T.C.
HARRAN ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

DOKTORA TEZİ

YARI KURAK - KURAK BİR BÖLGENİN YERALTI SUYUNDAN ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMİ İLE FLORÜR, NİTRAT VE ARSENİK GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI

Benan YAZICI KARABULUT

ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

ŞANLIURFA
2022

İÇİNDEKİLER

Sayfa No

ÖZET…….. i
ABSTRACT..... ii
TEŞEKKÜR..... iii
ŞEKİLLER DİZİNİ.....iv
ÇİZELGELER DİZİNİ viii
SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ ix
1. GİRİŞ….....1
1.1. Florür… 2
1.2. Nitrat….....4
1.3. Arsenik 6
1.4. Elektrokoagülasyon 8
1.4.1. Elektrokoagülasyon ile florür giderim mekanizması.....12
1.4.2. Elektrokoagülasyon ile nitrat giderim mekanizması.....13
1.4.3. Elektrokoagülasyon ile arsenik giderim mekanizması 15
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR 18
2.1. Florür Giderimi ile İlgili Önceki Çalışmalar 18
2.2. Nitrat Giderimi ile İlgili Önceki Çalışmalar 23
2.3. Arsenik Giderimi ile İlgili Önceki Çalışmalar.....27
3. MATERYAL ve YÖNTEM 32
3.1. Materyal.....32
3.1.1. Florür içeren sentetik ve gerçek yeraltı suyu çalışmaları.....32
3.1.1.1. Sentetik su çalışmaları..... 32
3.1.1.2. Gerçek yeraltı suyu çalışmaları 32
3.1.2. Nitrat içeren sentetik ve gerçek yeraltı suyu çalışmaları 34
3.1.2.1. Sentetik su çalışmaları..... 34
3.1.2.2. Gerçek yeraltı suyu çalışmaları 34
3.1.3. Arsenik içeren sentetik ve gerçek yeraltı suyu çalışmaları 36
3.1.3.1. Sentetik su çalışmaları..... 36
3.1.3.2. Gerçek yeraltı suyu çalışmaları 36
3.2. Yöntem 37
3.2.1. Elektrokoagülasyon prosesi için hesaplamalar ve kullanılan eşitlikler.....37
3.2.2. Deneysel süreç.....38
3.2.3. Kullanılan cihazlar ve analitik yöntemler.....40
3.2.4. Yapılan analizler.....41
3.2.5. Çalışma koşulları 41
3.2.5.1. pH değişiminin etkisi 42
3.2.5.2. Elektrot materyalinin etkisi 42
3.2.5.3. Elektrotlar arası mesafenin etkisi 43
3.2.5.4. İletkenlik değişiminin etkisi 44
3.2.5.5. Kirletici konsantrasyonunun etkisi..... 45
3.2.5.6. Akım değişiminin etkisi 45
3.2.5.7. Voltaj değişiminin etkisi 46
3.2.5.8. Akım yoğunluğunun etkisi 46
3.2.5.9. Enerji tüketimi..... 47
3.2.6. Gerçek yeraltı suyu örnekleme prosedürü 47
3.2.7. Yeraltı suyunun hidrokimyasal sınıflandırması.....48
4. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA.....49
4.1. Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Sulardan Florür Gideriminde Optimum Şartların Araştırılması……. 49
4.1.1. pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 49
4.1.2. Elektrot materyalinin giderim verimi üzerindeki etkisi 51
4.1.3. Elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi 52

4.1.4. İletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 54
4.1.5. Kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi 56
4.1.6. Akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 58
4.1.7. Voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 60
4.1.8. Akım yoğunluğu giderim verimi üzerindeki etkisi 62
4.1.9. Gerçek su numunesi ile giderim çalışması 64
4.1.9.1. Sarım-Karataş Bölgesi jeoloji ve hidrojeolojisi 64
4.1.9.3. Elektrokoagülasyon ile giderim çalışmaları 66
4.1.10. Enerji tüketimi 67
4.2. Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Sulardan Nitrat Gideriminde Optimum Şartların Araştırılması…….. 68
4.2.1. pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 68
4.2.2. Elektrot materyalinin giderim verimi üzerindeki etkisi 70
4.2.3. Elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi 71
4.2.4. İletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 73
4.2.5. Kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi 75
4.2.6. Akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 77
4.2.7. Voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 78
4.2.8. Akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi 80
4.2.9. Gerçek su numunesi ile giderim çalışması 82
4.2.9.1. Harran Ovası jeoloji ve hidrojeolojisi 82
4.2.9.2. Elektrokoagülasyon ile giderim çalışması 85
4.2.10. Enerji tüketimi 86
4.3. Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Sulardan Arsenik Gideriminde Optimum Şartların Araştırılması 87
4.3.1. pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 87
4.3.2. Elektrot materyalinin giderim verimi üzerindeki etkisi 89
4.3.3. Elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi 90
4.3.4. İletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 92
4.3.5. Kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi 94
4.3.6. Akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 96
4.3.7. Voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi 98
4.3.8. Akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi 100
4.3.9. Gerçek su numunesi ile giderim çalışması 102
4.3.9.1. Karaali Jeotermal Sahası jeoloji ve hidrojeolojisi 102
4.3.9.2. Elektrokoagülasyon ile giderim çalışması 105
4.3.10. Enerji tüketimi 106
5. SONUÇLAR ve ÖNERİLER 107
5.1. Sonuçlar 107
5.2. Öneriler 110
KAYNAKLAR 112
ÖZGEÇMİŞ 124
EKLER…… 131
EK 1 Alüminyum (Al) Elektrota Ait İçerik Analizi 131
EK 2 Demir (Fe) Elektrota Ait İçerik Analizi 133
EK 3 Laboratuvar Çalışmalarında Kullanılan Materyaller 135
EK 4 Laboratuvar Çalışmalarına Ait Resimler 136
EK 5 Arazi Çalışmalarına Ait Resimler 138

ÖZET

Doktora Tezi

YARI KURAK - KURAK BİR BÖLGENİN YERALTI SUYUNDAN ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMİ İLE FLORÜR, NİTRAT VE ARSENİK GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI

Benan YAZICI KARABULUT

Harran Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı

I. Danışman: Prof. Dr. Ayşe Dilek ATASOY
II. Danışman: Prof. Dr. Orhan Taner CAN
Yıl: 2022, Sayfa: 141

Yeraltı sularında florür (F^-), nitrat (NO_3^-) ve arsenik (As) varlığı canlılar için ciddi sağlık sorunlarına sebep olmaktadır. Şanlıurfa ilinin batısında yer alan Sarım ve Karataş köylerinde tek içme suyu kaynağı olan yeraltı sularında yüksek konsantrasyonlarda florür tespit edilmiştir. Benzer şekilde Şanlıurfa ilinin güneydoğu kesiminde ve Harran Ovası'nın yakın çevresinde yoğun tarımsal uygulamalarda kimyasal gübrelerin aşırı kullanımı sonucu nitrat kirliliği gündeme gelmiştir. Bilinçsiz sulama teknikleri topraklarda nitrat yıkanmasına ve yeraltı suyuna nitrat karışmasına neden olmuştur. Şanlıurfa'nın Karaali jeotermal sahasındaki sularda yapılan ağır metal analizlerinde ise kabul edilebilir limit değerlerinin üzerinde arsenik tespit edilmiş ve bu alandaki sıcak suyun kesinlikle içilmemesi gerektiği bildirilmiştir. Bu kirleticilerin giderimi için, iyon değiştirme, ters osmoz, adsorpsiyon ve elektrokimyasal prosesler başta olmak üzere farklı yöntemler geliştirilmiştir. Elektrokoagülasyon (EK) prosesi kirletilmiş suların arıtılmasında başarıyla kullanılan elektrokimyasal bir yöntemdir. Bu bağlamda, mevcut tez çalışması ile alüminyum (Al) ve demir (Fe) elektrot destekli EK prosesi kullanılarak sentetik ve gerçek yeraltı sularından florür, nitrat ve arsenik giderimini incelemek amaçlanmıştır. pH değişimi, farklı elektrot materyali, elektrotlar arası mesafe, iletkenlik değişimi, kirletici konsantrasyonu, akım değişimi, voltaj değişimi ve akım yoğunluğunun F^-, NO_3^- ve As giderim yüzdesi üzerindeki etkileri incelenmiştir. Bunların yanı sıra her bir kirletici için enerji tüketim miktarları ve işletim maliyetleri hesaplanmıştır. Sentetik sudan F^- gideriminde her iki elektrot türü (Al ve Fe) için optimum deneysel koşullar başlangıç konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç pH'ı: 7,5, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2, çalışma süresi: 240 dakika, elektrotlar arası mesafe: 10 mm olarak belirlenmiş ve giderim verimleri sırasıyla %99,1 ve %41,7 olmuştur. Sentetik sudan NO_3^- gideriminde her iki elektrot türü (Al ve Fe) için optimum deneysel koşullar başlangıç konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç pH'ı: 6, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2, çalışma süresi: 240 dakika, elektrotlar arası mesafe: 10 mm olarak belirlenmiş ve giderim verimleri sırasıyla %88,2 ve %70,8 olmuştur. Sentetik sudan As gideriminde her iki elektrot türü (Al ve Fe) için optimum deneysel koşullar ise başlangıç konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç pH'ı: 4,5, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2, çalışma süresi: 240 dakika, elektrotlar arası mesafe: 10 mm'dir. Al ve Fe elektrotlar için giderim verimleri sırasıyla %99,8 ve %99,5 olarak elde edilmiştir. Çalışmalar sonucunda gerçek yeraltı suyu ve sentetik suda F^-, NO_3^- ve As konsantrasyonları, sırasıyla 1,5 mg/L, 50 mg/L ve 10 µg/L (DSÖ limit değerleri)'nin altına başarıyla düşürülmüştür.

ANAHTAR KELİMELER: Elektrokoagülasyon, florür, arsenik, nitrat, yeraltı suyu

ABSTRACT

PhD Thesis

INVESTIGATION OF THE REMOVAL OF FLUORIDE, NITRATE AND ARSENIC FROM GROUNDWATER IN A SEMI ARID - ARID REGION BY ELECTROCOAGULATION METHOD

Benan YAZICI KARABULUT

Harran University
Graduate School of Natural and Applied Sciences
Department of Environmental Engineering

I. Supervisor: Prof. Dr. Ayşe Dilek ATASOY
II. Supervisor: Prof. Dr. Orhan Taner CAN
Year: 2022, Page: 141

The presence of fluoride (F^-), nitrate (NO_3^-) and arsenic (As) in groundwater causes serious health problems for living things. High concentrations of fluoride have been detected in the underground waters, which are the only drinking water source, in Sarım and Karataş villages located in the west of Şanlıurfa province. Similarly, nitrate pollution has come to the fore as a result of excessive use of artificial fertilizers in intensive agricultural practices in the southeastern part of Şanlıurfa province and in the immediate vicinity of the Harran Plain. Unconscious irrigation techniques have led to nitrate leaching from soils and nitrate contamination into groundwater. In the heavy metal analyzes carried out in the waters of Şanlıurfa's Karaali geothermal field, arsenic has been detected above the limit values and it has been reported that the hot water in this area should not be drunk. Different methods have been developed for the removal of these pollutants, mainly ion exchange, reverse osmosis, adsorption and electrochemical processes. Electrocoagulation (EC) process is an electrochemical method used successfully in the treatment of polluted water. For these reasons, the present thesis was carried out to provide the removal of fluoride, nitrate and arsenic from synthetic and real groundwater by using the EC process with aluminum (Al) and iron (Fe) electrodes. The effects of pH change, electrode material, distance between electrodes, conductivity change, pollutant concentration, current change, voltage change and current density parameters on the percentage of F^-, NO_3^- and As removal were investigated. Additionally, energy consumption amounts, and operating costs were calculated for each pollutant. Optimum experimental conditions for both electrode types (Al and Fe) in F^- removal from synthetic water were determined as initial concentration: 5 mg/L, initial pH: 7.5, current density: 2.5 A/m^2, operating time: 240 min, distance between electrodes: 10 mm and the removal efficiencies were 99.1% and 41.7%, respectively. Optimum experimental conditions for both electrode types (Al and Fe) in NO_3^- removal from synthetic water were determined as initial concentration: 50 mg/L, initial pH: 6, current density: 2.5 A/m^2, working time: 240 minutes, distance between electrodes: 10 mm, and removal efficiencies were 88.2% and 70.8%, respectively. Optimum experimental conditions for both electrode types (Al and Fe) in As removal from synthetic water were determined as initial concentration: 15 mg/L, initial pH: 4.5, current density: 2.5 A/m^2, working time: 240 minutes, distance between electrodes: 10 mm. Removal efficiencies for Al and Fe electrodes were obtained as 99.8% and 99.6%, respectively. As a result of studies, the concentrations of F^-, NO_3^-, and As in real groundwater and synthetic water were successfully reduced below 1.5 mg/L, 50 mg/L and 10 µg/L (WHO limit values), respectively.

KEY WORDS: Electrocoagulation, fluoride, arsenic, nitrate, groundwater

TEŞEKKÜR

Akademik çalışmalarım ve mevcut tez çalışmasının birçok aşamasında destek ve tavsiyeleri için danışmanım Sayın Prof. Dr. Ayşe Dilek ATASOY'a,

Yol göstericiliği, değerli fikirleri, deneyimleri ve teşvikleri ile her alanda rehberliğini esirgemeyen Sayın Prof. Dr. Mehmet İrfan YEŞİLNACAR'a,

Yararlı yorumları, güven ve destekleri için jüri üyelerim Sayın Prof. Dr. Ahmet KILIÇ, Sayın Prof. Dr. Muhammet Yunus PAMUKOĞLU, Sayın Doç. Dr. Ayşegül DEMİR YETİŞ ve ikinci danışmanım Sayın Prof. Dr. Orhan Taner CAN'a,

Arazi çalışmalarımda bana yardımcı olan bölümümüz YÖK 100/2000 Doktora bursiyerleri Perihan DERİN ve Abdullah İzzeddin KARABULUT'a,

Tez çalışmama 17199 proje numarası kapsamında maddi destek veren Harran Üniversitesi Bilimsel Araştırma ve Proje Birimi'ne,

Ayrıca tez çalışmama 119Y306 proje numarası kapsamında maddi destek veren TÜBİTAK'a,

Hayatım boyunca gösterdikleri güven, teşvik ve destek için annem Aysel YAZICI, babam İsmail YAZICI ile kız kardeşim Gülsüm Seval YAZICI'ya,

Son olarak, her daim yanımda olan, her alanda desteğini hissettiğim, hiçbir konuda beni yalnız bırakmayan ve her zaman teşvik eden değerli eşim İhsan KARABULUT'a ve varlıklarıyla anlam kazandığım canım kızlarım Afra Reyyan ve Mihra Zeren'e

Sonsuz teşekkür ediyorum.

ŞEKİLLER DİZİNİ

Sayfa No

Şekil 1.1. Üç değerlikli arsenik türlerinin pH ile değişen bulunma kesirleri....7
Şekil 1.2. Beş değerlikli arsenik türlerinin pH ile değişen bulunma kesirleri....7
Şekil 1.3. Elektrokoagülasyon düzeneğinin şematik görünümü....10
Şekil 1.4. Elektrokoagülasyon tekniğinin uygulama alanları....12
Şekil 3.1. Sarım-Karataş bölgesi çalışma alanı lokasyon haritası....33
Şekil 3.2. Harran Ovası çalışma alanı lokasyon haritası....35
Şekil 3.3. Karaali jeotermal sahası çalışma alanı lokasyon haritası....37
Şekil 3.4. Kesikli elektrokoagülasyon prosesi çalışmalarında kullanılan deney düzeneği....39
Şekil 3.5. Elektrokoagülasyon prosesinde kullanılan elektrot türleri: a. alüminyum elektrot b. demir elektrot....43
Şekil 3.6. Elektrokoagülasyon prosesinde kullanılan elektrotlar arası mesafe: a. 10 mm b. 20 mm....44
Şekil 4.1. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH'ının giderim verimine etkisi (başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....50
Şekil 4.2. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH'ının giderim verimine etkisi (başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....51
Şekil 4.3. Kullanılan elektrot materyalinin (Al/Al, Fe/Fe ve Al/Fe) elektrokoagülasyon prosesi giderim verimi üzerine etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....52
Şekil 4.4. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....53
Şekil 4.5. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....54
Şekil 4.6. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....55
Şekil 4.7. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....55
Şekil 4.8. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....57
Şekil 4.9. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....57
Şekil 4.10. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)....59

Şekil 4.11. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....59
Şekil 4.12. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....61
Şekil 4.13. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....61
Şekil 4.14. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğu parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm).....63
Şekil 4.15. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğu parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm).....63
Şekil 4.16. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Piper diyagramı.....65
Şekil 4.17. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Schoeller diyagramı.....66
Şekil 4.18. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH'ın giderim verimine etkisi (başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....69
Şekil 4.19. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH'ın giderim verimine etkisi (başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....70
Şekil 4.20. Kullanılan elektrot materyalinin (Al ve Fe ve Al/Fe) elektrokoagülasyon prosesi giderim verimi üzerine etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....71
Şekil 4.21. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....72
Şekil 4.22. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....73
Şekil 4.23. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....74
Şekil 4.24. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....75
Şekil 4.25. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....76
Şekil 4.26. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2).....76

Şekil 4.27. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 78
Şekil 4.28. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 78
Şekil 4.29. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 79
Şekil 4.30. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 80
Şekil 4.31. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm) 81
Şekil 4.32. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm) 82
Şekil 4.33. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Piper diyagramı 84
Şekil 4.34. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Schoeller diyagramı 84
Şekil 4.35. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 88
Şekil 4.36. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 88
Şekil 4.37. Kullanılan elektrot materyalinin (Al ve Fe ve Al/Fe) elektrokoagülasyon prosesi giderim verimi üzerine etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 90
Şekil 4.38. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 91
Şekil 4.39. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 92
Şekil 4.40. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 93
Şekil 4.41. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 94
Şekil 4.42. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyon değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 95

Şekil 4.43. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyon değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 96
Şekil 4.44. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 97
Şekil 4.45. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 97
Şekil 4.46. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 7,5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 99
Şekil 4.47. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2) 99
Şekil 4.48. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm) 101
Şekil 4.49. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm) 102
Şekil 4.50. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Piper diyagramı 104
Şekil 4.51. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Schoeller diyagramı 105

ÇİZELGELER DİZİNİ

Sayfa No

Çizelge 1.1. İçme suyundaki florür konsantrasyonu için ulusal/uluslararası standartlar.....4
Çizelge 1.2. Elektrokoagülasyon avantaj ve dezavantajları 9
Çizelge 4.1. Çalışma alanındaki yeraltı sularının fizikokimyasal özellikleri 65
Çizelge 4.2. Elektrokoagülasyon çalışma koşulları ve enerji tüketimi.....67
Çizelge 4.3. Çalışma alanındaki yeraltı sularının fizikokimyasal özellikleri 83
Çizelge 4.4. Örnekleme noktalarının nitrat değerleri 85
Çizelge 4.5. Elektrokoagülasyon prosesi çalışma koşulları ve enerji tüketimi.....86
Çizelge 4.6. Çalışma alanındaki yeraltı sularının fizikokimyasal özellikleri 103
Çizelge 4.7. Elektrokoagülasyon çalışma koşulları ve enerji tüketimi.....106

SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ

$/m^3$	Metreküp başına düşen birim dolar
€/m^3	Metreküp başına düşen birim euro
µg/L	Mikrogram/Litre
A/m^2	Kapasitif akım yoğunluğu
AC	Alternatif akım
Al	Alüminyum
$Al(OH)_3$	Alüminyum hidroksit
As	Arsenik
As^{+3}	Arsenit
As^{+5}	Arsenat
AsO_3^{-3}	Arsenit
AsO_4^{-3}	Arsenat
BBD	Box-Behnken tasarımı
BEC	Kesikli elektrokoagülasyon prosesi
$Ca(OH)_2$	Kalsiyum hidroksit
Ca^{+2}	Kalsiyum
CEC	Sürekli elektrokoagülasyon prosesi
Cl^-	Klorür
Cr(VI)	Krom(VI)
Cu	Bakır
DC	Doğru akım
DSÖ	Dünya sağlık örgütü
EC	Elektriksel iletkenlik
EF	Elektroflotasyon
EK	Elektrokoagülasyon
EKF	Elektrokoagülasyon/flotasyon
F^-	Florür
FCER	Tezgâh ölçekli elektrokoagülasyon reaktörü
Fe	Demir
$Fe(OH)_3$	Demir (III) hidroksit
FeF_3	Ferrik florür
FTIR	Fouirer transform infrared spektrofotometre
GAP	Güneydoğu Anadolu Projesi
H_2	Hidrojen
H_2SO_4	Sülfürik asit
HCl	Hidroklorik asit
HCO_3^-	Bikarbonat
Hz	Hertz
KCl	Potasyum klorür
kWh/m^3	Metreküp başına düşen kilowatt saat
mA/cm^2	Kapasitif akım yoğunluğu
mg/L	Miligram/Litre
Mg^{+2}	Magnezyum
mm	Milimetre
Mn^+	Mangan
Na_2SO_4	Sodyum sülfat
NaCl	Sodyum klorür
NaClO	Sodyum hipoklorit
$NaHCO_3$	Sodyum bikarbonat
NaOH	Sodyum hidroksit
NH_4	Amonyum
NO_3^-	Nitrat
OH^-	Hidroksit
PP	Polipropilen

R	Omik direnç
RSM	Yanıt yüzey metodolojisi
SEM	Scanning electron microscope (taramalı elektron mikroskobu)
SO_4^{-2}	Sülfat
XRD	X-Işını difraktometresi
Zn	Çinko

1. GİRİŞ

Yeraltı sularında florür (F^-), nitrat (NO_3^-) ve arsenik (As) gibi çevreye ve insana zararlı kirleticilerin bulunması yeraltı sularının kullanılabilirliğini kısıtlamaktadır. Florür kayalarda, topraklarda, havada, suda, bitkilerde ve hayvanlarda olduğu gibi insan vücudunda da bulunabilmektedir. Yeşilnacar ve ark. (2016) yapmış oldukları çalışmada, batı Şanlıurfa'da (Türkiye) içme suyunun tek kaynağı olduğu Sarım ve Karataş köylerinde yeraltı sularında yüksek florür konsantrasyonu tespit edilmiştir. Yeraltı sularındaki nitrat konsantrasyonu, yeraltı suyunun kullanımından kaynaklanabilecek insan sağlığı etkileri nedeniyle birincil önem taşımaktadır ve en önemli kirleticilerden biridir. Bunun sebebi ise özellikle Şanlıurfa'nın güneydoğu kesiminde ve Harran'ın yakın çevresinde yoğun tarımsal uygulamalarda suni gübrelerin aşırı kullanımıdır (Yesilnacar ve Güllüoğlu, 2008). Bölgede hüküm süren yarı kurak iklim sebebiyle sulama ihtiyacının artması ve bilinçsiz sulama teknikleri uygulanması sonucu topraklarda nitrat konsantrasyonu artarak yeraltı suyuna nitrat karışmasına neden olmuştur. Yeraltı sularında arsenik küçük konsantrasyonlarda yüksek toksisitesi ve tespit edilmesindeki zorluk nedeniyle endişe verici bir kirletici olarak düşünülmektedir. Volkanik kayaçlar ve gölet çökelleri gibi jeolojik oluşumlara bağlı doğal ortamlarda bulunmaktadır (Camacho ve ark., 2011). 2015 yılında Karaali jeotermal sahasında yapılan örneklemelerin ağır metal analizlerinde yüksek konsantrasyonlarda arsenik tespit edilmiş ve bu sahadaki sıcak suyun içme amaçlı kullanılmaması gerektiği rapor edilmiştir (Baba ve ark., 2015). Bu kirleticilerin giderimi için iyon değiştirme, ters osmoz, adsorpsiyon ve elektrokimyasal prosesler gibi farklı yöntemler kullanılmaktadır (Guzman ve ark., 2016; Koparal ve Öğütveren, 2002). Elektrokoagülasyon prosesi kirletilmiş suların arıtılmasında kullanılan elektrokimyasal bir yöntemdir. Ayrıca çok çeşitli kirleticilerin gideriminde kullanılan başarılı bir su arıtma teknolojisi olarak bilinmektedir (Holt ve ark., 2005).

