000	
32	6,195	2,592	0,057	63,053	73,739	1,000	
33	6,910	1,807	0,382	54,103	76,495	1,000	
34	7,358	2,896	0,381	86,315	75,056	1,000	
35	7,289	2,370	0,387	57,152	82,488	1,000	
36	5,751	2,879	0,068	62,149	73,963	1,000	
37	7,114	2,937	0,385	60,789	80,370	1,000	
38	5,815	2,522	0,091	52,252	73,533	1,000	
39	5,687	2,946	0,071	55,485	74,966	1,000	
40	6,381	2,683	0,072	56,610	73,639	1,000	
41	7,383	2,733	0,340	58,146	76,408	1,000	
42	5,308	2,826	0,073	57,390	73,896	1,000	
43	5,589	2,830	0,067	61,311	74,169	1,000	
44	6,114	2,879	0,373	59,771	76,459	1,000	
45	5,736	2,485	0,053	59,344	74,815	1,000	
46	6,385	2,251	0,368	69,634	74,931	1,000	
47	5,682	2,589	0,376	54,284	75,440	1,000	
48	6,651	2,918	0,358	57,141	77,523	1,000	
49	6,222	3,072	0,387	69,607	74,924	1,000	
50	6,150	2,685	0,348	69,764	73,061	1,000	
51	7,174	1,945	0,382	51,602	79,479	1,000	
52	7,447	3,049	0,338	52,815	75,037	1,000	
53	5,705	3,035	0,071	51,401	75,528	1,000	
54	7,166	2,235	0,376	59,630	79,821	1,000	
55	7,446	2,124	0,373	61,503	77,889	1,000	
56	6,632	3,174	0,350	55,967	74,566	1,000	

57	5,677	2,483	0,383	54,973	75,668	1,000	
58	5,147	3,118	0,067	54,033	73,880	1,000	
59	5,617	2,941	0,074	60,601	73,568	1,000	
60	7,098	1,711	0,381	52,261	75,536	1,000	
61	6,605	2,774	0,288	53,369	73,315	1,000	
62	6,914	2,489	0,361	67,671	77,233	1,000	
63	7,193	2,584	0,377	78,277	77,309	1,000	
64	6,828	2,482	0,372	82,248	75,437	1,000	
65	6,036	2,211	0,052	53,385	73,271	1,000	
66	6,513	2,616	0,077	53,181	73,398	1,000	
67	6,260	3,157	0,059	57,549	73,586	1,000	
68	5,199	3,206	0,066	53,027	73,736	1,000	
69	7,143	2,556	0,330	63,472	74,737	1,000	
70	6,501	2,713	0,340	54,673	76,857	1,000	
71	6,709	2,607	0,298	58,948	73,030	1,000	
72	5,702	2,935	0,358	50,183	73,994	1,000	
73	6,977	2,635	0,379	102,131	73,084	1,000	
74	6,633	2,418	0,054	53,528	73,133	1,000	
75	4,969	2,794	0,055	63,407	73,352	1,000	
76	5,781	2,291	0,051	50,889	75,120	1,000	
77	7,833	2,931	0,373	81,844	73,303	1,000	
78	6,261	2,625	0,308	51,225	74,456	1,000	
79	6,307	2,553	0,353	69,934	74,260	1,000	
80	5,993	3,109	0,090	50,596	73,540	1,000	
81	6,132	3,110	0,069	59,469	73,041	1,000	
82	7,677	2,284	0,322	50,750	74,263	1,000	
83	5,028	2,999	0,060	60,947	73,223	1,000	
84	5,906	2,841	0,062	56,971	75,531	1,000	
85	6,846	2,631	0,316	53,027	75,802	1,000	
86	6,231	2,588	0,380	66,762	77,208	1,000	
87	6,193	2,793	0,385	78,809	74,690	1,000	
88	7,618	2,327	0,377	85,708	74,799	1,000	