Çalışmanın yürütüldüğü yarı kurak ve kurak bir bölgede, Sarım–Karataş, Harran Ovası ve Karaali yeraltı sularında kirlilik oluşturan yüksek florür, nitrat ve arsenik kirliliklerinden yola çıkarak çevre dostu, yüksek verim elde edilmesi ve basit kurulum

ve işletim gereksinimine sahip bir yöntem olan elektrokoagülasyon prosesiyle bu kirliliklerin gideriminin araştırılması ve elde edilen deneysel verilerin değerlendirilerek bölgeye katkı sağlanması amaçlanmıştır. Ayrıca sulardan giderimi oldukça zor olan arsenik, nitrat ve florürün arıtımı üzerinde yeni bilimsel veriler elde edilmiştir. Su arıtımı teknolojisinde oldukça etkili bir yöntem olan elektrokoagülasyon metodu üzerinde çalışmalar yürütülmüş ve bu metodun bölgemizde kullanımının yaygınlaştırılması hedeflenmiştir. Yarı kurak iklimlerde içme suyu kaynağı olarak yeraltı suyunu kullanan birçok bölge için bu çalışma sonuçlarının faydalı geri dönüşleri olacaktır. Bu yöntem ile kırsal bölgelerde önemli bir ilk yatırım veya altyapı maliyeti gerektirmeden kolay bir şekilde arıtım çalışmaları yapılabilecektir.

1.1. Florür

İnsan sağlığı için önemli olan eser elementlerden biri de florürdür (F^-) (Irigoyen-Camacho ve ark., 2016). Doğal ve antropojenik faaliyetler sularda florür kirliliğine neden olmuştur (Bhatnagar ve Sillanpää, 2011). Dünya Sağlık Örgütü'ne göre, içme suyu için izin verilen florür konsantrasyonu sınırı 1,5 mg/L'dir (WHO, 1994). İçme suyunda izin verilen düzeyin ($F^- > 1,5$ mg/L) üzerindeki florür iyonları, insan sağlığı üzerinde diş ve iskelet florozisi gibi olumsuz etkilere neden olmaktadır (Atasoy ve Yeşilnacar, 2017). Florür konsantrasyonu, akiferin litolojik ve fizikokimyasal özelliklerinin yanı sıra hidrojeolojik parametrelere (kimyasal bileşenler ve kuyuların derinliği gibi) de bağlı olarak değişkenlik göstermektedir. Volkanik kayaçlar, mika mineralleri ve termal kaynaklar da doğal sularda florür kirliliğine neden olmaktadır. Çalışmalar, yüksek florür konsantrasyonunun dünyanın farklı yerlerinde yeraltı sularındaki magmatik ve metamorfik kayaçlarla ilişkili olduğunu göstermiştir (WHO, 2006).

Florür diş çürüklerini önlemede büyük önem arz etmektedir. Ancak aşırı dozda florür alımı dental florozis riskini artırmaktadır (Chuah ve ark., 2016). Dental florozis, diş gelişimi sırasında yüksek mineral konsantrasyonu ile aşırı alımının neden olduğu gelişimsel bir diş minesi hastalığıdır. Ayrıca dişlerde daha az mineral içeriği ve daha fazla gözeneklilik ile sonuçlanmaktadır (Carvalho ve ark., 2013). 0,5 ile 1,5 mg/L

arasındaki florür içeriği, diş çürümesini önlemek için optimum değerdir. 1,5 mg/L'in üzerindeki florür konsantrasyonları diş florozisine neden olurken, aşırı florür konsantrasyonuna (> 4 mg/L) sahip sular ise iskelet florozisine neden olabilmektedir. Ayrıca yüksek florür konsantrasyonu osteoporoza ve vücutta ciddi sorunlara yol açabilmektedir (Sandoval ve ark., 2019). Türkiye'nin bazı bölgelerinde yapılan çalışmalarda da görüldüğü gibi volkanik kayaçlar ve jeotermal kaynaklar nedeniyle suyun florür konsantrasyonu 1,5 ila 13,7 mg/L arasında yüksek bulunmuştur (Atasoy ve ark., 2016). Özellikle kırsal kesimde yaşayan insanlarda florozis insidansı daha yüksektir. Yeşilnacar (2010) ilk olarak Şanlıurfa ilinin kuzey batısında (Türkiye'nin güneydoğusu) yer alan iki köyde yeraltı sularında aşırı florür ve diş florozisi vakaları tespit etmiştir (Yeşilnacar ve ark., 2016).

İçme suyu gereksinimini yeraltı su kaynaklarından sağlayan toplumlarda florozis vakalarının görülme sıklığı çok daha fazladır (Edmunds ve Smedlley, 2005). Türkiye'nin de arasında olduğu 30'dan fazla gelişmiş veya gelişmekte olan ülkelerde endemik florozise rastlanmaktadır. 200 milyonun üzerinde insan ise, içme sularındaki aşırı florürden dolayı zarar görmektedir. Özellikle Hindistan, Çin, Sri Lanka, ABD'nin batısı, Meksika, Afrika ve Arjantin'nin birçok bölümünde, yüksek florür konsantrasyonuna sahip yeraltı suları tespit edilmiştir (Edmunds ve Smedlley, 2005). Ülkemizde de ilk olarak Isparta bölgesinde dental florozis vakaları görülmüştür (Örnek, 1955). Geçmişte yapılan çalışmalarda, dental florozis olayının görüldüğü yerlerdeki jeolojik yapılar incelendiğinde genel olarak volkanik kayaların ve jeotermal kaynakların varlığı tespit edilmiştir.

Çizelge 1.1.'de içme suyunda florür konsantrasyonu için belirlenen ulusal ve uluslararası konsantrasyon değerleri verilmiştir ((Mollah ve ark., 2001; Chen, 2004).

Çizelge 1.1. İçme suyundaki florür konsantrasyonu için ulusal/uluslararası standartlar

Sınır değerler	F^- (mg/L)	Sağlığa olası etkileri
Dünya Sağlık Örgütü		
Minimum değer	0,50	Düşük konsantrasyonlarda diş çürüklerine neden olabilir.
Optimal aralık	0,50 – 1,50	Sağlık üzerinde olumsuz yan etkisi yoktur, diş çürüklerinin azalmasını sağlar.
Maksimum değer	1,50	Dişlerde benek oluşumuna neden olabilir. Yüksek konsantrasyonlarda "dental florozis", 3,00 mg/L'nin üstünde ise "iskeletsel florozis" hastalığına neden olabilir.
TS 266 (Sular - İnsanî Tüketim Amaçlı Sular)		
Müsaade edilen değer	1,00	
Maksimum değer	1,50	
Su Kirliliği Kontrolü Yönetmeliği		
Su Kalite Sınıfı (I)	1,00	

1.2. Nitrat

Son yıllarda Türkiye gibi birçok ülkede içme suyu kaynaklarının azalması nedeniyle yeraltı suyu kullanımı küresel olarak artmıştır. Yeraltı suyu nitrat kirliliği, insan sağlığını ciddi şekilde etkileyen küresel bir sorun haline gelmektedir (Chen ve ark., 2016; Tyagi ve ark., 2018). Yoğun tarımsal faaliyetler ve gübre kullanımı gibi insan faaliyetleri ve bu konularda kamuoyunun yeterince bilgi sahibi olmaması, yeraltı suyunun kalitesini büyük ölçüde düşürmekte ve kullanılabilirliğini sınırlandırmaktadır (Yazıcı Karabulut ve ark., 2019a; Amarine ve ark., 2020). İçme suyundaki yüksek nitrat konsantrasyonları özellikle yeni doğan bebekler için sorun teşkil etmekte ve sıklıkla "mavi bebek sendromu" olarak adlandırılan methemoglobinemiye neden olmaktadır (Malakootian ve ark., 2011; Sadler ve ark., 2016). Dünyanın diğer kurak/yarı kurak bölgelerindeki yeraltı sularında olduğu gibi, Türkiye'nin güneydoğu bölgesindeki yeraltı suları da Harran Ovası için değerli bir kaynaktır. Harran Ovası havzasının orta ve güney kesimleri, havzanın kuzeyi gibi yeraltı suyu potansiyeli açısından iyidir, havzanın diğer bölgeleri ise genellikle orta düzeydedir. Bazı bölgelerde yeraltı suyu potansiyeli önemsiz olduğu için zayıf olarak değerlendirilmektedir (Yeşilnacar ve Güllüoğlu, 2008). Nitrat, doğada yaygın olarak bulunan önemli bir kirletici parametredir. Ayrıca suda yüksek çözünürlüğe sahiptir. Bu nedenle insan sağlığını tehdit etmekte ve sucul ortamlarda önemli kalite sorunlarına neden olmaktadır. Tarımda insan ve hayvan atıklarının, endüstriyel kimyasal atıkların ve özellikle azotlu gübrelerin yüksek miktarlarda kullanılması sonucu toprak, su, bitki

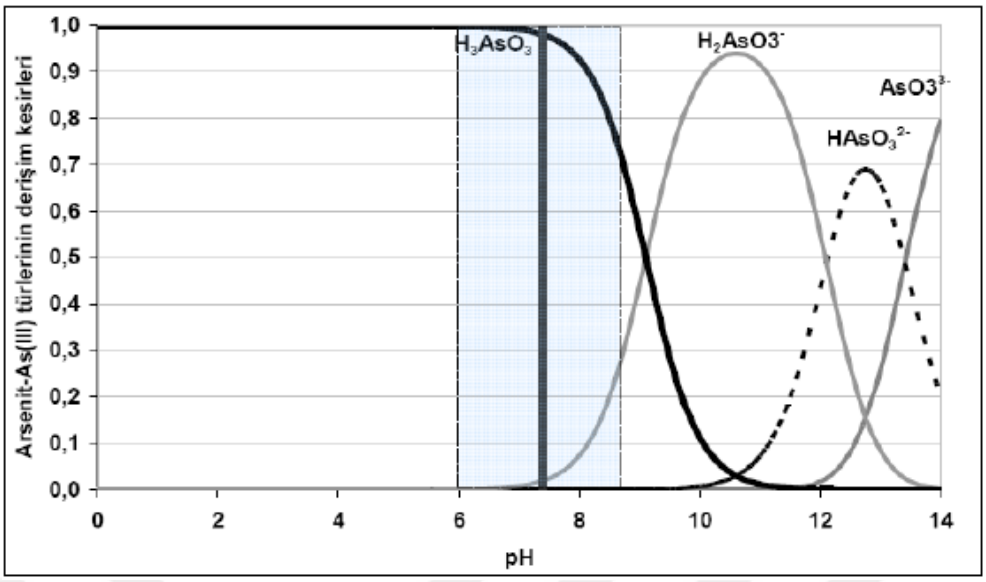
ve tahıllardaki azot düzeyinin artmasına, içme ve içme suyu olmayan sularda nitrat kirlenmesine sebep olmaktadır (Durmaz ve ark., 2007). Dünya Sağlık Örgütü'ne göre, içme amaçlı kullanılan sularda izin verilen maksimum nitrat konsantrasyonu 50 mg/L'dir (WHO, 2011). Sağlık riskleri nedeniyle bu değeri aşan suların kullanılmaması önerilir. Kullanılması gereken durumlarda uygun bir arıtım yöntemi uygulanmalıdır. Biyolojik yöntemler (Kodera ve ark., 2017; Zhang ve ark., 2018), elektrokimyasal yöntemler (Martinez ve ark., 2017), iyon değişimi (Samatya ve ark., 2006; Palko ve ark., 2018), membran prosesleri (Ortiz ve ark., 2008; Epstein ve ark., 2015) ve adsorpsiyon (Bhatnagar ve Sillanpää, 2011; El Ouardi ve ark., 2015) sudan nitrat gideriminde kullanılabilmektedir. Bununla birlikte, bu yöntemlerin, işlem sonrası iyileştirme ihtiyacı, daha düşük verimlilik ve daha yüksek konfigürasyon maliyetleri gibi çeşitli sınırlamaları vardır. Elektrokoagülasyon işlemi ise kirli suların arıtılması için geleneksel yöntemlere göre daha kolay uygulanabilen elektrokimyasal bir yöntemdir (Hakizimana ve ark., 2017; Moussa ve ark., 2017; Hashim ve ark., 2017). Ayrıca EK, ağır metaller, organik bileşikler, yağ ve askıda katı maddeler gibi farklı türde kirleticiler içeren su için çevre dostu bir teknolojidir (Vasudevan ve ark., 2010; Graça ve ark., 2019). EK prosesinde çevresel uyumluluk, enerji ve düşük maliyet verimliliği, otomasyona daha iyi duyarlılık, basit ekipman gereksinimi, destabilize etme yeteneği, düşük çamur üretimi, minimum kimyasal gereksinimi, kontrol yoluyla hassas bir pıhtılaştırıcı dozu verebilme, uygulanan düşük elektrik akımı miktarı, kirleticilerin tek bir aşamada toplanması ve ayrıştırılması gibi avantajlar bu yöntemi daha çekici hale getirmiştir (Kumar ve Goel, 2010; Lacasa ve ark., 2013; Amooey ve ark., 2014; Pulkka ve ark., 2014; Yazici Karabulut ve ark., 2019b). Bu çalışmanın bir kısmı Harran Ovası'nda belirlenen noktalardan numuneler alınarak gerçekleştirilmiştir. Yoğun tarımsal faaliyetler, yetersiz drenaj sistemleri, kontrolsüz ve aşırı sulama, ova drenaj havzasında evsel ve diğer atıkların kontrolsüz bir şekilde atılması bahsedilen alanda gözlenen olumsuzluklardır. Bu sorunun boyutunu ortaya çıkarmak için ovayı temsil eden örnekleme kuyuları seçilmiş, akiferin nitrat düzeyi belirlenmiş ve nitrat düzeyi en yüksek olan yeraltı sularında elektrokoagülasyon giderim çalışmaları yapılmıştır. Nitrat giderimi sırasında elektrokoagülasyon prosesi kurulumunda bir elektrokimyasal nitrat indirgeme işlemi gerçekleşmiştir. Anot, nitratların elektrokimyasal indirgenmesini sağlarken, nitrat bileşikleri yüzeydeki

köpük tarafından uzaklaştırılmış veya alt tortuda çökelmiştir (Rodziewicz ve ark., 2020).

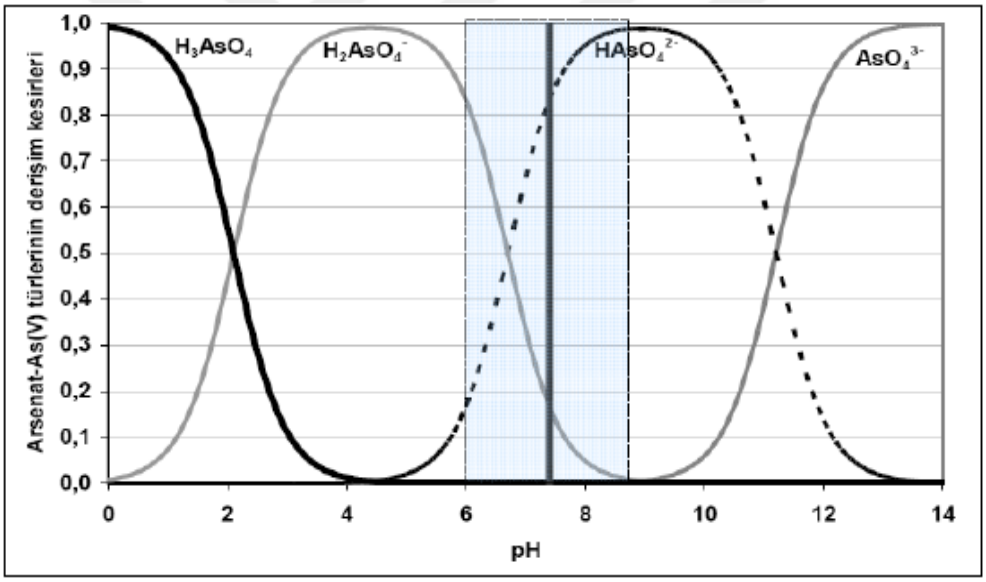
1.3. Arsenik

Arsenik (As), doğal sularda yaygın olarak iki farklı türde bulunabilen bir elementtir. Bunlar; arsenat (AsO_4^{-3}) ve arsenit (AsO_3^{-3}) tir. Oksidasyon şartlarının baskın olduğu durumlarda arsenik As(III) halinde bulunmaktadır. Arsenik elementinin beş değerlikli türleri (As(V)) genellikle aerobik ve oksijence zengin olan ortamlarda baskın ve kararlıdır. Arsenik elementinin üç değerlikli olanı (As(III)) ise düşük pH ve anaerobik indirgen koşullarda bulunur. Yeraltı sularında daha hareketli ve baskındır. Ayrıca As(V)'den 25–60 kat daha zehirlidir (Mohan ve Pittman, 2007). 0 ve -3 değerlikli arsenikler doğada nadiren bulunmaktadır (Bissen ve Fritz, 2003). Arsenik türlerinin konsantrasyonu esas olarak redoks potansiyellerine ve pH'a bağlıdır. Arsenik doğal çevrede kolaylıkla oksidasyon basamağını ve kimyasal formunu değiştirebilmektedir. Arseniğin türünü ve hsngi değerliğe sahip olduğunu redoks potansiyeli, mikrobiyal aktivite suyun pH değeri, sülfür, demir ve kalsiyum gibi iyonlar etkilemektedir (USEPA, 2002). As(III)'ün indirgen ortamlarda ($HAsO_3^{-2}$, H_3AsO_3, $H_2AsO_3^-$, AsO_3^{-3}) iyonlarının var olduğu, As(V)'in ise yükseltgen ortamlarda ise ($H_2AsO_4^-$, H_3AsO_4, $HAsO_4^{-2}$ ve AsO_4^{-3}) iyonları şeklinde bulunduğu bilinmektedir (Kumar ve ark., 2004). Üç ve beş değerlikli arsenik türlerinin pH'a karşı değişim grafiği Şekil 1.1. ve Şekil 1.2.'de sunulmuştur (Can, 2010).

Oksijence zengin aerobik şartlardaki arsenik genellikle As(V) halinde bulunmaktadır. Bunun sebebi, As(III)'ün su içinde bulunan oksijeni kullanarak As(V)'e dönüşmesidir. Arsenik doğal suyun redoks potansiyeli ve pH'ına bağlı olarak birkaç farklı formda yer almaktadır. pH: 5–8 arasında olan doğal sularda genel olarak iki farklı oksitleme halindedir. Bunlar genellikle As(III) bileşikleri H_3AsO_3 iyonu halinde ve As(V) bileşikleri ise $H_2AsO_4^-$ ve HA $HAsO_4^{-2}$ iyonları şeklinde suda çözünür halde bulunmaktadır.



Şekil 1.1. Üç değerlikli arsenik türlerinin pH ile değişen bulunma kesirleri



Şekil 1.2. Beş değerlikli arsenik türlerinin pH ile değişen bulunma kesirleri

Arsenik, hidrojeolojik süreçler yoluyla tüm dünyada yeraltı sularını kirletmektedir (Das ve Nandi, 2021). Göl çökelleri ve volkanik kayaçlar gibi jeolojik oluşumlar nedeniyle doğal ortamlarda bulunmaktadır. Yeraltı suyu, doğası gereği, yüzey sularındaki kaynaklar ve çevredeki jeolojik süreçlerden kaynaklanan kirlenmeye duyarlıdır (Oh ve ark., 2019). İçme suyunda belirli bir sınırın üzerindeki arsenik konsantrasyonu insanlar için kanserojendir (Das ve Nandi, 2021). Dünya Sağlık Örgütü (DSÖ), içme suyunda izin verilen arsenik sınırını 10 µg/L olarak

belirlemiş ve bu miktarın üzerinde arsenik içeren suları zehirli sular olarak ilan etmiştir (WHO, 1996). Türkiye'de içme suyundaki arsenik miktarı Sağlık Bakanlığı tarafından Türkiye İçme Suyu Standartlarında (TSE 266) < 10 µg/L olarak belirlenmiştir. Bu nedenle, sudaki arseniğin kontrolü yerel yönetimler için önem arz eden bir konudur. Günümüze kadar, elektrokoagülasyon yoluyla arseniğin giderilmesi üzerine bir dizi araştırmacı çalışmalar yapmıştır (Dhadge ve ark., 2018; Kobya ve ark., 2018; Mroczek ve ark., 2019; Silva ve ark., 2018). Elektrokoagülasyon yöntemi arsenikle kirlenmiş suları arıtmak için başarıyla kullanılmıştır.

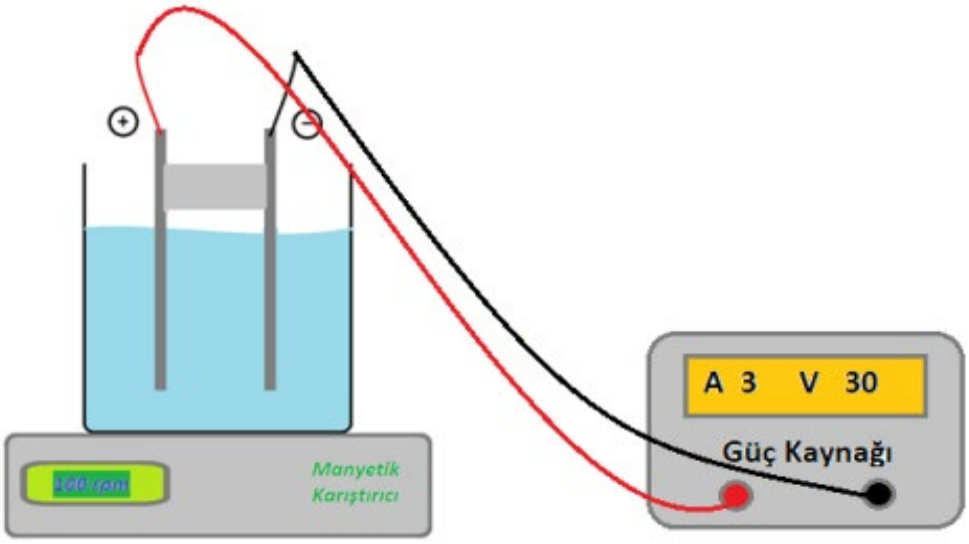
1.4. Elektrokoagülasyon

Elektrokoagülasyon (EK), çeşitli kirleticileri ortadan kaldırmak için umut verici bir fizikokimyasal teknoloji gibi görünmektedir ve ayrıca florür, nitrat ve arseniğin giderilmesinde de etkilidir (Hakizimana ve ark., 2017; Nariyan ve ark., 2018). Kirleticilerin yeraltı sularından uzaklaştırılması için çok başarılı ve geleneksel bir yöntemdir. Elektrokoagülasyon prosesi, çevresel uyumluluk, maliyet etkinliği, daha iyi otomasyon, enerji verimliliği, düşük çamur üretimi, basit ekipman gereksinimleri ve çeşitli kirleticilerle kolay baş edebilme özelliği gibi avantajlar sayesinde daha çekici hale gelmiştir (Amooey ve ark., 2014; Lacasa ve ark., 2013). Elektrokoagülasyon prosesinin avantaj ve dezavantajları Çizelge 1.2.'de verilmiştir ((Mollah ve ark., 2001; Chen, 2004). Burada görüldüğü üzere elektrokoagülasyon prosesinin avantajları dezavantajlarından oldukça fazladır. Bu durum elektrokoagülasyon prosesinin arıtım yöntemi olarak tercih edilmesini cazip kılmaktadır.

Çizelge 1.2. Elektrokoagülasyon avantaj ve dezavantajları

Avantajları	Dezavantajları
Basit işletme şartları ve ekipman gerektirmektedir.	Proseste kullanılan ve çözünen elektrotların düzenli olarak yenilenmesi gerekmektedir.
Arıtım çıkışı kokusuz, renksiz ve berraktır.	Bazı yerlerde elektrik kullanımı pahalı olabilmektedir.
Oluşan çamur, metal oksit ve metal hidroksitleri içerdiği için kolay bir şekilde stabilize edilebilir ve susuzlaştırılabilir. Çamur miktarı azdır.	Katot üzerinde geçirimsiz bir film tabakasının oluşması proses verimliliğinin düşmesine neden olabilmektedir.
Oluşan floklar, kimyasal floklara benzemektedir. Daha büyük floklar oluşturma eğilimindedir. Daha az bağıl su içermektedirler.	Proseste kullanılan çözeltilerin yüksek iletkenliğe sahip olması gerekmektedir.
Kimyasal arıtma ile karşılaştırıldığında proses çıkış suyu daha az toplam çözünmüş katı madde içermektedir.	
En küçük kolloidal parçacıkları giderme avantajına sahiptir. Cihazların uyguladığı elektriksel alan sayesinde daha hızlı hareket ederek koagülasyonu kolaylaştırmaktadır.	
Kimyasal madde kullanımı çok azdır. Bu sayede ikincil kirlenme olasılığı ve kimyasalların nötralizasyonu problemi ortadan kaldırılmış olmaktadır.	
Elektroliz sırasında üretilen gaz kabarcıkları sayesinde kirleticiler çözelti yüzeyine çıkabilir ve giderimleri daha kolay sağlanabilmektedir.	
Proses içindeki elektrotlar sabit konumda olup, elektriksel olarak kontrol edilebilmekte ve böylece daha az bakım gerektirmektedir.	
Kırsal alanlarda enerji, prosese ilave edilen güneş panellerinden sağlanabilmektedir.	

Şekil 1.3.'de görüldüğü üzere basit bir elektrokoagülasyon reaktörü elektrot, reaktör ve güç kaynağından oluşmaktadır (Can, 2010). Elektrokoagülasyon prosesinde, elektrotlar aracılığıyla elektrik akımı üretmek için genellikle doğru akım (DC) uygulanmaktadır. Elektrokoagülasyonda alüminyum (Al) ve demir (Fe) elektrot tipleri daha çok tercih edilmektedir. Elektrokoagülasyon teknolojisi, Fe ve/veya Al gibi metal elektrotlar aracılığıyla sulu bir çözeltiye elektrik akımı uygulanmasını gerektirmektedir (Emamjomeh ve ark., 2020). En çok kullanılan elektrot malzemeleri Al ve Fe'dir.



Şekil 1.3. Elektrokoagülasyon düzeneğinin şematik görünümü

Atıksu arıtımı için elektrokoagülasyon, metal oksidasyonunu ve çözünmesini başlatmaktadır, böylece uygun pH'da pıhtılaşma/flokülasyon oluşturan iyonların ve gazların (oksijen ve hidrojen) üretimine yol açmaktadır (Jung ve ark., 2015; Mores ve ark., 2018). Elektrokoagülasyon prosesinde doğru akım uygulandığında alüminyum veya demir plakalar Al^{+3}, Fe^{+2} veya Fe^{+3} gibi metalik katyonlar üreterek çözülmektedir. Katyonlar, çözünmüş kirleticileri adsorbe eden veya birlikte çökelten bir dizi pıhtılaştırıcı türü veya metal hidroksit oluşturmaktadır (Emamjomeh ve ark., 2019; Song ve ark., 2015). Elektrokoagülasyon prosesinde yer alan temel adımlar şunlardır: (i) oksidasyona bağlı olarak anot plakasının elektrolitik çözünmesi (denklem 1.1), (ii) katotta hidroksit iyonları ve hidrojen gazı oluşumu (denklem 1.2), (iii) metal oluşumu çözelti içinde hidroksit (denklem 1.3), (iv) kirleticilerin metal hidroksit yüzeyinde adsorpsiyonu ve yük nötralizasyonu (İslam ve ark., 2018) ve (v) kirleticilerin çökeltilerek uzaklaştırılması.

Al elektrot için:

$$\text{Anot: } Al_{(s)} \rightarrow Al_{(aq)}^{+3} + 3e^{-} \quad (1.1)$$

$$\text{Katot: } 3H_2O + 3e^{-} \rightarrow 1.5H_{2(g)} + 3OH^{-} \quad (1.2)$$

Alüminyumun anotta çözünmesi sırasında çeşitli sulu alüminyum türleri üretilmektedir. Alüminyum katyonları polimerik türlere dönüştürmekte ve $Al(OH)_3$ çökeltisi oluşturmaktadır:

$$Al_{(aq)}^{+3} + 3H_2O \rightarrow Al(OH)_3 + 3H^+ \quad (1.3)$$

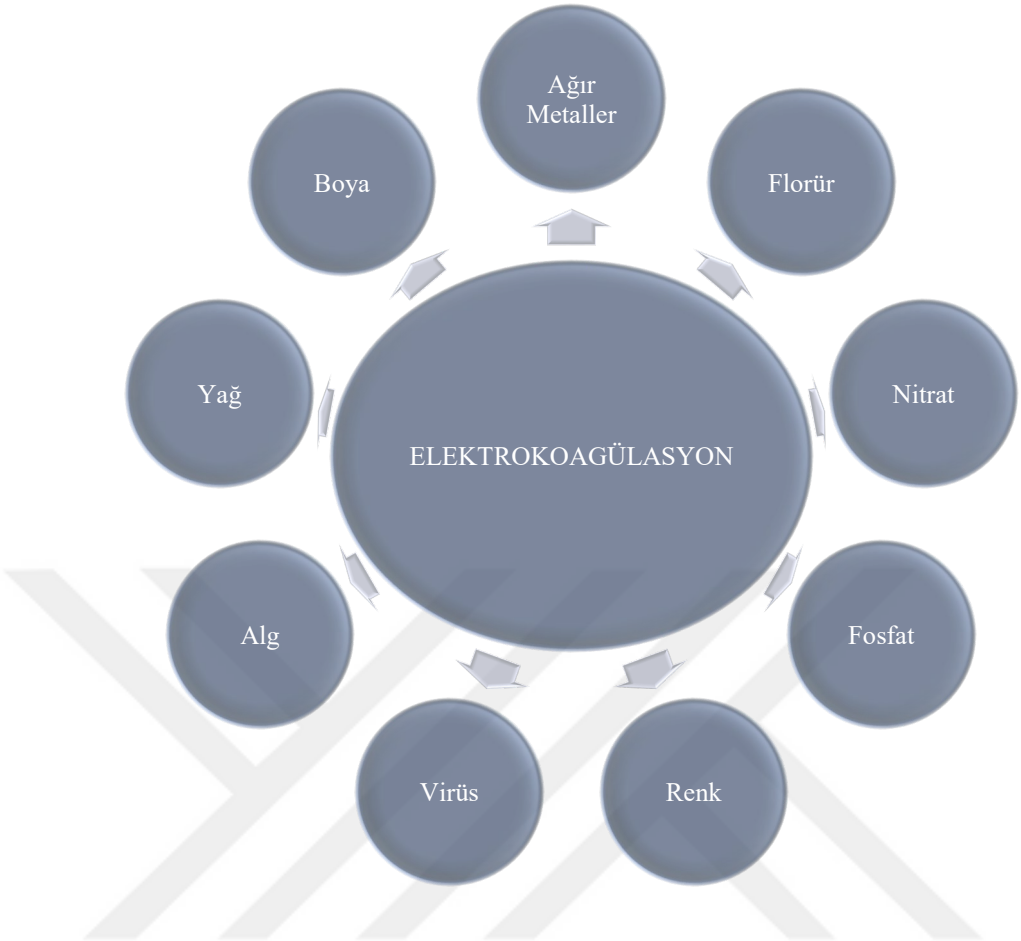
Fe elektrot için:

$$\text{Anot: } Fe \rightarrow Fe\ (3)^{+2} + 2e^- \quad (1.4)$$

$$\text{Katot: } Fe^{+2} + 2OH^- \rightarrow Fe(OH)_2 \quad (1.5)$$

$$Fe(OH)_2 \leftrightarrow Fe(OH)_3 \quad (1.6)$$

Elektrokoagülasyon ve ayrıca elektrokoagülasyon/flotasyon (EF) işleminin kullanımı gün geçtikçe artmaktadır. Yağlı atık suların, boya ve tekstil endüstrisi atıklarının arıtılmasında ve organik maddelerin, ağır metallerin ve florürün gideriminde etkin bir şekilde kullanılabilmektedir (Hu ve ark., 2005) (Şekil 1.4.). Bu teknolojinin kullanımı oldukça ucuzdur ve yenilenebilir enerji kaynakları kullanılırsa daha da azaltılabilmektedir (Kalaruban ve ark., 2017).



Şekil 1.4. Elektrokoagülasyon tekniğinin uygulama alanları

1.4.1. Elektrokoagülasyon ile florür giderim mekanizması

Kirlenmiş yeraltı suyundan florür giderimi, OH^- iyonlarının alüminyum katyonunun pozitif yüküne karşı koymak için yeterli olmaması koşuluyla, hidroksit ve florür iyonları arasında kimyasal yer değiştirmesi sonucu (denklem 1.7) $Al(OH)_{3-x}F_x$ çökeltisi oluşturarak gerçekleşmektedir (Hu ve ark., 2005).

$$Al_n(OH)_{3n} + mF^- \rightarrow Al_nF_m(OH)_{3n-m} + m(OH)^- \quad (1.7)$$

Zhao ve ark. (2011) tarafından doğrulandığı üzere, Al elektrotların kullanıldığı bir elektrokoagülasyon prosesinin sudan florürün uzaklaştırılmasında demir elektrotların kullanıldığına göre daha verimli olduğu iyi bir şekilde kanıtlanmıştır.

Alüminyum/demir hidroksitlerin "süpürme pıhtılaşması" olarak da adlandırılan büyük agregasyonu nedeniyle florür giderimi EK prosesi yoluyla da yapılabilmektedir.

Ferrik florür (FeF_3) kullanan başka bir florür giderme mekanizması, Sarkar ve ark. (2006) tarafından denklem (1.8)'de tarif edilmiştir:

$$Fe(OH)_3 + 3F^- \rightarrow FeF_3 + 3(OH)^- \quad (1.8)$$

Ek olarak, Hu ve ark. (2003), sentetik sudan (çözeltide yan yana bulunan iyonlar olmadan) florür gideriminin çoğunlukla anot yüzeyinde elektro-yoğunlaştırma ile gerçekleştiğini bulmuşlardır.

1.4.2. Elektrokoagülasyon ile nitrat giderim mekanizması

Elektrokoagülasyon ile nitrat giderim prosesinde kurban anot elektrodunun oksidasyonu, katot yüzeyindeki nitrat anyonlarının indirgenmesi için gerekli elektronları sağlamaktadır (Sui ve ark., 2020). Yeraltı suyu EK arıtımında kullanılması önerilen çeşitli metaller arasında alüminyum (Al) ve demir (Fe) en yaygın olanlarıdır. Çoğu araştırma, belirli dezavantajlar (yüksek toksisite, maliyet vs.) olmasına rağmen, toplu çalışma modunda reaktörlerde gerçekleştirilen deneylerle Al elektrotları kullanarak yeraltı suyunu arıtmak için EK uygulamaya odaklanmıştır (Ghanbari ve ark., 2014; Govindan ve ark., 2015a; Yehya ve ark., 2014). Al kullanımının aksine, demir daha ucuz ve daha az toksik bir seçenektir (Hakizimana ve ark., 2017). Ancak Elektrokoagülasyon ile sulardan nitrat gideriminde alüminyum elektrotlar demir elektrotlara göre daha iyi performans sergilemektedir. Elektrot komşuluklarında meydana gelen ana reaksiyonlar şu şekildedir:

Anotta: Al veya Fe metali çözeltide denklem (1.9) ve denklem (1.10) ile serbest kalan katyonları oksitler ve parazit reaksiyonu denklem (1.11) ile oksijen oluşumu sağlanmaktadır.

$$Al \rightarrow Al^{+3} + 3e^{-} \quad (1.9)$$

$$Fe \rightarrow Fe^{+2} + 2e^{-} \quad (1.10)$$

$$2H_2O \rightarrow 4H^{+} + O_2 + 4e^{-} \quad (1.11)$$

Katotta: su, gaz halindeki hidrojen ve hidroksit iyonuna indirgenmektedir (denklem 1.12):

$$2H_2O + 2e^{-} \rightarrow H_2 + 2OH^{-} \quad (1.12)$$

Demirli iyonlar kararsızdır. Denklem (1.13)'e göre ferrik iyonlar vermek üzere çözünmüş oksijenle temas halinde oksitlenebilmektedirler.

$$2Fe^{+2} + 1/2O_2 + H_2O \rightarrow 2Fe^{+3} + 2OH^{-} \quad (1.13)$$

Elektrotlarda üretilen metal katyonları (Fe^{+2}/Fe^{+3} veya Al^{+3}) ve hidroksit iyonları $-OH$ çözeltiye aktarılmakta ve çeşitli monomerik ve polimerik türler oluşturmak için daha fazla spontane hidroliz reaksiyonlarına girerler ve sonunda hidroksit topakları $Al(OH)_3$, $Fe(OH)_3$ ve $Fe(OH)_2$'e dönüşmektedir.

Nitratın elektrokimyasal indirgenmesinde yer alan ana kimyasal reaksiyonlar ise şunlardır (denklemler 1.14—1.22) (Majlesi ve ark., 2016):

$$NO_3^{-} + H_2O + 2e^{-} \rightarrow NO_2^{-} + 2OH^{-} \quad (1.14)$$

$$NO_3^{-} + 3H_2O + 5e^{-} \rightarrow \frac{1}{2}N_2 + 6OH^{-} \quad (1.15)$$

$$NO_2^{-} + 5H_2O + 6e^{-} \rightarrow NH_3 + 7OH^{-} \quad (1.16)$$

$$NO_2^{-} + 4H_2O + 4e^{-} \rightarrow NH_2OH + 5OH^{-} \quad (1.17)$$

$$2NO_2^- + 4H_2O + 6e^- \rightarrow N_2 + 8OH^- \quad (1.18)$$

$$2NO_2^- + 3H_2O + 4e^- \rightarrow N_2O + 6OH^- \quad (1.19)$$

$$NO_2^- + H_2O + e^- \rightarrow NO + 2OH^- \quad (1.20)$$

$$N_2O + 5H_2O + 4e^- \rightarrow 2NH_2OH + 4OH^- \quad (1.21)$$

$$2H_2O + 2e^- \rightarrow H_2 + 2OH^- \quad (1.22)$$

1.4.3. Elektrokoagülasyon ile arsenik giderim mekanizması

Elektrokoagülasyon prosesi sırasında, önerilen ilk işlem As^{+3}'nın As^{+5}'ya yükseltgenmesidir. Arsenit, demirden demir iyonlarına oksidasyon aşamasında bir ara tür oluşturarak arsenata oksitlenebilmektedir (Li ve ark., 2012). Oksidasyon hızı çözünmüş oksijenin hazır olup olmamasına bağlı olduğundan, işlem sırasında havalandırma en iyi alternatiftir.

Elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak yer altı suyundan/atık sudan arsenik giderimi, birlikte çökeltme ve adsorpsiyon gibi içsel süreçleri içermektedir (Maitlo ve ark., 2018; Omwene ve ark., 2019). Yukarıda bahsedildiği gibi, ferrik oksihidroksit ve goetit, As^{+5} türlerini yakalamak için daha büyük afinite göstermiştir (Gomes ve ark., 2007). Arsenat türleri, aşağıdaki denklemlere göre demir türleri tarafından elimine edilmektedir (denklemler 1.23–1.26) (Mohora ve ark., 2018);

$$Fe(OH)_3 + AsO_4^{-3} \rightarrow Fe(OH)_3 \times AsO_4^{-3} \quad (1.23)$$

$$2FeOOH + H_2AsO_4^- \rightarrow (FeO)_2HAsO_4 + H_2O + OH^- \quad (1.24)$$

$$3FeOOH + HAsO_4^{-2} \rightarrow (FeO)_3AsO_4 + H_2O + 2OH^- \quad (1.25)$$

$$Fe_{(aq)}^{+3} + AsO_4^{-3} + H_2O \rightarrow FeAsO_4 \times 2H_2O \quad (1.26)$$

Bununla birlikte, yan reaksiyonlar, aşağıda ifade edildiği gibi (denklem 1.27 ve denklem 1.28), giderme etkinliğini azaltabilen pas oluşturabilmektedir (Moreno ve ark., 2009).

$$Fe(OH)_2 \rightarrow FeO + H_2O \quad (1.27)$$

$$2Fe(OH)_3 \rightarrow Fe_2O_3 + 3H_2O \quad (1.28)$$

Birkaç çalışma, aşağıdaki kimyasal reaksiyonlar (denklemler 1.29–1.34) yoluyla arsenik türlerinin uzaklaştırılması için Al elektrotlar kullanarak elektrokoagülasyon teknolojisinin yetkinliğini kabul etmiştir (Sandoval ve ark., 2019).

$$Al - OH + H_3AsO_3 \rightarrow Al - OH_2AsO_2OH^- + H^+ \quad (1.29)$$

$$Al - OH + HAsO_4^{-2} \rightarrow Al - OAsO_2OH^- + H^+ \quad (1.30)$$

$$Al(OH)_3 + HAsO_4^{-2} \rightarrow Al(OH)_3 \times HAsO_4^{-2} \quad (1.31)$$

$$Al_2O_3 + HAsO_4^{-2} \rightarrow Al_2O_3 - HAsO_4^{-2} \quad (1.32)$$

$$Al_{(aq)}^{+3} + 2OH^- + HAsO_4^{-2} \rightarrow Al(OH)_2HAsO_4 \quad (1.33)$$

$$Al(OH)_3 + AsO_4^{-3} \rightarrow Al(OH)_3 \times AsO_4^{-3} \quad (1.34)$$

Bu tez çalışması beş bölümden oluşmaktadır. Tezin Giriş bölümünde elektrokoagülasyon yöntemi, yeraltı sularındaki florür, nitrat ve arsenik kirliliği ve giderim çalışmaları ile ilgili temel kavramlar ele alınmıştır. Önceki Çalışmalar bölümünde ise kapsamlı bir literatür taraması sunulmuştur. Materyal ve Yöntem bölümünde; kullanılan kimyasallar, cihazlar, eşitlik ve formüller ile yapılan analizler verildikten sonra çalışma alanı detaylı bir şekilde verilmiş ve son olarak tez çalışmasında yürütülen deneysel süreç anlatılmıştır. Araştırma Bulguları ve Tartışma bölümünde tez çalışması kapsamında elektrokoagülasyon yöntemi ile sulardan florür,

nitrat ve arsenik giderimi detaylı olarak ele alınmıştır. Son olarak Sonuçlar ve Öneriler bölümünde elde edilen sonuçlar verilmiş ve öneriler sunulmuştur.