89	6,700	2,390	0,367	89,467	73,015	1,000	
90	6,664	3,024	0,386	55,701	80,109	1,000	
91	5,891	2,931	0,098	50,714	73,882	1,000	
92	5,065	2,540	0,056	54,573	74,605	1,000	
93	8,074	2,163	0,383	61,024	77,907	1,000	
94	7,203	1,881	0,386	66,808	75,909	1,000	
95	7,323	2,280	0,373	90,627	73,580	1,000	
96	6,237	2,061	0,387	74,164	73,617	1,000	
97	6,999	2,255	0,362	71,946	75,532	1,000	
98	5,803	3,078	0,359	52,255	73,213	1,000	
99	6,445	2,769	0,374	62,502	78,192	1,000	
100	7,155	1,804	0,348	50,231	73,124	1,000	

Ek Açıklamalar-B: Alüminyum Elektrot İçin Model Tarafından Bulunan Çözümler

No	pH	I	Elektrolit Derişimi M	Başlangıç Derişimi ppm	% Giderim	Arzu edilirlilik (Desirability)	
1	6,575	1,925	0,067	56,350	100,896	1,000	Seçilen
2	7,168	3,876	0,445	135,011	104,378	1,000	
3	7,184	3,250	0,273	61,537	106,105	1,000	
4	6,000	2,500	0,275	50,000	99,513	1,000	
5	7,154	2,332	0,165	57,031	101,357	1,000	
6	6,140	2,569	0,064	51,378	99,334	1,000	
7	3,576	3,815	0,449	156,165	99,476	1,000	
8	6,923	3,334	0,358	70,313	108,834	1,000	
9	4,209	2,810	0,446	63,893	108,141	1,000	
10	3,036	3,773	0,423	77,885	114,842	1,000	
11	7,222	2,955	0,499	97,053	111,147	1,000	
12	5,386	3,222	0,355	56,250	106,968	1,000	
13	5,846	3,498	0,211	54,157	99,952	1,000	
14	5,386	2,341	0,383	56,250	100,650	1,000	
15	3,784	3,984	0,500	215,581	99,695	1,000	
16	7,110	3,228	0,219	50,098	106,755	1,000	
17	4,015	3,913	0,254	53,259	101,588	1,000	
18	7,271	3,916	0,343	77,004	111,749	1,000	
19	7,174	3,985	0,185	66,735	103,350	1,000	
20	7,474	3,990	0,191	76,758	102,633	1,000	
21	7,046	2,193	0,377	70,313	100,422	1,000	
22	3,062	3,995	0,086	297,827	99,199	1,000	
23	6,986	1,409	0,068	70,822	99,809	1,000	
24	7,350	2,564	0,062	76,893	101,072	1,000	
25	5,152	2,992	0,340	54,017	103,447	1,000	
26	3,391	3,236	0,483	60,830	121,268	1,000	
27	3,851	3,959	0,053	299,082	99,163	1,000	
28	4,653	2,770	0,488	65,531	113,216	1,000	
29	4,378	2,562	0,490	89,977	100,443	1,000	
30	6,702	2,120	0,322	52,373	102,038	1,000	
31	3,082	3,914	0,266	56,516	102,011	1,000	
32	6,240	2,932	0,054	51,828	100,052	1,000	
33	4,833	3,818	0,468	148,423	101,108	1,000	
34	5,169	2,477	0,388	53,094	103,151	1,000	
35	4,740	3,694	0,294	69,654	99,879	1,000	
36	5,662	2,503	0,420	52,017	108,770	1,000	
37	4,712	3,963	0,432	134,615	102,053	1,000	
38	4,769	3,911	0,488	143,592	106,654	1,000	
39	4,120	2,989	0,388	57,735	105,267	1,000	