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Elektrokoagülasyon ile sulardan kirletici giderimi çalışmaları EK prosesinin çevresel uyumluluk, enerji ve düşük maliyet verimliliği, otomasyona daha iyi duyarlılık, basit ekipman gereksinimi, destabilize etme yeteneği, düşük çamur üretimi, minimum kimyasal gereksinimi, kontrol yoluyla hassas bir pıhtılaştırıcı dozu verebilme gibi avantajlarla birlikte uygulanan elektrik akımının kontrolü, kirleticilerin tek bir aşamada toplanması ve ayrılması özellikleri sebebiyle bilimsel alanda ilgi görmektedir. Bu bölüm, florür giderimi ile ilgili önceki çalışmalar, nitrat giderimi ile ilgili önceki çalışmalar ve arsenik ile ilgili önceki çalışmalar olmak üzere üç alt başlıktan oluşmaktadır.

2.1. Florür Giderimi ile İlgili Önceki Çalışmalar

Emamjomeh ve Sivakumar (2009)'a göre, aşırı florür içeren uzun süreli su tüketimi dişlerin ve kemiklerin florozisine yol açmaktadır. EK, istenmeyen çözünmüş parçacıkların ve süspansiyon halindeki maddelerin elektroliz ile sulu bir solüsyondan etkili bir şekilde uzaklaştırılabildiği bir elektrokimyasal tekniktir. Akım yoğunluğu: 12,5-50 A/m^2, akış hızı: 150-400 mL/dakika, başlangıç pH'sı: 4–8 ve başlangıç F^- konsantrasyonu: 5–25 mg/L gibi farklı parametrelerin etkilerini araştırmak için florürün giderilmesi amacıyla monopolar alüminyum elektrotlarla sürekli akış deneyleri yapılmıştır. En yüksek arıtma verimi en büyük akım için elde edilmiş ve nihai pH değeri 6 ila 8 arasında değiştiği zaman giderim verimliliğinin akım yoğunluğuna, debiye ve ilk florür konsantrasyonuna bağlı olduğu bulunmuştur. Üretilen çamurun bileşimi, X-ışını kırınımı (XRD) spektrumu kullanılarak analiz edilmiştir. Yukarıdaki pH aralığında, alüminyum florür hidroksit kompleksi [$Al_nF_m(OH)_{3n-m}$] oluşumunu en üst düzeye çıkaran alüminyum hidroksit [$Al(OH)_3$]'in kuvvetli varlığı, elektrokoagülasyon ile defloridasyonun başlıca sebebi olarak görülmüştür. Elde edilen sonuçlar, sürekli akışlı elektrokoagülasyon teknolojisinin, içilebilir su kaynaklarının defloridasyonu için etkili bir işlem olduğunu ve endüstriyel atıksuyun defloridasyonu için de kullanılabileceğini göstermiştir.

Aoudj ve ark. (2015), yaptıkları çalışmada önceden işlemden geçirilmiş asitli yarı iletken atıklardan krom (Cr) (VI) ve florürün aynı anda giderilmesi için iki aşamalı bir EK-EF prosesi tasarlamışlardır. EK basamağı florür koagülasyonu ile Cr(VI) bütünleşmiş indirgenmesini içerirken, EF aşamasında berraklaştırma gerçekleşir. EK aşamasında, kurban anot olarak bir hibrid Fe–Al ve katot olarak paslanmaz çelik kullanılmıştır. Başlangıçta, anodik maddenin EK–EF verimliliği üzerindeki etkisi araştırılmış ve 2 Fe–2 Al kombinasyonunun optimum sonuçlar verdiği bulunmuştur. Cr(VI) giderim işleminin çoğu demir plakalara atfedilirken, florür uzaklaştırma esas olarak alüminyum plakalara atfedilmiştir. Koagülantların varlığı, başlangıç çözeltisinde bulunan askıda katıların uzaklaştırılmasını sağlamıştır. Hibrid anot kullanılarak başlangıç pH, akım yoğunluğu, anyon özellikleri, klorür konsantrasyonu ve başlangıç konsantrasyonunun EK–EF proses verimliliğine etkisi araştırılmıştır. Hibrid anodun davranışı hem demir hem de alüminyumun kirleticilere karşı bireysel özelliklerine bağlıdır. Optimum koşullar altında, ulusal deşarj standartlarına göre EK–EF'den sonra kalan Cr(VI) ve florür konsantrasyonları ve bulanıklık değerleri bulunmuştur.

Govindan ve ark. (2015b) yaptıkları bu çalışmada Ca^{+2}, Mg^{+2} ve Al^{+3} iyonlarının Fe ve Al elektrotlarını kullanarak elektrokoagülasyon ile florür giderimi üzerindeki etkisini irdelemiştir. Yükleme yükü (Q_e), katyon konsantrasyonu (Mn^{+}: Ca^{+2}, Mg^{+2} ve Al^{+3}) ve anyonların (X_n^{-}: NO_3^{-}, SO_4^{-2} ve Cl^{-}) florür giderimi üzerindeki etkileri ayrıntılı olarak analiz edilmiştir. Deneysel sonuçlar, Mn^{+} yokluğunda, başlangıç florür konsantrasyonu 0,53 mM olduğunda Q_e 1620 C/L'de EK tarafından Al için %60 ve Fe için %18'e kadar maksimum florür giderim verimliliği olduğunu göstermiştir. Bununla birlikte, Elektrokoagülasyon prosesinde Al ve Fe elektrotlarının her biri için ayrı ayrı 0,16 ve 0,25 mM Al^{+3}'ün ($AlCl_3$ olarak) eklenmesiyle verimliliğin %87'ye kadar çıkarak başlangıçtaki florür konsantrasyonu (0,53 mM) 0,06 mM'ye (DSÖ'nün önerilen florür limiti) indirgenmiştir. Fe elektrotlar için %90, Al elektrotlar için %99'luk maksimum florür giderim verimi sırasıyla Al^{+3} destekli EK ve Mg^{+2} destekli elektrokoagülasyon prosesinden elde edilmiştir. Birlikte var olan (co-existing) anyonların florür giderimi üzerindeki etkisi, NO_3^{-} ve Cl^{-} ile karşılaştırıldığında SO_4^{-2} iyonunun belirgin bir etki gösterdiğini vurgulamıştır. Buna ek olarak, florür giderme

mekanizmasını aydınlatmak için, Mn^{+} destekli elektrokoagülasyon prosesi tarafından defloridasyon işlemlerinde üretilen çamurun kristal yapısı ve bileşimi, XRD, SEM ve FTIR kullanılarak karakterize edilmiştir.

Florürün yeraltı suyundan giderilmesi için elektrokoagülasyon parametreleri (akım yoğunluğu, pH ve elektrot mesafesi) üzerine Kim ve ark. (2016) yaptığı çalışmada pH'ın bir fonksiyonu olarak doymuş karbonat koşulları altında inorganik iyonların türleşmesini araştırmak için Görsel MINTEQ simülasyonu gerçekleştirilmiştir. Çeşitli pH: 3-9, elektrotlar arası mesafesi: 5–15 mm ve akım yoğunluğu: 3,0–12,0 mA/cm^2 koşulları altında yüksek konsantrasyonlu florürün (190 mg/L) giderimi için $Ca(OH)_2$ üzerine kimyasal adsorpsiyon ile EK'nun fizibilitesini doğrulamak için çalışmalar yapılmıştır. Simülasyon sonuçlarına dayanarak, Al oluşumu ve F^{-}'ün pıhtılaşma giderimi için optimum pH koşulları belirlenmiştir. EK sonuçlarına dayalı deneyler, asidik koşullarda giderim verimliliğinin arttığını, buna karşılık akım yoğunluğu ve elektrot mesafesindeki değişikliklerin artmadığını göstermiştir.

Lu ve ark. (2016), florür ihtiva eden çözeltinin arıtılması için sürekli (CEC) ve kesikli (BEC) elektrokoagülasyon proseslerini araştırmış ve karşılaştırmışlardır. BEC sırasında flokların kötü karışımı ve dağınık dağılımı, CEC ile karşılaştırıldığında daha düşük bir giderim verimliliğine yol açmaktadır. Tüm akım yoğunlukları aralıklarının altında, CEC'nin üstün olduğu görülmüştür. Bununla birlikte, yüksek alıkonma süresinde, yoğun geri karıştırma özelliğine sahip CEC prosesi, BEC ile karşılaştırıldığında daha düşük bir giderim verimi sağlamaktadır. Aynı yük yüklemesinde bile, CEC ile BEC'nin çok farklı olduğu tespit edilmiştir. Elektrokimyasal Al elementinin kullanım oranı dikkate alınarak, CEC prosesi üzerindeki yükleme yükü ve başlangıç pH'ının etkileri araştırılmıştır. Çamurdaki F/Al molar oranı yük yüklemesinin artması ile kademeli bir düşüş eğilimi göstermiştir. Çamurdaki (OH+F) Al elementinin molar oranı, F^{-}'ün sadece $Al(OH)_{3-x}F_{x(s)}$ çökeltme ile değil, aynı zamanda alüminyum floklarının emilimi ile de ortadan kaldırıldığı gerçeğine uygundur. Zayıf asit durumunda olan akışkan, girişten çıkışa kadar tüm elektroliz kanalı boyunca maksimum miktarda alüminyum hidroksit floklarının

üretilmesine yol açmaktadır. Böylece maksimum giderim verimi sağlanmaktadır. Bu durum aynı zamanda Al elementinin çamurdaki kullanım oranının zayıf asit şartları altında maksimuma ulaşır gerçeği ile de ortaya konulmuştur.

Guzmán ve ark. (2016), sürekli bir filtre-basma reaktöründe kurban (zamanla malzemesini kaybeden) anot olarak alüminyum kullanarak EK ile yeraltı sularından eşzamanlı arsenik ve florürün uzaklaştırılmasını araştırmışlardır. Yeraltı suyu, Meksika'daki Guanajuato Bajío bölgesinde 320 m derinlikten toplanmıştır (arsenik 0,043 mg/L, florür 2,5 mg/L, sülfat 89,6 mg/L, fosfat 1,8 mg/L, hidratlanmış silis 112,4 mg/L, sertlik 9,8 mg/L, alkalinite 31,3 mg/L, pH 7,6 ve iletkenlik 993 µS/cm). Arsenit 1 mg/L hipoklorit ilavesiyle arsenata oksitlendirildikten sonra EK uygulanmıştır. EK testleri, 4, 5 ve 6 mA/cm^2 akım yoğunluklarında ve 0,91 ve 1,82 cm/s akış hızlarında arsenatın azaltıldığını ve kalıntı florür konsantrasyonunun DSÖ standardını (CF < 1,5 mg/L) karşıladığını ortaya koymuştur. Alüminyum flokları üzerinde yapılan spektrometrik analizler, bunların ağırlıklı olarak kalsiyum ve magnezyum alüminyum silikatlarından oluştuğunu göstermiştir. Florür alüminyum agregalarından bir hidroksil grubunun yerini alırken EK tarafından arsenat giderimi alüminyum flokları üzerinde adsorbsiyon içermektedir. En iyi EK, 0,34 KWh/m^3 elektrolitik enerji tüketimi ile 4 mA/cm^2 ve 1,82 cm/s'de elde edilmiştir.

Thakur ve Mondal (2017)'a göre, yeraltı sularında arsenik ve florürün bir arada bulunması canlı varlıklar için ciddi sorunları gündeme getirmiştir. Bu nedenle, bu araştırma, alüminyum elektrot kullanılan elektrokoagülasyon işlemi ile, sentetik yeraltı suyundan arsenik ve florürün aynı anda giderilmesi için yapılmıştır. Arsenik ve florür yüzdesinin giderilmesinde başlangıç pH, akım yoğunluğu, çalışma süresi, elektrot mesafesi ve NaCl konsantrasyonunun ve işletme maliyetinin etkileri incelenmiştir. Optimum deney koşullarında başlangıç pH'ı 7, akım yoğunluğu: 10 A/m^2, çalışma süresi: 95 dakika, elektrot mesafesi: 1 cm, NaCl konsantrasyonu: 0,71 g/L'de arsenik giderimi %98,51) ve florür giderimi %88,33 olarak bulunmuştur. Elektrokoagülasyondaki bireysel ve eşzamanlı arsenik ve florür giderme işlemlerinin psödo birinci ve ikinci kinetik modeli de çalışılmıştır. Mevcut elektrokoagülasyon prosesi, DSÖ kurallarına göre içme suyundaki bu elementlerin maksimum kirletici

seviyesi olan sentetik ve gerçek yeraltı suyundaki arsenik ve florür konsantrasyonlarını sırasıyla 0,01 mg/L ve 1,5 mg/L'nin altına düşürebilir.

Elektrokoagülasyon esnasında suyun defloridasyonunda alüminyum elektrodun performansını belirlemek isteyen Dubey ve Tewari (2018), florürün elektro-pıhtılaşma yöntemi kullanılarak içme sularından giderilmesine ışık tutmuştur. İşletme parametrelerinin etkisi olarak başlangıç pH'ı, akım yoğunluğu, başlangıç florür konsantrasyonu, fiziko-kimyasal özellikler ve akış hızı ortaya çıkmıştır. Ayrıca pH değerinin florür giderimi üzerinde büyük ölçüde etki gösteren önemli bir değişken olduğu belirtilmiştir. Araştırma çalışması ayrıca akım yoğunluğunun florür giderimi üzerinde fazla bir etkisinin olmadığını da ortaya koymuştur. Florürü gidermenin en etkili yöntemi, artan bir pH ile elde edilebilirken, elektrot potansiyeli 40-60 V arasında değişen bir artış, giderim oranında olumlu sonuçlar vermiştir.

Grich ve ark. (2019)'nın yapmış olduğu çalışmada, akım yoğunluğu dışındaki deneysel parametrelerin etkisi, yani başlangıç pH'ı, florür konsantrasyonları, sıcaklık ve çözelti iletkenliği kapsamlı bir şekilde incelenmiştir. Yerel musluk suyu ve istenen iletkenliğe ulaşmak için sodyum klorür ilavesiyle sodyum florürün deiyonize su bazlı florür çözeltilerini içeren iki farklı tür su üzerinde çalışılmıştır. Çalışma süresince akım yoğunluğu 5 mA/cm^2'de sabit tutulmuştur. İki su türü için de EK performanslarında pH'nın diğer parametrelere göre daha çok etkisi olduğu görülmüştür.

Elektrokoagülasyon prosesi ile doğal volkanik yeraltı suyundan florür giderimi üzerine Mena ve ark. (2019) tarafından yapılan bir çalışmada reaktörün kesikli çalıştırılması durumunda, suyun asitleştirilmesiyle elde edilen pH: 3'te florür gideriminin en yüksek olduğu görülmüştür. Ancak, suyun doğal pH'ında çalıştırma, uygulanan işleme bağlı olarak %82 ila 92 arasında eliminasyon verimliliğini sağlamıştır. Akım yoğunluğu maksimum giderim verimliliği açısından 5 mA/cm^2 olarak hesaplanmıştır. 10 dakikalık optimum kalma süresi ve elektrotlar arasında 0,5 cm'lik bir ayrım ile sürekli akış çalışmasında, uygulanacak akım yoğunluğunun ham sudaki ilk florür konsantrasyonuna bağlı olacağı gözlemlenmiştir. Bu nedenle, 6,02 mg/L'lik bir başlangıç florür konsantrasyonu, ürün suyundaki yasal yönergelere uymak

için > 7,5 mA/cm^2'lik bir akım yoğunluğu gerektirirken, 8,98 mg/L'lik bir başlangıç konsantrasyonu için optimum akım yoğunluğu 10 mA/cm^2 olarak ölçülmüştür. Bu çalışma koşulları altında, elektrokoagülasyon işlemi, 0,20 ila 0,26 €/m^3 arıtılmış su arasında bir işletme maliyetiyle, doğal yeraltı suyunun florür konsantrasyonunu DSÖ yönergelerine göre 1,5 mg/L'nin altına düşürmeyi başarmıştır.

Yazici Karabulut ve ark. (2019) kurak-yarı kurak bir bölgenin yeraltı sularındaki yüksek florürün çocuklar üzerindeki sağlık etkilerini incelemiş ve bunun EK ve adsorpsiyon prosesleri ile yeraltı sularından uzaklaştırılma etkinliğini araştırmışlardır. Adsorpsiyon prosesi kil mineralleri ile kesikli yöntem ile gerçekleştirilmiştir. Florür adsorpsiyon değerleri hem Langmuir hem de Freundlich denklemleriyle iyi bir uyum sergilemiştir. Düşük K_f değeri (0,14), kil minerali üzerindeki negatif yüklü bölgelerle açıklanabilecek düşük F adsorpsiyonu göstermiştir. Elektrotları, reaktörü ve güç kaynağını içeren elektrokoagülasyon prosesi, yer altı suyu örneğinden florürü başarılı bir şekilde gidermiştir. 4,5 saat sonunda F giderim oranı %99 olarak bulunmuştur. Florürün gideriminde elektrokoagülasyon prosesi, kil üzerinde florür adsorpsiyonundan daha başarılı görülmüştür.

2.2. Nitrat Giderimi ile İlgili Önceki Çalışmalar

Emamjomeh ve Sivakumar (2005), içme suyundan nitrat iyonlarını gidermek için beş alüminyum elektrotlu bir EK hücresi kullanmışlardır. Elde edilen sonuçlar, 2,5 A akım şiddeti uygulanarak maksimum nitrat giderme veriminin 90 dakika sonra %90'a ulaştığını göstermiştir.

Vasudevan ve ark. (2010) bu çalışmada, anot ve katot olarak magnezyum kullanarak içme suyundan NO_3^-'ın giderimi için bir elektrokoagülasyon yöntemi sunmuşlardır. Deneyler pH, sıcaklık ve akım yoğunluğunun bir fonksiyonu olarak gerçekleştirilmiştir. Sonuçlar, 0,25 A/dm^2'lik bir akım yoğunluğunda, 7,0'lık bir pH'ta %95,8'lik maksimum giderim verimine ulaşıldığını göstermektedir.

Malakootian ve ark. (2011), İran'ın Kirman eyaletinin suyundan nitratları gidermek için dört çift Al elektrot kullanmışlardır. Bu çalışmada elde edilen sonuçlar,

bu hücrenin nitrat konsantrasyonunu 60 dakikalık çalışma süresi içerisinde 100'den 10,3 mg/L'ye (%89,7) indirecek kadar etkili olduğunu göstermiştir.

Lacasa ve ark. (2011) bu çalışmada, koagülasyon ve elektrokoagülasyon proseslerini, nitratın sudan uzaklaştırılmasına ilişkin kendi verimliliklerine göre karşılaştırmışlardır. Sonuçlar, elektrokoagülasyonun nitrat giderme için etkili bir teknoloji olduğunu ortaya koymaktadır; çünkü nitrat anyonları büyüyen metal-hidroksit çökeltilerinin yüzeylerine tercihen adsorbe olmaktadır. Koagülasyon reaktifleri olarak alüminyum veya demir elektrotlar kullanılarak molar birimlerde çizildiğinde aynı adsorpsiyon izotermi elde edilmiştir. Elektrokoagülasyon sadece bir dozlama pıhtılaştırıcı teknoloji gibi davrandığından, akım yoğunluğu nitratların sudan uzaklaştırılmasını etkilememektedir. Bununla birlikte, akım yoğunluğu operasyonel hücre potansiyelini arttırdığından, nitrat giderilmesinin fizibilitesini kuvvetle etkilemektedir. Diğer yandan koagülasyon sonuçları, bu teknolojinin nitratın sudan uzaklaştırılması için uygun olmadığını göstermektedir. Koagülasyon dozlaması sırasında gözlemlenen iletkenlikteki büyük artış (elektrokoagülasyon kullanıldığında elde edilen iletkenlik ile karşılaştırıldığında) nitratlar ve pıhtılaşma karşıtı iyonlar arasındaki rekabeti teşvik ettiği görülmektedir. Ayrıca, çökelti parçacıklarının etrafında oluşan çift katmanların genişliklerini de azaltmaktadır. Bu proseslerin her ikisi de muhtemelen, koagülasyon prosesini kullanarak nitratların sudan alınamayacağını açıklamaktadır.

Ghanbari ve ark. (2014), üç konfigürasyonda (Al-Al, Fe-Fe ve Al-Fe) demir ve alüminyum anotların kullanımını içeren elektrokoagülasyon yöntemiyle nitrat giderimini araştırmıştır. Nitrat giderimini sırasıyla 40 dakika sonra Al-Fe ve Al-Al konfigürasyonlarında en yüksek (%81,5) ve en düşük (%62,8) verimliliklerine sahip olduğunu görmüşlerdir.

Majlesi ve ark. (2016) bu çalışmada farklı koşullar altında sürekli çalışan Elektrokoagülasyon-Flotasyon (EKF) prosesi ile nitratın su solüsyonlarından uzaklaştırılmasını araştırmışlardır. Deney sonuçları, maksimum nitrat giderme işleminin, anot-katot olarak alüminyum-alüminyum elektrot düzenlemesi ile

gerçekleştirildiğini göstermiştir. EKF sırasında ve optimum zaman ve pH koşullarında akım yoğunluğunun 0,4'ten 3,2 mA/cm^2'ye yükseltilmesi nitrat giderme verimliliğini %55'den %96'ya yükseltmiştir.

Hashim ve ark. (2017)'nın yaptığı bir araştırmada, içme suyu denitrifikasyonu için tezgâh ölçekli yeni bir elektrokoagülasyon reaktörü (FCER) tasarlanmıştır. Elde edilen sonuçlar, başlangıç pH'ı 7, elektrotlar arası mesafe 5 mm, akım yoğunluğu 2 mA/cm^2 ve 55 dakikalık işletim süresi sonunda FCER'nin nitrat konsantrasyonunu 100'den 15 mg/L'ye düşürdüğünü göstermiştir. İşletim maliyeti 0,455 \$/m^3 olarak hesaplanmıştır. Ayrıca FCER'in 1,36 kW/m^3 güç üretecek kadar H_2 gazı yaydığı tespit edilmiştir.

Amarine ve ark. (2020)'nın yaptığı bir çalışmada, içme suyu üretimi için nitratla kirlenmiş yeraltı suyunun Al elektrotlar kullanılarak EK yöntemiyle denitrifikasyonu incelenmiştir. Kazablanka-Settat bölgesinden toplanan dört numune üzerinde testler gerçekleştirilmiştir. EK, uygulanan sabit bir voltaj (30 V), her bir elektrot plakasının batık yüzey alanı (33,75 cm^2) ve elektrotlar arası mesafe (1,8 cm) açısından incelenmiştir. Elde edilen sonuçlar, incelenen çeşitli yeraltı suyu numuneleri için nitrat giderim verimliliğinin 120 dakika sonra %88,48 ile %94,1 arasında değerlere ulaştığını göstermiştir. Ayrıca, bu sonuçlar, elektrokoagülasyon işlemi sırasında sülfatların nitratlarla eşit şekilde giderildiğini ve bunların giderim verimlerinin, ilk klorür konsantrasyonuna bağlı olarak 120 dakika sonra çalışılan tüm numuneler için %58,24 ila %97,86 arasında değiştiğini göstermiştir. Bakteri yükü, arıtılmış suda bulunan bakterilerin çoğu için elektrokoagülasyon ile tamamen ortadan kaldırılmıştır. Son olarak, elektrokoagülasyon prosesi sırasında alüminyum elektrotların oluşturduğu çamuru karakterize etmek için X-ışını kırınımı kullanılmıştır.

Abdel-Aziz ve ark. (2020) yatay olarak yönlendirilmiş Al serpantin tüp anotlu bir hücre kullanarak elektrokoagülasyon yoluyla sudan nitrat gidermeyi inceledikleri bir çalışmada hücrenin giderim verimliliğinin 100 dakika sonunda %100'e ulaştığını tespit etmişlerdir.

Ano ve ark. (2020)'nın yaptığı bu çalışmanın amacı, deneysel tasarımlar metodolojisi (EDM) kullanılarak EK işlemiyle simüle edilmiş atık sudan nitrat gideriminin değerlendirilmesidir. Nitrat giderimi için ilk olarak Plackett-Burman tasarımı (PBD) akım yoğunluğu: 0,5–2 A, işletim süresi: 20−60 dakika, başlangıç çıkış suyu pH'ı: 4–10, elektrot tipi: Fe, Al ve elektrolit tipi: Na_2SO_4, NaCl gibi beş faktörün taranmasıyla kullanılmıştır. Faktörlerin katkıları sırasıyla %41,56, %26,51, %7,04, %23,98 ve %0,91 olmuştur. Sonuçlar, yüksek akım yoğunluğunun, yüksek elektroliz süresinin, düşük başlangıç pH'ının yanı sıra Al elektrot kullanımının yüksek nitrat giderimi için uygun olduğunu da göstermiştir. Ardından, üretilen amonyum ve işletme maliyetini en aza indirirken nitrat giderimini optimize etmek için Box-Behnken tasarımı (BBD) kullanılmıştır. Elde edilen optimum koşullar yoğunluk: 1,80 A, süre: 33 dakika ve pH: 8,73'tür. Bu koşullar altında, 1,3 $\$/m^3$ işletme maliyeti için üretilen 12,02 mg/L amonyuma ve 1,8 g metalik kalıntıya karşı %73,8 oranında nitrat elimine edilmiştir. Bu sonuçlara dayanarak EK, nitrat giderimi için iyi bir verimlilik prosesi olarak kabul edilebilir. Ayrıca, BBD'nin prosesi modellemek ve maliyet-etkinlik açısından en uygun koşulları belirlemek için güvenilir bir istatistiksel araç olabileceği bulunmuştur.

Yazici Karabulut ve ark. (2021)'nın yaptığı bu çalışmada Al ve Fe elektrotlar kullanılarak EK ile sulu çözeltilerden NO_3^- giderim mekanizmasına ve kurak/yarı kurak bir bölgenin yeraltı suyundaki yüksek nitrat seviyelerinin azaltılmasına odaklanılmıştır. Başlangıç pH'ı, değişen elektrot malzemesi, elektrotlar arası mesafe, başlangıç iletkenliği ve nitrat konsantrasyonunun nitratın giderilme yüzdesi ve enerji tüketimi üzerindeki etkisi incelenmiştir. Proses, oda sıcaklığında (25 °C) kesikli yöntemle gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmaların sonuçlarına göre, optimum deney koşulları, Al elektrot ile ve başlangıç pH: 6, çalışma süresi: 210 dk, akım yoğunluğu: 2,31 A/m^2, elektrotlar arası mesafe: 10 mm ve iletkenlik:1000 µs/cm olarak bulunmuştur. Bu koşullar altında giderim verimi %80,1 (başlangıç konsantrasyonu: 250 mg/L) olarak hesaplanmıştır. Deney düzeneği ve gerçek yeraltı suyu için enerji tüketimi sırasıyla 2,07 kWh/m^3 ve 1,925 kWh/m^3'tür.

2.3. Arsenik Giderimi ile İlgili Önceki Çalışmalar

Kobya ve ark. (2015)'nın yaptığı bu çalışmada, elektrokoagülasyonun Sivas Şarkışla yeraltı suyundan (SSG) arseniğin uzaklaştırılmasındaki etkinliğini değerlendirmek için kesikli modda Fe top ve levha anotlar kullanılan hava beslemeli elektrokoagülasyon reaktörü ile laboratuvar ölçekli deneyler yapılmıştır. Çalışma parametrelerinin etkileri, yani başlangıç pH_i (6,6–8,6), uygulanan akım (0,10–0,50 A), elektrot alanı (210–630 cm^2), hava akış hızı (0–6 L/dk) ve çalışma süresi (0– 20 dakika) Fe top ve levha anotlar için arsenik giderme etkinliği araştırılmış ve her tip elektrot için işlenerek SSG için işletme maliyetleri hesaplanmıştır. Her iki tip elektrot için pH'ın 6.6-8.6 aralıkta arsenik giderimi üzerinde önemli bir etkisi olmadığı belirtilmiş, ancak daha yüksek akım yoğunluğu, hava akış hızı ve elektrotun en düşük yüzey alanı için, arseniğin SSG'den hızla giderilmesini sağlamıştır. pH 7,6, 0,30 A, 6 L/dak hava akış hızı, 210 cm^2 anot yüzey alanı olarak belirlenen optimum çalışma koşulları, 20 dakikada %99,3 giderim verimliliği ve 1,55 $/$m^3$ işletme maliyeti ile sonuçlanmıştır (yük yoğunluğu 360 Fe top elektrotları için C/L veya 3,731 F/m^3) ve Fe plaka elektrotları için sırasıyla 6 dakikada %96,9 verim ve 0,101 $/$m^3$ işletme maliyeti ile son bulmuştur (yük yoğunluğu 108 C/L veya 1,119 F/m^3). Bir karşılaştırma olarak, Fe plaka elektrotları çalışma süresini 20 dakikadan 6 dakikaya düşürmede daha iyi performans gösterdiği ve bu durumun işletme maliyetini olumlu etkilediği görülmüştür. Elektrokoagülasyondaki her iki tip elektrot da optimum çalışma koşullarında arsenik konsantrasyonunu < 10 mg/L'ye düşürmeyi başarmıştır.

Silva ve ark. (2018)'nın içme suyundan arsenik, demir, florürün giderilmesine ilişkin EK prosesini inceledikleri çalışmalarının, bu kirleticilerin varlığının önemli bir sağlık sorunu olduğu bazı dünya bölgeleri için etkili su arıtma teknolojilerinin geliştirilmesinde önemli bir adım olduğunu belirtmişlerdir. Deneysel sonuçlar, arseniğin diğer kirleticilerin varlığında bile kolayca giderilebileceğini göstermiştir. F varlığında arsenik giderim oranındaki hafif azalmaya rağmen, toplam giderim 30 dakikadan daha kısa bir EK prosesinde elde edilmiştir. Öte yandan, demirin varlığı arsenik giderim oranı üzerinde olumlu bir etki sunmuştur. Elektrokoagülasyon prosesinde hem florür hem de demir giderimi birbirinin varlığından faydalanmıştır. Üç

kirleticinin aynı anda giderilmesi, 1 saatten daha kısa bir çalışma süresinde gerçekleştirilmiştir.

Arsenik, hidratlı silika ve florürün derin kuyu suyundan elektrokoagülasyon ile aynı anda giderilmesi (As 106,2 mg/L, hidratlı silika 72 mg/L, F^- 4,4 mg/L, sülfat 50 mg/L, fosfat 0,99 mg/L, pH: 8,2 ve iletkenlik 659 µS/cm) Rozales ve ark. (2018) tarafından incelenmiştir. Çalışmalar doğrudan bir jar test cihazına bağlı kurban anotlar olarak Al plakaların kullanıldığı sürekli bir elektrokimyasal reaktörde gerçekleştirilmiştir. EK reaktöründeki akım yoğunluğunun ($4 \leq j \leq 8$ mA/cm^2) ve ortalama doğrusal akış hızlarının ($0,057 \leq u \leq 0,57$ cm/s) hidratlı silis, florür ve arsenik giderme verimleri üzerindeki etkisi analiz edilmiştir. Hidratlı silikanın giderimi 8 mA/cm^2 ve 0,057 cm/s'de elde edilirken, aynı elektrolizden sonra kalan F^- ve As konsantrasyonları 0,19 mg/L ve 9,8 mg/L olup, F^- (1,5 mg/L) ve As (10 mg/L) için DSÖ yönergelerini karşılamıştır. Al topakları üzerinde yapılan spektroskopik analizler, bunların ağırlıklı olarak alüminyum silikatlardan oluştuğunu ortaya çıkarmıştır. Arsenatlar, Al topakları üzerinde adsorbe olmuş ve F^-, Al kümelerinden bir hidroksil grubunun yerini almıştır.

Mroczek ve ark. (2019) bu çalışmada, EK prosesinde hem arsenik hem de silis giderme verimliliğini en üst düzeye çıkarmak için gerekli olan Al ve Fe kurban elektrotları veya her ikisini birlikte kullanmışlardır. Laboratuvar ve saha deneyleri, işlemin hem silikayı hem de arseniği jeotermal sudan hızla giderebildiğini ve kolayca ayakta duran bir topak bıraktığını göstermiştir. Jeotermal suda, demir elektrotlar arsenik seviyelerini yaklaşık 4 mg/L'den < 0,1 mg/L'ye düşürmede en etkiliyken, alüminyum elektrotlar silika seviyelerini yaklaşık 600 mg/L'den < 100 mg/L'ye düşürmede en etkili yöntem olarak bulunmuştur.

Sandoval ve ark. (2019) florür ve arseniği yeraltı suyundan gidermek için EK prosesini kullanmışlardır. Elektrokoagülasyon, alüminyum elektrotlarla donatılmış üç hücreli bir yığın içeren bir filtre-pres akış reaktöründe gerçekleştirilmiştir. Akım yoğunluğunun (j), EK reaktöründeki ortalama doğrusal akış hızının (ur) ve birlikte var olan iyonların florür ve arsenik giderme verimleri üzerindeki etkisi analiz edilmiştir.

0,23 ≤ ur ≤ 0,93 cm/s ve 5 ≤ j ≤ 7 mA/cm^2'de gerçekleştirilen tüm EK testleri, DSÖ florür (C_{F-} ≤ 1,5 mg/L) standardını karşılamıştır. Arsenik için DSÖ standardını (C_{As} ≤ 10 μg/L) karşılayan EK testleri 0,23 cm/s ve 6 ≤ j ≤ 7 mA/cm^2 olarak belirlenmiştir. Alüminyum topakları üzerinde yapılan spektroskopik analizler, bunların esas olarak alüminyum silikatlardan oluştuğunu göstermiştir. Enerji tüketimi (6,7 kWh/m^3) açısından en iyi EK testi 0,23 cm/s ve 6 mA/cm^2'de elde edilmiştir.

Omwene ve ark. (2019) bu çalışmada, etkilenen uzak topluluklar için daha ucuz bir arıtma alternatifi olarak As ile kirlenmiş yeraltı sularının arıtılması için Al ve Fe hurda anotları ile EK prosesinin uygulanabilirliğini incelemiştir. Elektrokoagülasyon deneylerinde, toplu dolgulu yataklı bir EK reaktöründe uygulanan akım (0,010–0,100 A), hurda elektrot tipi (Fe ve Al), dolgulu yatak yoğunluğu (Al için 0,02–0,08 kg/m^3 ve Fe için 0,1–0,4 kg/m^3) ve işletim süresi incelenmiştir. Yeraltı suyu numunelerinde toplam As (> %93 giderim) için maksimum kirletici seviyesi (MCL) 10 g /L elde etmek için optimum çalışma koşulları, Fe hurda anotları için 8 dakika ve 0,05 A olarak belirlenmiştir. Al hurda anot için ise 30 dakika ve 0,10 A optimum değerler olarak bulunmuştur. Bu optimumlarda işletme maliyeti, enerji ve elektrot tüketimleri sırasıyla Fe anotlar için 0,017 $/m^3, 0,070 kWh/m^3 ve 0,052 kg/m^3 ve Al anotlar için 0,181 $/m^3, 0,876 kWh/m^3 ve 0,067 kg/m^3 olarak hesaplanmıştır. As giderimi, anot yatağı yoğunluğunun azalmasıyla hafifçe azalım göstermiştir. Ayrıca, Fe hurda anotlar, test edilen tüm koşullarda Al hurda anotlardan daha iyi As giderimi sergilemiştir. Elektro-pıhtılaştırılmış çamurun taramalı elektron mikroskobu (SEM) görüntüleri, amorf yapıya sahip düzensiz ve gözenekli parçacıkları ortaya çıkarmıştır. Fourier dönüşümü kızılötesi spektroskopisi (FTIR), Fe(III)–As(V) ve As O bağı arasındaki bağı göstermiş ve elektrokoagülasyon prosesinde sırasıyla çökeltme ve adsorpsiyon yoluyla arseniğin giderildiğini doğrulamıştır.

Thakur ve ark. (2019) bu çalışmada, alüminyum elektrotlar kullanarak sürekli elektrokoagülasyon prosesi ile arsenik ve florürün eşzamanlı olarak giderilmesiyle ilgili çalışmışlardır. Arsenik ve florürün giderimi üzerinde akış hızlarının etkileri: 0,48–1,40 L/sa ve kalma süresi (τ): 60–173 dakika arasındadır. Arsenik ve florür giderim yüzdeleri sırasıyla %98,83 ve %87,5'ten daha yüksek bulunmuştur. Arıtılmış

sudaki arsenik ve florür konsantrasyonları da DSÖ yönergelerine göre izin verilen sınırların altında bulunmuştur (As: 10 µg/ L, F: 1,5 mg/ L). Sürekli elektrokoagülasyon prosesinin optimum maliyeti, 95 dakika kalma süresi ile 0,88 L/sa akış hızında 0,358 $/m^3$ olarak tespit edilmiştir.

Castañeda ve ark. (2020), Orta Meksika'da toplanan gerçek yeraltı suyundan EK ile, üstte atmosfere açık altı hücreli yığına sahip kaskat şeklinde yukarı akışlı bir reaktör kullanılarak hidratlı silika, arsenik ve fosfatların eliminasyonunu ele almıştır (arsenik 22 mg/L, hidratlı silika 161 mg/L, sülfat 50 mg/L, fosfat 0,41 mg/L, pH 7.6 ve iletkenlik 508 mS/cm). Elektrot olarak alüminyum plakalar kullanılmıştır. EC reaktöründeki hem akım yoğunluğunun ($4 \leq j \leq 10$ mA/cm^2) hem de ortalama doğrusal akış hızlarının ($1,2 \leq u \leq 4,8$ cm/s) hidratlanmış silis, arsenik ve fosfatların giderim verimliliği üzerindeki etkisi incelenmiştir. Elektrokoagülasyondan sonra en iyi arsenik giderimi (artık konsantrasyona ulaşma, C_{As}: 1,5 mg/L), Dünya Sağlık Örgütü tavsiyesini karşılayan (< 10 mg/L), j: 10 mA/cm^2 ve u: 1,2 cm/s'de elde edilmiştir. Hidratlı silis, fosfat ve sülfatların rezidüel konsantrasyonları sırasıyla Ch_s: 42 mg/L, C_{PO4}^{-3}: 0,03 mg/L ve C_{SO4}^{-2}: 35 mg/L olmuştur. Arsenik ve fosfatların tamamen azaltılmasıyla Ch_s: 2,6 mg/L ve C_{SO4}^{-2}: 30 mg/L elde edilmiştir. Elektrolitik enerji tüketimi, alüminyum fiyatı, pompalama maliyetleri ve çamurun hapsedilmesi dahil olmak üzere elektrokoagülasyon prosesinin toplam maliyeti 1,093 $/m^3$ olup, hesaplamanın Meksika maliyetlerine dayandığını vurgulanmıştır.

Oza ve ark. (2021) tarafından simüle edilmiş yeraltı suyundan arsenik giderimi verimliliğini artırmak için ultrasonikasyon ve elektrokoagülasyon yöntemleri kombine edilmiştir. İlk konsantrasyon değişiminin etkisi, sabit pH (7–8), uygulanan voltaj (3–4 V), akım yoğunluğu (20,83 A/m^2), elektrotlar arası mesafe (0,02 m), daldırma derinliği (0,04 m), etkili elektrot alanı (0,0024 m^2) ve ultrasonik frekans (40000 Hz) çalışma koşulları altında çeşitli başlangıç arsenik konsantrasyonu aralığında (0,1 mg/L, 0,3 mg/L, 0,4 mg/L ve 1 mg/L) incelenmiştir. Deneyler, 60 dakikalık elektrokoagülasyon süresinde giderimin %90 civarında olduğunu göstermiştir. Ek olarak, elektrokoagülasyon işlemi sırasındaki daha yüksek akım yoğunluğu da %98,108 oranında arsenik giderimi sunarak hayati bir rol oynamıştır. Sonuç olarak, arsenik gibi

tehlikeli kirleticilerin uzaklaştırılması için kombine ultrasonikasyon ve elektrokoagülasyon işlemi yeterli ve etkili bir arıtma seçeneğidir.

Mevcut araştırmada, Dutta ve ark. (2021) arseniğin 0,01 mg/L'nin (DSÖ limiti) altındaki konsantrasyonlara ulaşması için yeraltı suyundan arsenik gideriminde teknik olarak etkili, yerel alan için uygun maliyetli ve kullanımı kolay bir arıtma teknolojisi olarak demir elektrotlarla elektrokoagülasyon prosesini değerlendirmiştir. Elektrokimyasal olarak üretilen demirin arseniği sudan alan kirlenmiş su içinde hidratlı ferrik okside dönüştürerek, işlem sırasında üretilen ferrik hidroksit odaklarını giderdiği aşağı akışlı bir süzme ünitesi (kum veya aktif alümina) uygulanmıştır. Laboratuvar deneyleri, başlangıç pH'ının ve elektro yük yüklemesinin (ECL) arsenik giderimi üzerindeki etkilerini incelemek için tek kutuplu konfigürasyona sahip elektrotlar olarak demir plakalar kullanılarak bir kesikli reaktörde gerçekleştirilmiştir. Optimum çalışma koşulu, pH 7.0'da 25–30 Coulomb/L'lik bir elektro-şarj yüklemesi ve 0,2 mg/L'lik bir başlangıç arsenik konsantrasyonu için gözlenmiştir. Arsenik giderimi %75–80arasında bulunmuştur ve 0,01 mg/L'nin (kabul edilebilir sınır) altına inildiği için güvenli su olarak kabul edilmiştir.

Atasoy ve ark. (2021) tarafından yapılan bir çalışmanın amacı, kısa süreli uygulanan elektrokoagülasyon yöntemi ile arsenik giderimini incelemek ve akım yoğunluğu, pH, tuz ilavesi ve iletkenliğin giderim hızı ve enerji tüketimi üzerindeki etkilerini araştırmaktır. Elektrokoagülasyon deneyleri, beş alüminyum elektrotlu 10 L'lik pleksiglas reaktörde kesikli modda yapılmıştır. EK prosesi 1,00 mg/L başlangıç As konsantrasyonu ile başlatılmıştır. 10 dakikalık işlem süresi için akım şiddeti ve gerilim değerleri sırasıyla 1 A–2 A ve 2 V–15 V arasında değişmiştir. En yüksek As giderim oranı (%99) 5 V ve 1 A akım uygulamasında bulunmuştur. 1,29 mA/cm^2 akım yoğunluğu, %99 As giderimi için optimum enerji tüketimini (0,60 Wh) sağlamıştır. Artan giderim pH 8'in üzerinde fark edilmiştir. Akım yoğunluğu, pH ve iletkenlik As giderimi üzerinde etkili faktörler olarak bulunmuştur.

3. MATERYAL ve YÖNTEM

Bu bölüm materyal ve yöntem olmak üzere iki alt başlıktan oluşmaktadır. Çalışmada kullanılan temel prosedürler bu başlıklar altında incelenmiştir.

3.1. Materyal

Bu bölüm üç alt başlıktan oluşmaktadır. Florür içeren yeraltı suyu Şanlıurfa'nın batısında yer alan Sarım ve Karataş bölgesinden, nitrat içeren yeraltı suyu Şanlıurfa'nın güneydoğu kesiminde ve Harran Ovası'nın yakın çevresinden, arsenik içeren yeraltı suyu ise Karaali jeotermal sahasından temin edilerek laboratuvar ortamında deney koşullarına uygun olarak hazırlanmıştır.