40	7,493	3,991	0,461	152,863	103,839	1,000	
41	5,617	3,451	0,363	54,617	111,250	1,000	
42	4,603	2,477	0,478	57,388	110,739	1,000	
43	3,508	3,941	0,055	297,362	99,508	1,000	
44	5,428	3,220	0,275	50,750	101,764	1,000	
45	7,414	2,291	0,392	73,573	103,140	1,000	
46	7,487	3,978	0,393	112,235	107,436	1,000	
47	5,234	2,493	0,457	69,709	104,400	1,000	
48	3,031	3,897	0,496	212,598	101,186	1,000	
49	4,838	3,696	0,494	127,567	107,854	1,000	
50	6,376	2,614	0,298	52,929	102,266	1,000	
51	5,125	3,891	0,435	130,864	101,952	1,000	
52	6,560	2,734	0,246	52,418	101,647	1,000	
53	7,074	3,029	0,490	125,585	99,862	1,000	
54	7,442	3,391	0,432	72,897	118,901	1,000	
55	3,722	2,627	0,416	51,051	106,332	1,000	
56	7,355	3,985	0,140	80,716	99,637	1,000	
57	7,162	1,832	0,479	74,984	103,180	1,000	
58	7,143	2,869	0,074	63,501	102,232	1,000	
59	6,337	3,835	0,165	50,186	102,299	1,000	
60	4,469	3,641	0,287	55,508	102,317	1,000	
61	4,076	3,806	0,250	58,837	99,076	1,000	
62	5,887	3,150	0,467	112,874	100,458	1,000	
63	5,530	1,574	0,485	50,104	104,708	1,000	
64	5,358	3,878	0,493	166,426	100,841	1,000	
65	5,905	1,807	0,052	50,055	99,138	1,000	
66	7,498	3,949	0,062	78,921	100,960	1,000	
67	6,812	2,070	0,437	60,610	106,849	1,000	
68	3,039	3,962	0,496	198,086	104,337	1,000	
69	3,056	3,543	0,481	133,472	105,237	1,000	
70	6,251	1,153	0,073	53,303	99,126	1,000	
71	5,129	3,087	0,385	51,933	109,770	1,000	
72	5,238	2,577	0,343	51,078	101,055	1,000	
73	6,576	3,683	0,231	59,441	103,507	1,000	
74	6,161	2,649	0,407	70,025	103,577	1,000	
75	3,348	3,995	0,065	294,485	99,128	1,000	
76	5,833	3,818	0,330	74,302	105,364	1,000	
77	6,134	3,729	0,489	150,612	101,524	1,000	
78	6,314	3,228	0,234	60,955	99,659	1,000	
79	5,991	3,292	0,264	58,921	100,925	1,000	
80	4,697	2,909	0,339	53,027	101,732	1,000	
81	7,053	3,050	0,263	52,073	106,997	1,000	
82	4,605	1,869	0,496	52,811	106,201	1,000	
83	5,070	1,668	0,464	55,513	99,616	1,000	
84	5,272	3,156	0,398	82,132	101,682	1,000	

85	7,036	1,700	0,061	72,416	100,261	1,000	
86	3,931	3,584	0,278	51,132	101,708	1,000	
87	3,691	3,466	0,461	132,882	99,440	1,000	
88	4,867	2,534	0,450	61,183	106,758	1,000	
89	3,095	3,820	0,410	93,226	109,375	1,000	
90	5,457	3,923	0,500	124,300	113,388	1,000	
91	6,057	2,836	0,053	51,538	99,112	1,000	
92	3,923	2,981	0,493	70,993	114,782	1,000	
93	6,120	3,982	0,489	178,363	99,301	1,000	
94	3,020	3,992	0,301	90,375	99,063	1,000	
95	5,923	2,949	0,424	53,193	114,820	1,000	
96	3,016	3,989	0,496	242,536	101,059	1,000	
97	6,869	3,791	0,440	129,619	103,324	1,000	
98	7,313	3,947	0,076	56,497	104,481	1,000	
99	3,153	3,976	0,052	296,906	101,492	1,000	
100	7,333	3,689	0,282	61,409	110,125	1,000	