3.1.1. Florür içeren sentetik ve gerçek yeraltı suyu çalışmaları

Florür içeren sentetik ve gerçek yeraltı suyuna ait örneklerin laboratuvar ortamındaki hazırlama prosedürleri ve çalışma alanı ile ilgili bilgiler verilmiştir.

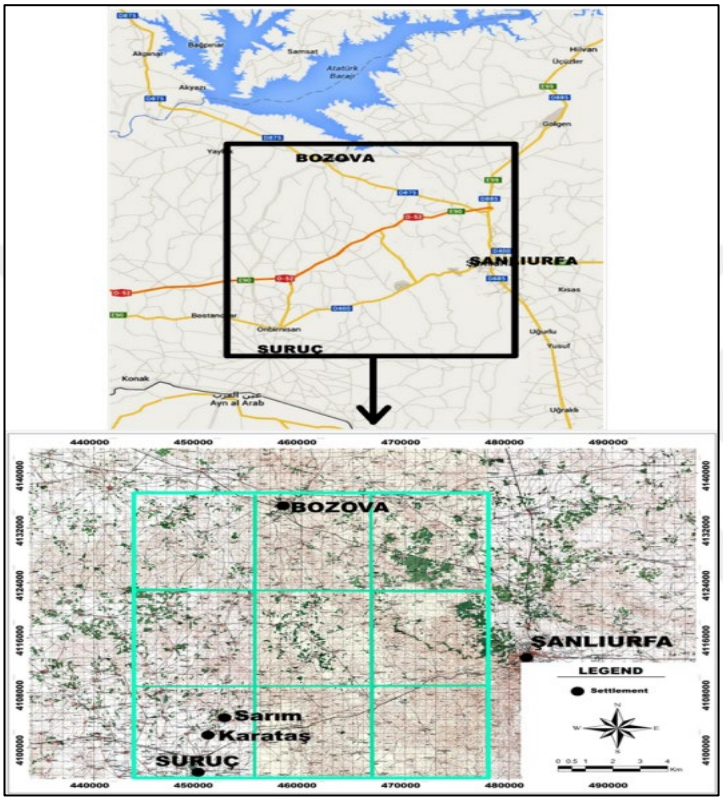
3.1.1.1. Sentetik su çalışmaları

Mevcut tez çalışmasında kullanılan tüm kimyasallar analitik dereceye sahiptir. Sentetik olarak hazırlanan florür çözeltilerinin pH'ını ayarlamak için hidroklorik asit (HCl) (%37) ve sodyum hidroksit (NaOH) kullanılmıştır. Çözeltilerin iletkenliğini ayarlamak için ise sodyum klorür (NaCl) kullanılmıştır. Sentetik florür çözeltilerinin hazırlanmasında florür standart solüsyonu (1000 mg/L) kullanılmıştır. Farklı konsantrasyonlardaki (5 mg/L, 10 mg/L ve 15 mg/L) çözeltileri hazırlarken hesaplanan oranlarda saf su eklenmiştir. Tüm kimyasallar Merck, Almanya'dan temin edilmiştir.

3.1.1.2. Gerçek yeraltı suyu çalışmaları

Sarım-Karataş bölgesi, Güneydoğu Anadolu bölgesinde Şanlıurfa il merkezi ile Suruç ve Bozova ilçeleri arasında yer almakta olup yaklaşık 1350 km^2'lik bir alanı

kapsar. 36º 40' – 38º 02' Kuzey enlemleri ile 37º 50' – 40º 12' Doğu boylamları arasında yer alır. Çalışma alanının konumu ve koordinatlarını içeren konum haritası Şekil 3.1.'de verilmiştir. İnceleme alanı içerisinde yer alan köylerin içme suyu, genellikle devlet tarafından son 10-15 yılda açılan 100-150 metre derinlikteki kuyulardan temin edilmektedir.



Şekil 3.1. Sarım-Karataş bölgesi çalışma alanı lokasyon haritası

Uzun süreli toplam yağış 432,5 mm, ortalama sıcaklık 18,40 °C ve bağıl nem %51,6'dır. Bölge arazi kullanımı bakımından genellikle taşlık olup, bölgede kuru tarım yapılmaktadır. Yetiştirme deseni, fıstık ve tahıl ürünlerinden oluşmaktadır. Ayrıca bölgede hayvancılık yapılmaktadır. Köylüler içme suyunu genellikle kendi açtıkları kuyulardan ve idarenin açtığı derin kuyulardan temin etmektedirler. Köylerde ilköğretim okulu bulunmasına rağmen büyük köylerde eğitim ve öğretim daha çok gezici sistemle sağlanmaktadır.

3.1.2. Nitrat içeren sentetik ve gerçek yeraltı suyu çalışmaları

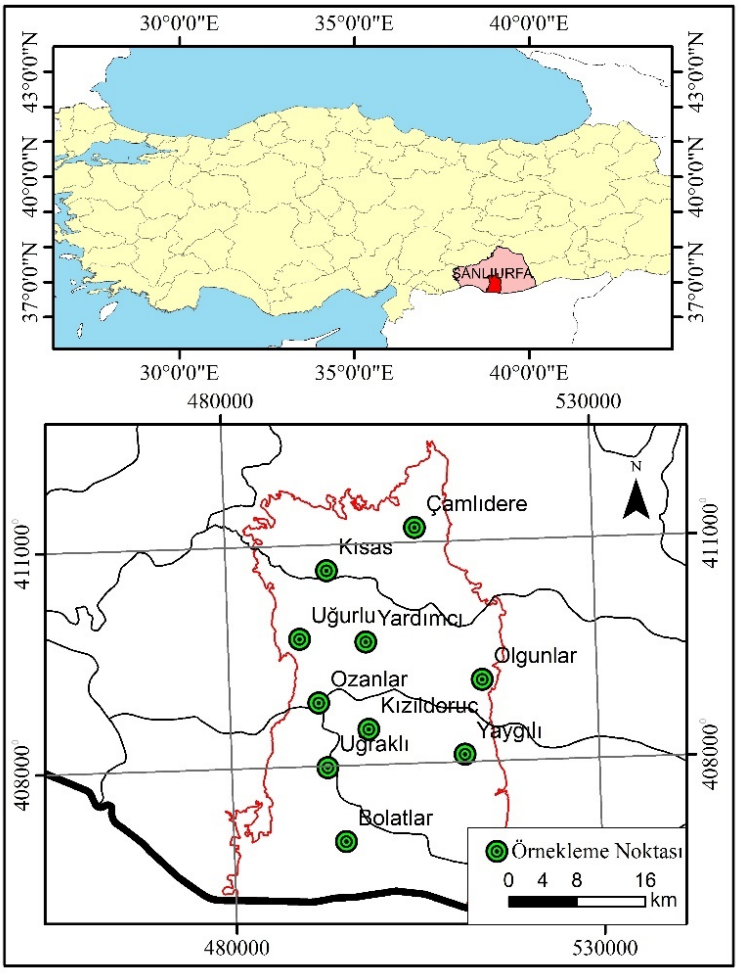
Nitrat içeren sentetik ve gerçek yeraltı suyuna ait çalışmaların laboratuvar ortamındaki hazırlama prosedürleri ve çalışma alanı ile ilgili bilgiler verilmiştir.

3.1.2.1. Sentetik su çalışmaları

Mevcut tez çalışmasında kullanılan tüm kimyasallar analitik dereceye sahiptir. Sentetik olarak hazırlanan nitrat çözeltilerinin pH'ını ayarlamak için hidroklorik asit (HCl) (%37) ve sodyum hidroksit (NaOH) kullanılmıştır. Çözeltilerin iletkenliğini ayarlamak için ise sodyum klorür (NaCl) kullanılmıştır. Sentetik nitrat çözeltilerinin hazırlanmasında nitrat standart solüsyonu (1000 mg/L) kullanılmıştır. Farklı konsantrasyonlardaki (50 mg/L, 250 mg/L ve 500 mg/L) çözeltileri hazırlarken hesaplanan oranlarda saf su eklenmiştir. Tüm kimyasallar Merck, Almanya'dan temin edilmiştir.

3.1.2.2. Gerçek yeraltı suyu çalışmaları

Harran Ovası, kuzeyde Urfa dağları, güneyde Türkiye-Suriye sınırı, doğuda Tektek dağları ve batıda Fatik dağları ile çevrilidir. Orta Doğu'nun en geniş yeraltı suyu kaynaklarına sahip ülkesi olan Türkiye'nin güneydoğusundaki en büyük sulama alanını oluşturmaktadır. Çalışma alanının konum haritası Şekil 3.2.'de gösterilmiştir. 36° 43' ve 37° 10' kuzey enlemleri ile 38° 47' ve 39° 10' doğu boylamları arasındadır.



Şekil 3.2. Harran Ovası çalışma alanı lokasyon haritası

Ovanın kuzey-güney uzunluğu 65 km olup, toplam alanı 225.000 ha'dır. Ovanın genel eğimi %0–2 olup, yükseltisi 450 ile 335 m arasındadır. Ova topografik yapısı itibariyle genellikle düz arazilerden oluşmaktadır. GAP (Güneydoğu Anadolu Projesi) Bölgesi'nin en geniş alanı olan Harran Ovası, 144.887 ha sulanabilir alana, 3700 km^2 drenaj alanına ve 1500 km^2 ova alanına sahiptir (Yeşilnacar ve ark., 2008). Ova yarı kurak bir iklim sergiler, haziran ve eylül ayları arasında neredeyse yağış görülmez. Yıllık ortalama yağış 284,2 mm, ortalama sıcaklık 18 °C ve buharlaşma 1848 mm'dir (Yeşilnacar ve Yenigün 2011).

3.1.3. Arsenik içeren sentetik ve gerçek yeraltı suyu çalışmaları

Arsenik içeren sentetik ve gerçek yeraltı suyuna ait çalışmaların laboratuvar ortamındaki hazırlama prosedürleri ve çalışma alanı ile ilgili bilgiler verilmiştir.

3.1.3.1. Sentetik su çalışmaları

Mevcut tez çalışmasında kullanılan tüm kimyasallar analitik dereceye sahiptir. Sentetik olarak hazırlanan arsenik çözeltilerinin pH'ını ayarlamak için hidroklorik asit (HCl) (%37) ve sodyum hidroksit (NaOH) kullanılmıştır. Çözeltilerin iletkenliğini ayarlamak için ise sodyum klorür (NaCl) kullanılmıştır. Sentetik arsenik çözeltilerinin hazırlanmasında arsenik standart solüsyonu (1000 mg/L) kullanılmıştır. Farklı konsantrasyonlardaki (7,5 mg/L, 15 mg/L ve 75 mg/L) çözeltileri hazırlarken hesaplanan oranlarda saf su eklenmiştir. Tüm kimyasallar Merck, Almanya'dan temin edilmiştir.

3.1.3.2. Gerçek yeraltı suyu çalışmaları

Karaali jeotermal alanı Harran Ovası sınırları içerisinde bulunan Yardımcı ilçesinin doğusunda yer alır (Şekil 3.3.). Karaali jeotermal sahası, Güneydoğu Anadolu Bölgesi'nde yer alan Şanlıurfa ilinin 45 km güneydoğusunda ve Akçakale grabeni içerisinde bulunan Karaali köyündedir. Karaali jeotermal sahasında 1993 yılından beri 15'i özel sektör, 17'si özel idare tarafından olmak üzere toplam 32 adet jeotermal arama amaçlı sondaj çalışması yapılmıştır. Bu çalışmalar sonucunda, 39–58 ºC arasında değişen sıcaklıklarda akışkan üretimi sağlanmıştır.



Şekil 3.3. Karaali jeotermal sahası çalışma alanı lokasyon haritası

3.2. Yöntem

Bu bölüm yedi alt başlıktan oluşmaktadır.

3.2.1. Elektrokoagülasyon prosesi için hesaplamalar ve kullanılan eşitlikler

Akım Yoğunluğu: Aşağıdaki denklem (3.1) ile akım yoğunluğu hesaplanmıştır.

$$J = \frac{I}{A} \tag{3.1}$$

Burada; J: Akım yoğunluğu, (A/m^2), I: Akım şiddeti, (Amper), A: Aktif anot yüzey alanı, (m^2)'dir.

Enerji Tüketimi: Harcanan elektrik enerjisi kiloWatt-saat (kWh) cinsinden denklem (3.2)'deki gibi hesaplanmıştır;

$$E = \frac{V \times I \times t}{\text{Reaktör çalışma hacmi}} \tag{3.2}$$

Burada; E: Elektrik enerjisi (kWh/m^3), V: voltaj, I: akım şiddeti (A), t: zaman (saat) olarak verilmiştir.

İşletme maliyeti: Mevcut ön ekonomik çalışmada, florür, nitrat ve arseniğin elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak sudan uzaklaştırılması için işletme maliyeti Türkiye piyasasının birim fiyatlarına (0,24 $/kWh elektrik) göre hesaplanmıştır. İşletme maliyeti, Acharya ve ark. (2021) tarafından bildirildiği üzere denklem (3.3) kullanılarak değerlendirilmiştir.

$$\text{İşletme maliyeti} = E \times \text{endüstriyel elektrik fiyatı} \quad (3.3)$$

Burada; işletme maliyeti ($/kWh), E: Elektrik enerjisi (kWh/m^3), endüstriyel elektrik fiyatı (0,24 $/kWh) olarak belirtilmiştir.

% Giderim: Kirleticilerin giderim yüzdesi denklem (3.4) ile hesaplanmıştır.

$$\text{Giderim (\%)} = \frac{C_i - C_0}{C_i} \times 100 \quad (3.4)$$

Burada; C_i: kirletici konsantrasyon değeri (mg/L), C_o: ilk kirletici konsantrasyon değeri (mg/L)'ni göstermektedir.

3.2.2. Deneysel süreç

Tüm deneysel çalışmalar 100 x 100 x 250 mm boyutlarında ve 1,5 L çalışma hacimli cam yapım reaktörde gerçekleştirilmiştir. Çalışmada kullanılan Al ve Fe plaka elektrotların boyutları sırasıyla 90 x 200 x 3 mm ve 96 x 180 x 1,5 mm'dir. Tez çalışmasında Al ve Fe elektrotların kullanıldığı EK prosesi ile sentetik olarak farklı konsantrasyonlarda hazırlanmış nitrat, florür ve arsenik giderim çalışmaları kesikli olarak işletilen bir reaktörde gerçekleştirilmiştir. Elektrokoagülasyonda çok sık kullanılan çözünmüş Fe elektrotların ortamda oluşturduğu Fe kompleksleridir. Sulu ortamda Fe^{+3}'nin oluşturduğu OH^- iyonları elektrotlardan çözünen Fe^{+3} iyonları ile birleşerek ortamın pH değerlerine göre kompleks oluşumlarını sağlamaktadır. Fe elektrotlar gibi elektrokoagülasyon prosesinde çözünmüş Al elektrotların sulu ortamda oluşturduğu hidroksil kompleksleri de çok sık kullanılmaktadır. Sudaki OH^- iyonları

elektrotlardan çözünen Al^{+3} iyonları ile birleşerek ortamın pH değerlerine göre kompleks oluşumlarına na yol açmaktadır. Fe^{+3} iyonlarının su arıtımında flokülasyon ajanı olarak avantajı Al^{+3}'e göre toksik etkisinin olmamasıdır. Her çalışma öncesi, elektrot yüzeylerindeki oksit tabakasının temizlenmesi için, sülfürik asit (H_2SO_4), hidroklorik asit (HCl) (%35) ve heksametilentetramin sulu çözeltisi (%2,8) ile karıştırılarak hazırlanmış bir temizleme çözeltisi içinde 2 dakika boyunca bekletilmiş ve sonrasında elektrotlar kurutularak reaktöre yerleştirilmiştir (Kobya ve ark., 2014). Elektrotların üzerinde herhangi bir kalıntı kalmaması için kullanım öncesi elektrotlar aseton ile silinmiştir. Akım ve voltaj kontrolü Rigol DP832A Programlanabilir 3 Kanal DC Güç Kaynağı ile sağlanmıştır. Monopolar bağlantı yapılan elektrotlar arası minimum mesafe 10 mm, maksimum mesafe 20 mm olarak belirlenmiştir. Karıştırma işlemi IKA RH Basic 2 marka manyetik karıştırıcı ile 250 rpm'de yapılmıştır. Elektrokoagülasyon işlemi sonunda numuneler 0.45 µ şırınga-filtreden süzülerek florür, nitrat ve arsenik tespiti için analiz edilmek üzere merkezi laboratuvara gönderilmiştir. Tüm işlemler üç paralelli gerçekleştirilmiştir. Kullanılan proses ve özellikleri Şekil 3.4.'te gösterildiği gibidir.



Şekil 3.4. Kesikli elektrokoagülasyon prosesi çalışmalarında kullanılan deney düzeneği

Reaktör çalışma süresi boyunca belirli aralıklarla alınan numunelerde pH, iletkenlik ve sıcaklık ölçümü standart metotlara göre yapılmıştır.

3.2.3. Kullanılan cihazlar ve analitik yöntemler

Perkin Elmer Optima 5300 DW Optik Emisyon (ICP-OES) - Hidrür Sistem cihazı, geniş ölçüm aralığına sahip olması sebebiyle numunelerdeki elementlerin miktarının tayin edilmesinde kullanılmaktadır. Çok sayıda örneğin hızlı bir şekilde ölçülebilmesine olanak tanımaktadır. Bu sistem ile; atıksular, içme suları, tarım ürünleri, bitki materyalleri, toprak, gübre ve gıda ürünlerinin analizi yapılabilmektedir. Bu çalışmada su numunelerindeki arsenik konsantrasyonu USEPA 200.8 standart yöntemine göre bu cihaz kullanılarak belirlenmiştir. Bu cihaz ile numunelerdeki Al, Fe ve As konsantrasyonları tespit edilmiştir.

Shimadzu HIC-20A İyon kromatografisi cihazı, iyonları ayırma ve tayin etmede iyon değiştirme reçinelerinin kullanıldığı bir metottur. Katyonları ayırmak için katyon değiştirme reçineleri, anyonları ayırmak için ise anyon değiştirme reçineler kullanılmaktadır. Katı bir maddenin yapısında bulunan iyonlar ile bu katı maddenin temaslı olduğu bir çözelti içindeki aynı cinste yüke sahip olan başka iyonlarla dengeye göre değiştirilmesi temeline dayanmaktadır. Kullanılan bu katı maddeler, çözelti ortamında çözünmeyen büyük moleküllü maddelerdir. Numunelerdeki anyon katyon (Ca^{+2}, Mg^{+2}, Na^{+}, K^{+}, Cl^{-}, SO_4^{-2}) analizlerinin yanı sıra nitrat ve florür konsantrasyonları da bu cihaz kullanılarak belirlenmiştir.

WTW 340I pH metre, su esaslı çözeltilerdeki hidrojen iyonu aktivitesini ölçen bir cihazdır. Çözeltinin asitliğini veya pH olarak ifade edilen bazikliğini göstermektedir. Numunelerdeki pH ve sıcaklık ölçümleri yapılmıştır.

HQ40D Hach Lange Dijital EC metre, elektriksel iletkenlik diğer adıyla elektriksel kondüktivite, suyun elektrik akımını iletebilme kapasitesini belirlemekte kullanılmaktadır. İletkenlik, doğal bir su kütlesinin genel sağlığını değerlendirmede faydalıdır. Numunelerdeki iletkenlik, TDS, tuzluluk gibi parametrelerin ölçümleri yapılmıştır.

Rigol DP832A Programlanabilir 3 Kanal DC Güç Kaynağı, yüksek performanslı, temiz çıkış gücüne sahip, çok sayıda analiz fonksiyonları olan ve farklı test gereksinimlerini karşılayabilmek için çok sayıda bağlantı portunu standart olarak bulunduran yüksek kaliteli bir doğru akım güç kaynağıdır. Elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası etkileşimin sağlanabilmesi ve arıtımın gerçekleşebilmesi için akım ve voltaj ayarı yapılmıştır.

IKA RH Basic 2 Model Manyetik Karıştırıcı, cam reaktörde gerçekleşen EK prosesi süresince karıştırma işlemleri manyetik balık kullanılarak bu cihaz ile sağlanmıştır. 0 ila 1200 rpm arasında manyetik karıştırıcı karıştırma hızı, reaktörde üniform konsantrasyonun korunması için kullanılmıştır.

3.2.4. Yapılan analizler

Elektrokoagülasyon çalışmalarında kullanılan proseslerde, çalışma süresince analizi yapılan parametreler: Ca^{+2}, Mg^{+2}, Na^{+}, K^{+}, Cl^{-}, SO_4^{-2}, HCO_3^{-}, NO_3^{-}, Al, Fe, F^{-}, pH, iletkenlik ve sıcaklıktır. Tüm ölçümler, Amerikan Halk Sağlığı Derneği tarafından önerildiği gibi, Standart Yöntemler 1999'a (AphaAwwa-Wef, 1999) uygun olarak gerçekleştirilmiştir. Numuneler polipropilen kaplarda saklanmıştır. WTW 340I pH metre ve HQ40D Hach Lange Dijital Multimetre seti ile arazide ve laboratuvarda su numunelerinin pH, elektriksel iletkenlik (EC) ve sıcaklık değerleri ölçülmüştür.

3.2.5. Çalışma koşulları

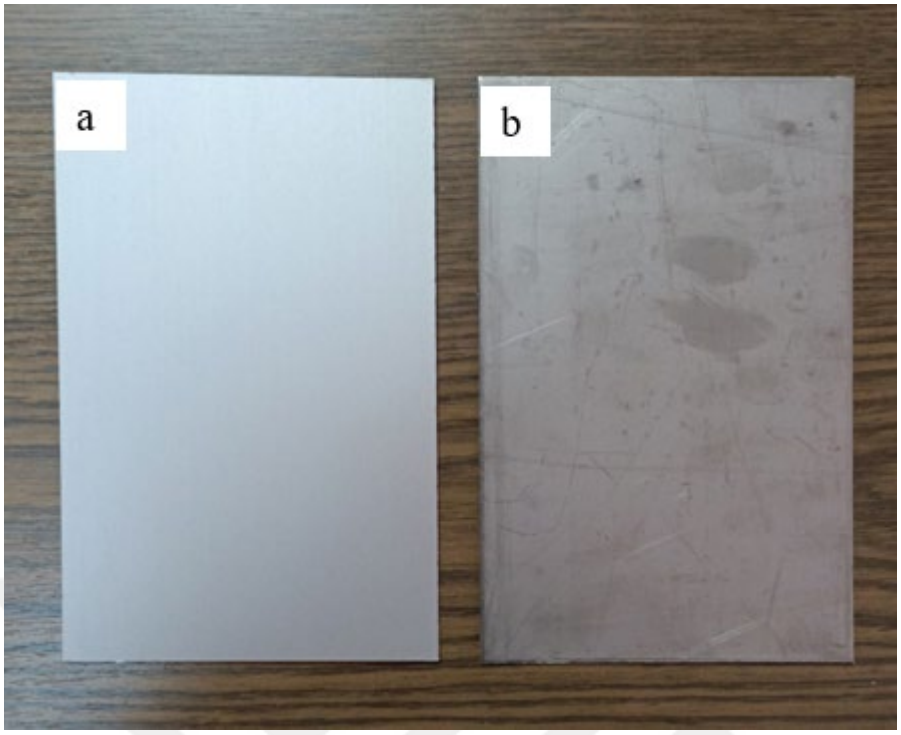
Yapılan araştırmalarda çeşitli çalışma parametrelerinin elektrokoagülasyon prosesi performansını etkilediği bulunmuştur. Ayrıca kirleticilerin giderim veriminin belirlenmesinde pH değişiminin etkisi, elektrot materyalinin etkisi, elektrotlar arası mesafenin etkisi, iletkenlik değişiminin etkisi, kirletici konsantrasyonunun etkisi, akım değişiminin etkisi, voltaj değişiminin etkisi, akım yoğunluğunun etkisi incelenmiştir.

3.2.5.1. pH değişiminin etkisi

Elektrokoagülasyon prosesinde yeraltı suyu/atıksulardaki kirleticileri gidermek için anahtar parametrelerden biri pH'tır. pH, esas olarak pıhtılaştırıcı ajanların ve kirleticilerin türleşmesini ve sonuç olarak giderim mekanizmasını etkileyen önemli bir faktördür. Alkali koşullar oluşturularak ve pH değiştirilerek, kirleticilerin uzaklaştırılmasının etkinliğini artıran metal hidroksitler üretilmektedir. Elektrokoagülasyon prosesi sırasında, uygulanan akım yoğunluğu arttıkça pH'ın da zamanla arttığı gözlenmiştir. Bu, temel olarak, kimyasal ikame çıkarma mekanizmasına baskın geldiğinde, pıhtılaştırıcı türlerden hidroksit iyonlarının salınmasıyla ilgilidir (Kumar ve ark., 2004; Zhu ve ark., 2007). Tez çalışması kapsamında florür giderim çalışmalarında kullanılan başlangıç pH değerleri: 3, 7,5 ve 11 olarak belirlenmiştir. Nitrat giderim çalışmalarında kullanılan başlangıç pH değerleri: 3, 6 ve 11 olarak belirlenmiştir. Arsenik giderim çalışmalarında ise kullanılan başlangıç pH değerleri: 4,5, 7 ve 11 olarak belirlenmiştir.

3.2.5.2. Elektrot materyalinin etkisi

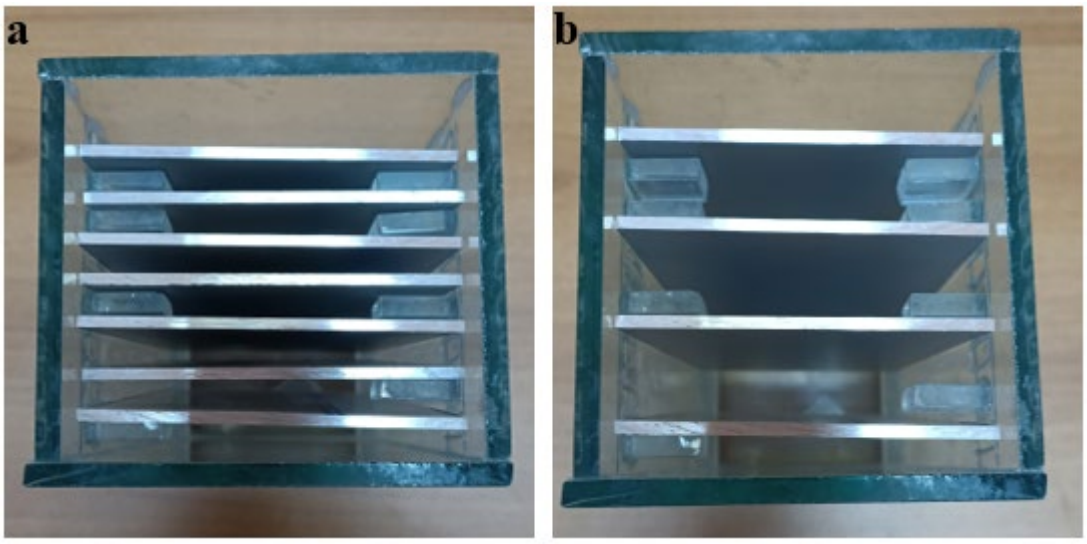
Elektrot malzemesi, kirletici giderim verimliliğinin kontrolünde en önemli parametrelerden biridir. Elektrot malzemesinin seçimi, kirli suyun inorganik kirletici ve fizikokimyasal özelliklerine dayanmaktadır. Alüminyum, demir ve çinko, kirleticilerin elektrokoagülasyon prosesiyle sulardan giderilmesi için yaygın olarak kullanılan metal elektrotlardan bazılarıdır (Chen, 2004). Demir veya alüminyumun plaka, ağ, çubuk ve top şeklindeki metal anotları, farklı çalışma koşullarında top şeklindeki elektrotlar tarafından kaydedilen %75–100'e varan yüksek giderim verimliliği ile yaygın olarak kullanılmaktadır (Sık ve ark., 2015). Artıkların daha ucuz maliyeti ve daha az toksisitesi, Fe anotlarını elektrokoagülasyon prosesi için diğer elektrotlarla karşılaştırıldığında daha uygun hale getirmektedir. Ayrıca Fe-hidroksil türlerinin oluşumu nedeniyle Fe anotları geniş bir pH aralığında kullanılabilmektedir. Çalışmada kullanılan Al ve Fe elektrotlar Şekil 3.5.'te sunulmuştur.



Şekil 3.5. Elektrokoagülasyon prosesinde kullanılan elektrot türleri: a. alüminyum elektrot b. demir elektrot

3.2.5.3. Elektrotlar arası mesafenin etkisi

Elektrotlar arasındaki mesafe ve yüzey alanı, işletme maliyetlerinin optimizasyonunu doğrudan etkileyen önemli parametrelerdir. Lokal konsantrasyon ve elektrostatik çekimdeki azalmalar giderimin azalmasının sebepleridir. Atık su yüksek bir elektrik iletkenliğine sahip olduğunda ve enerji tüketimini azaltmak için sabit bir akım yoğunluğu kullanıldığında, elektrotlar arasındaki mesafe artırılmalıdır. Tersine, atık zayıf bir elektrik iletkenliğine sahip olduğunda, güç tüketimini azaltmak için elektrotlar arasındaki mesafe azaltılmalıdır. İşletme maliyeti, elektrotlar arası mesafenin artmasıyla birlikte doğrusal olarak artış göstermektedir. Elektrotlar arasındaki mesafe arttıkça akım azalmakta, dolayısıyla sabit bir akım yoğunluğunu korumak için voltajın yükseltilmesi gerekmektedir. Bu durum işletme maliyetini daha da artırmaktadır (Thakur ve Mondal, 2017). Çalışma kapsamında elektrotlar arası mesafenin etkisini belirleyebilmek için 10 mm ve 20 mm aralıklarında çalışılmıştır (Şekil 3.6.).



Şekil 3.6. Elektrokoagülasyon prosesinde kullanılan elektrotlar arası mesafe: a. 10 mm b. 20 mm

3.2.5.4. İletkenlik değişiminin etkisi

Yeraltı suyu/atıksu genellikle yüksek elektrik iletkenliği göstermektedir. Bununla birlikte, çalışma parametrelerini optimize etmek için sentetik su kullanılarak gerçekleştirilen elektrokoagülasyon testleri, genellikle elektrolitik iletkenliği artırmak için destekleyici bir elektrolitin eklenmesini içermektedir. Bu, oksit tabakası oluşumunu önlemeye, omik düşüşü azaltmaya ve sonuç olarak enerji tüketimini ve işlem maliyetini azaltan güç yoğunluğunu artırmaya yardımcı olmaktadır. NaCl, KCl, NaClO, Na_2SO_4 ve $NaHCO_3$ EK prosesinde kullanılan en yaygın destekleyici elektrolitlerdir. Bununla birlikte, elektrik akımının geçişini kolaylaştırmak için klorür iyonlarının eklenmesinin tercih edildiği iyi bilinmektedir (Dolati ve ark., 2017). Bu çalışma kapsamında suyun iletkenliğini ayarlamak için NaCl elektroliti kullanılmıştır. Florür giderim çalışmalarında başlangıç iletkenlik değerleri 50 µS/cm, 500 µS/cm ve 1000 µS/cm, nitrat giderim çalışmalarında başlangıç iletkenlik değerleri 100 µS/cm, 500 µS/cm ve 1000 µS/cm, arsenik giderim çalışmalarında ise başlangıç iletkenlik değerleri 170 µS/cm, 500 µS/cm ve 1000 µS/cm olarak ayarlanmıştır. Suyun iletkenlik değeri arttıkça kirleticilerinde sudan giderilme yüzdesi artış göstermektedir. Yüksek iletkenliğe sahip çözeltilerde daha az elektrik enerjisi tüketimi nedeniyle işletme maliyeti azalmaktadır.

3.2.5.5. Kirletici konsantrasyonunun etkisi

Elektrokoagülasyon prosesini etkileyen önemli parametrelerden biri de sudaki kirletici konsantrasyonudur. Prosesin limitlerini değerlendirmek için, kirletici konsantrasyonunun elektrokimyasal işlemin verimliliği üzerindeki etkisini incelemek önemlidir. Yüksek kirletici konsantrasyonlarında çalışırken, belirli bir çalışma süresi içinde tüm kirleticilerin adsorbe edilmesi mümkün değildir ve bunun için daha fazla zaman gerekmektedir. Bu da ekstra bir işletim maliyetine sebep olmaktadır. Bu nedenle başlangıç kirletici konsantrasyonlarının yüksek olması giderim etkinliğinde azalmaya neden olmaktadır. Bu durum, artan kirletici konsantrasyonunun anot adsorpsiyon bölgelerini hızla bloke etmesine ve daha fazla kirletici iyonunu adsorbe etme yeteneğinin azalmasına bağlanabilmektedir (Amarine ve ark., 2020). Çalışma kapsamında florür giderim çalışmalarında başlangıç florür değerleri 5 mg/L, 10 mg/L ve 15 mg/L, nitrat giderim çalışmalarında 50 mg/L, 250 mg/L ve 500 mg/L, arsenik giderim çalışmalarında ise 7,5 mg/L, 15 mg/L ve 75 mg/L konsantrasyonlarda çalışılmıştır.

3.2.5.6. Akım değişiminin etkisi

Elektrik akımı, kabarcık boyutunu ve topak üretimini düzenlediği için kirleticilerin giderimi üzerinde etkilidir. Genel olarak, doğru akım (DC), elektrokoagülasyon prosesinde daha çok kullanılan bir elektrik akımı türüdür. Bununla birlikte, anodik yüzey, pasivasyon etkileri üreten korozyon olayını destekleyen oksidasyon reaksiyonları nedeniyle kararlı bir oksit tabakalarının oluşumu ile izole edilebilmektedir. Kurban anotun pasivasyonu omik direnci (R) artırmakta ve sonuç olarak hücre potansiyeli yükselmektedir. Bu durum işletme maliyetlerinin artmasına neden olurken pasivasyon elektrokoagülasyon verimini önemli ölçüde azaltmaktadır. Alternatif akımın (AC) kullanımı bir alternatif olarak düşünülebilir çünkü sürekli polarite değişiklikleri pasivasyon katmanlarının oluşumunu önlemekte veya azaltmaktadır. Böylece kurban anotların çalışma ömrü de uzamış olmaktadır (Garcia-Segura ve ark., 2017). Tez çalışması kapsamında tüm kirletici giderimlerinde 1 A, 2 A ve 3 A akım değerlerinde çalışmalar yürütülmüştür.

3.2.5.7. Voltaj değişiminin etkisi

Voltaj, elektrokoagülasyon sürecindeki kirleticilerin ortadan kaldırılması için yaygın olarak önemli bir faktör olarak kabul edilmektedir. Voltaj, kurban elektrotların çözünme miktarını belirleyebilmekte ve metal hidroksit topaklarının oluşumunu ve bunun sonucunda kirleticilerin uzaklaştırma verimliliğini etkileyebilmektedir. Proseste uygulanan voltajın artmasıyla birlikte giderim verimlerinin de arttığı belirlenmiştir. Faraday yasasına göre, voltajın artması kurban anodundan daha fazla katyonun çözülmesine katkıda bulunabilmektedir. Katottaki elektrolitik reaksiyon, hidroksil grubunun (OH^-) konsantrasyonunu arttırarak çözeltideki yüklü parçacıkların itici gücünü arttırmakta ve ardından kirletici adsorpsiyonunu kolaylaştırmak için daha fazla metal hidroksit topaklarının oluşumunu hızlandırmaktadır (Liu ve ark., 2018). Tez çalışması kapsamında tüm kirletici giderimlerinde 5 V, 10 V ve 15 V akım değerlerinde çalışmalar yürütülmüştür.

3.2.5.8. Akım yoğunluğunun etkisi

Elektrokoagülasyon prosesindeki bir sonraki etkili parametre, elektrokoagülasyon prosesinin verimliliğini etkileyebilecek pıhtılaştırıcı dozaj oranını, kabarcık üretim hızını ve flokların boyutunu ve büyümesini belirlediği için akım yoğunluğudur. Uygulanan akım yoğunluğu, çözeltide meydana gelen elektrokimyasal reaksiyonları (örneğin; elektro çözünme hızı, gaz çıkışı, elektro flotasyon, su reaksiyonları vb.) ve bunların kinetiklerini kontrol etmektedir. Sonuç olarak akım yoğunluğu, uygulanan potansiyelle birlikte elektrokimyasal işlemin çalışmasıyla ilişkili enerji tüketimini tanımlamaktadır. Akım yoğunluğu arttıkça, metal hidroksit topaklarıyla birlikte anodun çözünmesi artmakta, bu da atık sudan kirleticilerin uzaklaştırılmasında verimin artmasını sağlamaktadır (Shahedi ve ark., 2020). Tez çalışması kapsamında tüm kirletici giderimlerinde 2,5 A/m^2, 5 A/m^2 ve 10 A/m^2 akım yoğunluğu değerlerinde çalışmalar yürütülmüştür. Akım yoğunluğunu hesaplamak için kullanılan eşitlikler Bölüm 3.2.1'de açıklanmıştır.

3.2.5.9. Enerji tüketimi

Çalışmanın bu bölümünün amacı, laboratuvar ölçekli bir elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak sulardan florür, nitrat ve arsenik gideriminin işletme maliyetini tahmin etmek için izlenen yaklaşımı açıklamaktır. Pilot ölçekli bir elektrokoagülasyon prosesinin işletme maliyetleri, inşaat ve ekipman maliyetleri gibi sabit maliyetleri ve enerji, kimyasallar, çamur arıtma, işçilik ve bakım maliyetlerini içermektedir. Bununla birlikte, laboratuvar ölçekli bir elektrokoagülasyon prosesinin işletme maliyetleri yalnızca enerji, kimyasallar ve elektrot malzemesi maliyetini kapsamaktadır (Kobya ve ark., 2009). Tez çalışması kapsamında florür giderim çalışmalarında enerji tüketimi Al elektrot kullanılan proseste 0,54 kWh/m^3, Fe elektrot kullanılan proseste 0,71 kWh/m^3, nitrat giderim çalışmalarında enerji tüketimi Al elektrot kullanılan proseste 2,07 kWh/m^3, Fe elektrot kullanılan proseste 2,91 kWh/m^3, arsenik giderim çalışmalarında enerji tüketimi ise Al elektrot kullanılan proseste 0,46 kWh/m^3, Fe elektrot kullanılan proseste 0,51 kWh/m^3 olarak hesaplanmıştır. Enerji tüketimini hesaplamak için kullanılan eşitlikler Bölüm 3.2.1'de açıklanmıştır.

3.2.6. Gerçek yeraltı suyu örnekleme prosedürü

Gerçek yeraltı suyu numuneleri Sarım-Karataş bölgesinde genel dağıtım kuyusundan (florür çalışması için), Harran Ovası'nda 10 adet örnekleme noktası içerisinde noktası içerisinde nitrat değerlerinin en yüksek olduğu Uğurlu kuyusundan (nitrat çalışması için) ve Karaali jeotermal sahasından (arsenik çalışması için) su numuneleri toplanmıştır. Örnekleme kuyularına ait EC, pH ve sıcaklık değerleri portatif cihaz ile yerinde tespit edilmiştir. Diğer anyon ve katyon analizleri Harran Üniversitesi merkezi laboratuvarında hizmet alımı ile yapılmıştır.

Arazide çalışmalarında numuneler aşağıda verilen yönerge, tebliğ ve standartlara göre alınmıştır (Kahraman ve ark., 2016):

- D4448-01 Yeraltı suyu izleme kuyularından numune almak için kullanılan standart kılavuz (ASTM, 2001).

- D6517-00 Yeraltı suyu numunelerinin sahada muhafazası için kullanılan standart kılavuz (ASTM, 2005).

- TS 5090 EN 25667-2/Nisan 1997, Su Kalitesi Numune Alma Bölüm 2: Numune Alma Teknikleri Kılavuzu (TS, 1997a).

- TS 5106 ISO 5667-3/Nisan 1997, Su Kalitesi Numune Alma Bölüm 3: Numunelerin Muhafaza ve Taşınma Kuralları (TS, 1997b).

- Numune Alma Kılavuzu 2004-1.

- Su Kirliliği Kontrolü Yönetmeliği Numune Alma ve Analiz Metotları Tebliği.

3.2.7. Yeraltı suyunun hidrokimyasal sınıflandırması

Çeşitli diyagramlar kullanılarak hidrojeokimyasal değerlendirmeler yapılmıştır. Bunlar arasında Piper diyagramı, özellikle çalışma alanındaki yeraltı suyunun hidrojeokimyasal fasiyeslerini ve ana iyon bolluğunun sırasını araştırmak ve açıklamak için kullanılmıştır. Bir baklava ve iki üçgenden oluşan Piper diyagramı, yaygın olarak kullanılan bir hidrokimyasal sınıflandırma yöntemidir (Piper, 1944); Gao ve ark., 2019).

Schoeller diyagramı, içme suyu kalitesini belirlemek için kullanılan klasik bir prosedürdür. Bu yöntem, tek bir grafikte çeşitli parametre konsantrasyonlarını ayırt eder ve parametrelerin kontrastını sağlar (Babanezhad ve ark., 2018)

4. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA

Bu bölüm, elektrokoagülasyon yöntemi ile florür gideriminde optimum şartların araştırılması, elektrokoagülasyon yöntemi ile nitrat gideriminde optimum şartların araştırılması ve elektrokoagülasyon yöntemi ile arsenik gideriminde optimum şartların araştırılması olmak üzere üç alt başlıktan oluşmaktadır.

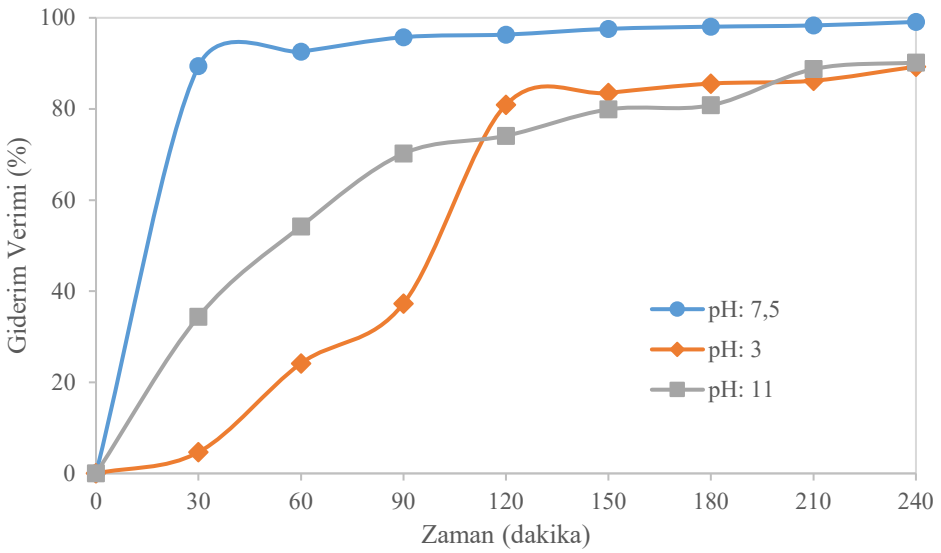
4.1. Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Sulardan Florür Gideriminde Optimum Şartların Araştırılması

Bu bölümde Al ve Fe elektrotlar kullanılarak bir elektrokoagülasyon prosesi kurulmuş ve florür giderimi üzerine çalışmalar yapılmıştır. Bu çalışmalar giderim veriminin belirlenmesinde pH değişiminin etkisi, elektrot materyalinin etkisi, elektrotlar arası mesafenin etkisi, iletkenlik değişiminin etkisi, kirletici konsantrasyonunun etkisi, akım değişiminin etkisi, voltaj değişiminin etkisi, akım yoğunluğunun etkisi, enerji tüketimi hesaplarını kapsamaktadır. Ayrıca gerçek yeraltı su numunesi ile yapılan giderim çalışmasını da içermektedir.

4.1.1. pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken pH'ın giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için diğer parametreler (voltaj, amper, sıcaklık, iletkenlik vs.) sabit tutularak sadece pH parametresi değiştirilmiştir. Bu durumda Al ve Fe elektrotlar kullanılarak uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V olmak üzere doğal (hazırlanan sentetik çözeltinin pH metre ile ölçülen değeri) pH: 7,5, pH: 3 ve pH: 11'de çalışılmıştır. Proses 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Hem Al hem de Fe elektrot kullanılarak aynı şartlar altında kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde Al elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimleri, Fe elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimlerinden nispeten daha

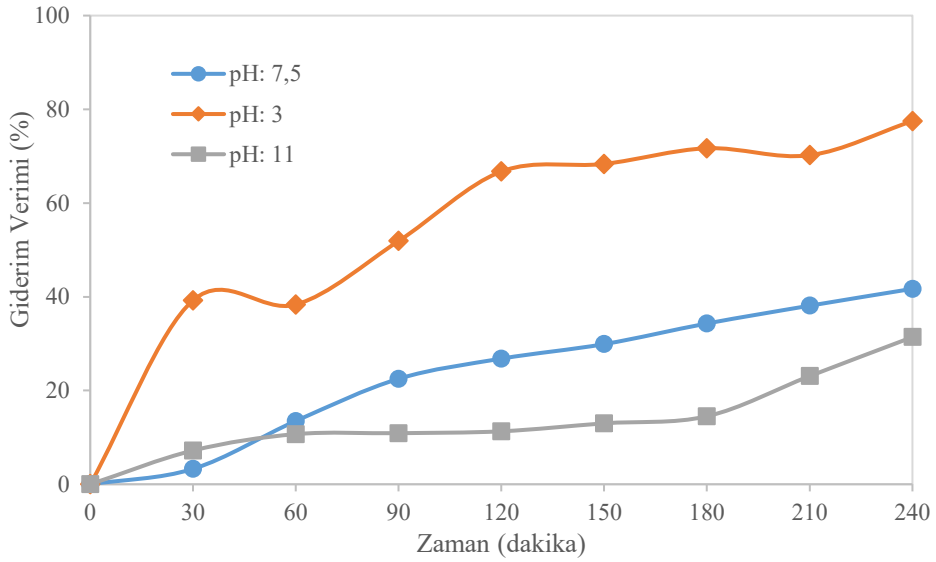
yüksek bulunmuştur (Şekil 4.1. ve Şekil 4.2.). Al elektrotun kullanıldığı proses giderim verimleri pH: 3, 7,5 ve 11 için sırasıyla %89,3, %99,1, %90,2 iken Fe elektrotun kullanıldığı proses giderim verimleri sırasıyla pH: 3, 7,5 ve 11 için sırasıyla %77,5, %41,7, %31,4 olmuştur. pH'ın elektrokoagülasyon prosesinin performansını etkileyen önemli bir işletme faktörü olduğu gözlemlenmiştir. Al elektrot kullanılarak yapılan çalışmada nötr pH'taki giderim verimi diğerlerinden nispeten daha fazladır.



Şekil 4.1. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH'ının giderim verimine etkisi (başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Emamjomeh ve Sivakumar (2009)'un yapmış oldukları bir çalışmada nihai pH 8'den fazla olduğunda florür giderme veriminin %90'dan %75'e düştüğü görülmüştür. Bu durum yüksek pH'ta çözünür AlO_2 oluşumuna bağlanabilir ancak florür gideriminde kullanışlı değildir. Ün ve ark. (2013), florürün giderim etkinliğinin ilk pH 4'ten 6'ya yükseldiğinde arttığını gözlemlemişlerdir. İlk pH 6'dan 8'e yükseldiğinde, florürün giderim etkinliğinin azaldığını görmüşlerdir. En yüksek giderim oranları (~94,2), ilk pH 6 olduğunda elde edilmiştir. Burada alüminyum veya demir elektrotun çözeltinin pH'ına bağlı olarak farklı türler oluşturabileceği sonucuna varılabilir. Zhao ve ark. (2009) polimerik alüminyum türlerinin farklı pH'larda oluşumu ve ayrışmasını ESI kütle spektrometrisi kullanılarak incelenmiştir. $Al(OH)_3$'ün amorf topaklarının, pH 6,4'te polimerizasyon ve ayrışmanın son ürünü olduğunu bulmuşlardır. Gong ve

ark. (2013), 4–9 pH aralığında florür türlerinin dağılımını ve florür giderimini araştırmıştır. En iyi florür giderimini pH 7'de elde etmişlerdir. Benzer şekilde florür giderimi için en uygun pH aralığı Drouiche ve ark. (2012) tarafından 6–7, Zhu ve ark. (2007) tarafından 5,5–6,5 olarak ve Vasudevan ve ark. (2011) tarafından 7 olarak belirlenmiştir. Deneysel sonuçlar defloridasyon işleminin 6 ile 8 arasında değişen nihai pH için daha verimli olduğunu göstermiştir. Tez çalışmasının verileriyle örtüşmektedir.

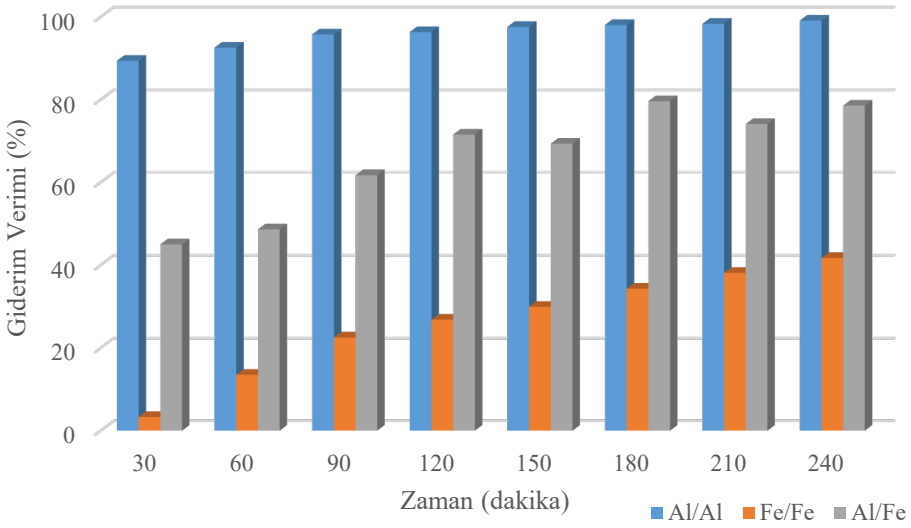


Şekil 4.2. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH'ının giderim verimine etkisi (başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

4.1.2. Elektrot materyalinin giderim verimi üzerindeki etkisi

Hem Al hem de Fe elektrot kullanılarak aynı şartlar altında kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde Al elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimleri, Fe elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimlerinden daha yüksektir. Aynı koşullarda (1 A–5 V, doğal pH) Fe elektrot kullanılarak işletilen proseste giderim verimi %41,7 iken, Al elektrot kullanılarak işletilen proseste giderim verimi %99,1 olarak tespit edilmiştir. Bu durum, işletim sırasında suya geçen Al^{+3} iyonlarının sudaki

hedef kirletici olan florür iyonları ile tepkimeye girip bileşik oluşturarak giderim veriminin artmasına neden olduğu şeklinde açıklanabilir. Aynı koşullar altında Al–Fe kombinasyonu yapılarak işletilen proseste giderim verimi %85,88 olarak ölçülmüştür (Şekil 4.3.).



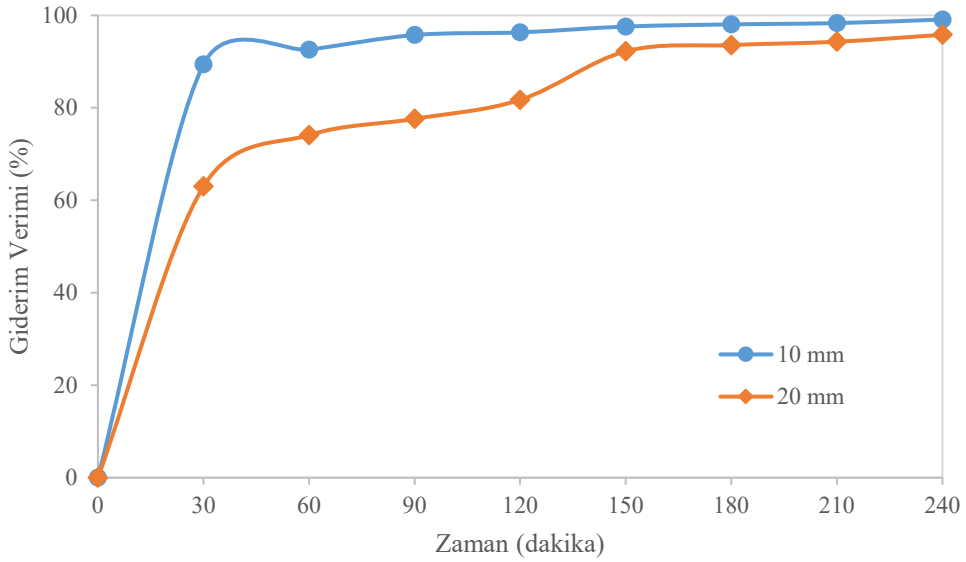
Şekil 4.3. Kullanılan elektrot materyalinin (Al/Al, Fe/Fe ve Al/Fe) elektrokoagülasyon prosesi giderim verimi üzerine etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Un ve ark. (2013)'ün yaptıkları çalışmada demir elektrot kullanılan elektrokoagülasyon prosesinde florür giderimi alüminyum elektrot kullanılana göre daha düşük bulunmuştur. Alüminyum elektrotları ile %94,2'lik bir giderme verimliliği elde edilirken, demir elektrotlar ile %83,6'lık bir giderme verimliliği elde edilmiştir. Demir elektrotlar söz konusu olduğunda, tatmin edici bir nihai florür konsantrasyonu elde edilebilir, böylece arıtılmış su içme amacıyla kullanılabilir. Tezcan ve ark. (2010)'un florür giderimi için demir elektrotun kullanıldığı bir diğer çalışmada maksimum giderim verimliliği %85,9 olmuştur. Tez çalışmasıyla benzer şekilde alüminyum elektrot kullanılan çalışmalarda giderim verimleri daha yüksek olmuştur.

4.1.3. Elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için optimum şartlarda çalışılmıştır. Bu durumda

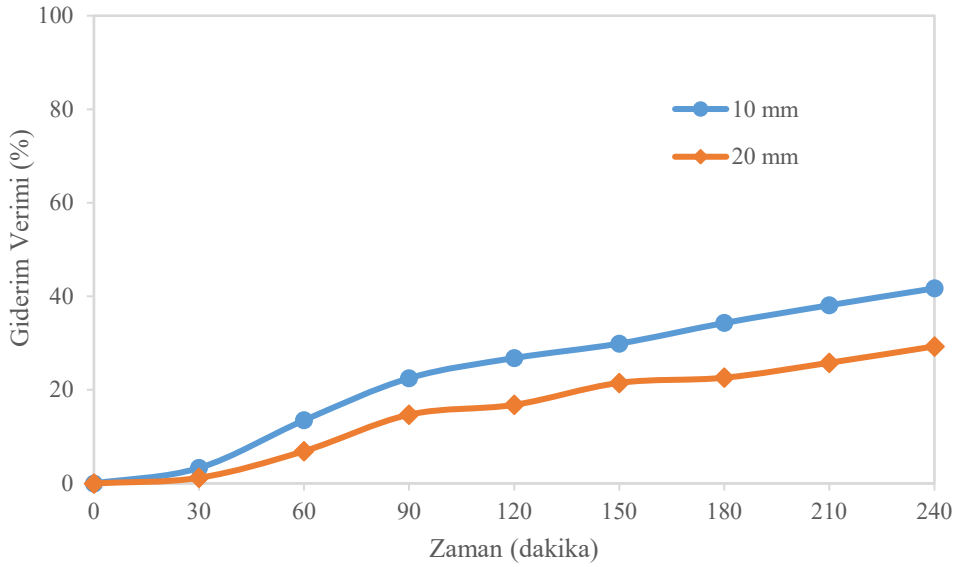
proses, ayrı ayrı elektrotlar arası mesafe 10 mm (7 adet elektrot) ve 20 mm (4 adet elektrot) olacak şekilde 1 A akım, 5 V voltaj değerinde ve doğal pH'da 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde elektrotlar arası mesafe arttıkça giderim verimi azalmıştır. Al elektrot için giderim verimleri elektrotların arasındaki 10 mm ve 20 mm'lik mesafe için sırasıyla %99,1 ve %95,8 olarak hesaplanmıştır (Şekil 4.4.). Aynı işletim şartları altında Fe elektrotlar ile yapılan giderim çalışmaları sonuçları da Al elektrot ile benzer şekilde elektrotlar arası mesafenin artmasıyla azalma göstermiştir. Fe elektrot için giderim verimleri elektrotların arasındaki 10 mm ve 20 mm'lik mesafe için sırasıyla %41,7 ve %29,3 olarak hesaplanmıştır (Şekil 4.5.).



Şekil 4.4. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Araştırmacılar (Hashim ve ark., 2017) elektrokoagülasyon prosesinde giderim performansının elektrotlar arası mesafeden büyük ölçüde etkilendiğinin altını çizmişlerdir. Aayef ve ark. (2021)'in yaptıkları çalışmada elektrot aralığının (5 ila 15 mm) elektrokoagülasyon prosesinin giderim performansı üzerindeki etkisini izlemişlerdir. Elektrotlar arası mesafenin artmasıyla florürün sudan giderilme verimliliğinin olumsuz yönde etkilendiği sonucuna varmışlardır. Araştırmacılar, florür

giderme verimliliğindeki değişikliği anotlar ve katotlar arasındaki elektrik direncine bağlamışlardır. Nispeten uzak bir mesafede, katotların etrafındaki pasif tabakayı genişleten ve elektrokoagülasyon yöntemindeki florürün genel giderim etkinliğini en aza indiren elektrik direnci olduğunu belirtmişlerdir (Abdulhadi ve ark., 2019).

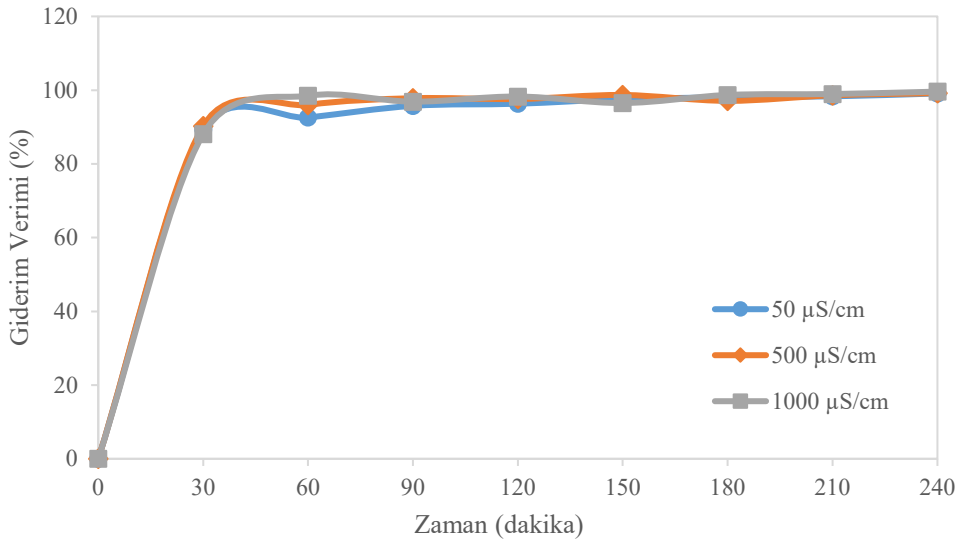


Şekil 4.5. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

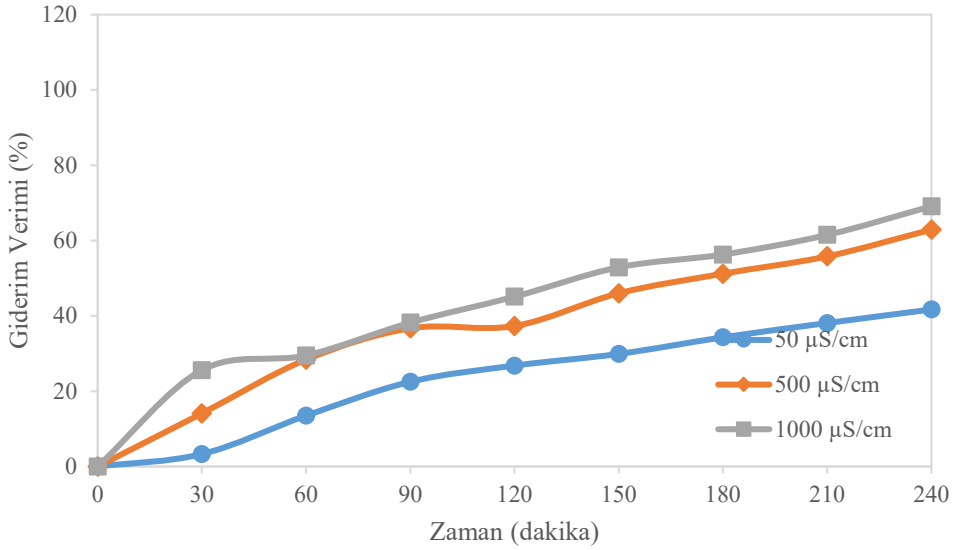
4.1.4. İletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için diğer parametreler (voltaj, amper, sıcaklık, pH vs.) sabit tutularak sadece iletkenlik değişkeni çalışılmıştır. Bu durumda Al elektrotlar kullanılarak 1 A akım ve 5 V voltaj uygulanarak çözeltinin doğal iletkenlik değerinde (50 µS/cm), daha sonra da NaCl ilavesiyle ayarlanan 500 µS/cm ve 1000 µS/cm'de çalışılmıştır. Proses 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde çözeltinin iletkenlik değeri ile giderim verimi arasında doğru orantı olduğu tespit edilmiştir (Şekil 4.6.). Fe elektrot kullanılarak aynı işletim şartlarında çalıştırılan elektrokoagülasyon prosesinde de sentetik çözeltinin iletkenliği arttıkça giderim veriminin de arttığı tespit edilmiştir

(Şekil 4.7.). Sonuç olarak, çözeltinin iletkenlik değeri arttıkça giderim veriminin de arttığı görülmüştür.



Şekil 4.6. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)



Şekil 4.7. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

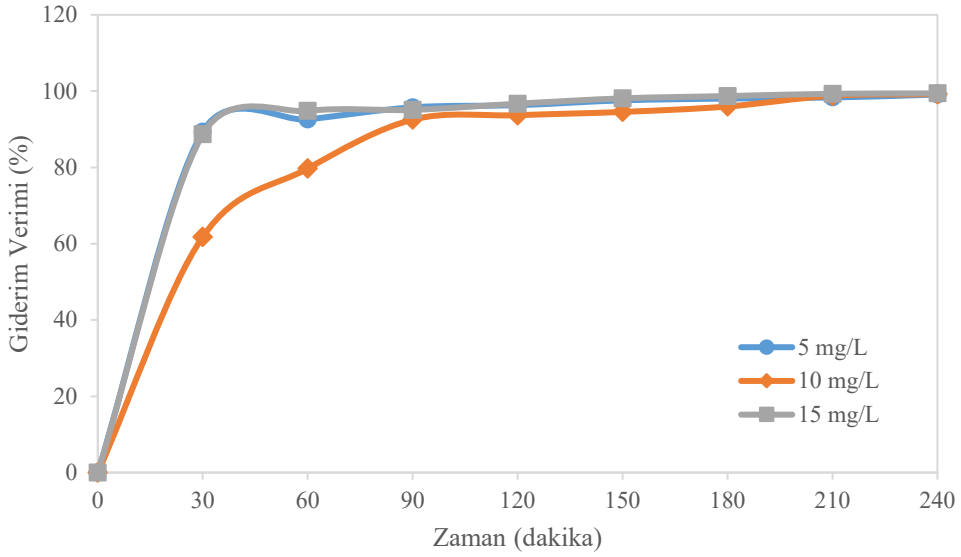
Şekillerden görüldüğü üzere proseste Suyun elektriği iletme özelliği arttıkça giderim verimi de artmıştır. Al elektrot kullanılan proseste 50 µS/cm, 500 µS/cm ve 1000 µS/cm'de florür giderim verimleri sırasıyla % 99,1, %99,2, %99,6, Fe elektrot kullanılan proseste 50 µS/cm, 500 µS/cm ve 1000 µS/cm'de florür giderim verimleri sırasıyla %41,7, %62,9 ve %69,1 olmuştur.

Grich ve ark. (2019) tarafından yapılan çalışmada benzer şekilde daha yüksek sodyum klorür içeriği üzerine çözelti iletkenliğinin arttırılması çalışmada kullanılan iki su türü için %90 florür giderim verimiyle sonuçlanmıştır. Drouiche ve ark. (2009)'un yaptıkları çalışmada destekleyici elektrolit etkisi NaCl (0, 50 mg/L ve 100 mg/L) kullanılarak incelenmiştir. Florür konsantrasyonunun destekleyici elektrolit dozuna bağımlılığını göstermiştir. NaCl ilavesinin iyon giderimini net olarak arttırdığı söylenebilir. Sonuçlar, çıkış suyunun tuzluluğunun 0 mg/L'den 100 mg/L'ye yükseltildiğinde, florür miktarının 13,08 mg/L'den 10,8 mg/L'ye düştüğünü göstermiştir. Benzer sonuçlar Modirshahla ve ark. (2007) ve Daneshvar ve ark. (2003) tarafından NaCl konsantrasyonundaki bir artışın kirletici giderme verimliliğinde bir artışa yol açtığı bulunmuştur. Defloridasyon verimliliğinde görülen artış, muhtemelen klorür iyonlarının varlığından dolayı elektrokoagülasyon elektrodundaki "çukur korozyonu" olgusuna bağlanabilir. Ayrıca tuz konsantrasyonunu artırmanın diğer bir faydası da suyun elektriksel iletkenliğini yükselterek uygulanan aynı potansiyel altında devreden daha fazla akımın geçmesine neden olmasıdır.

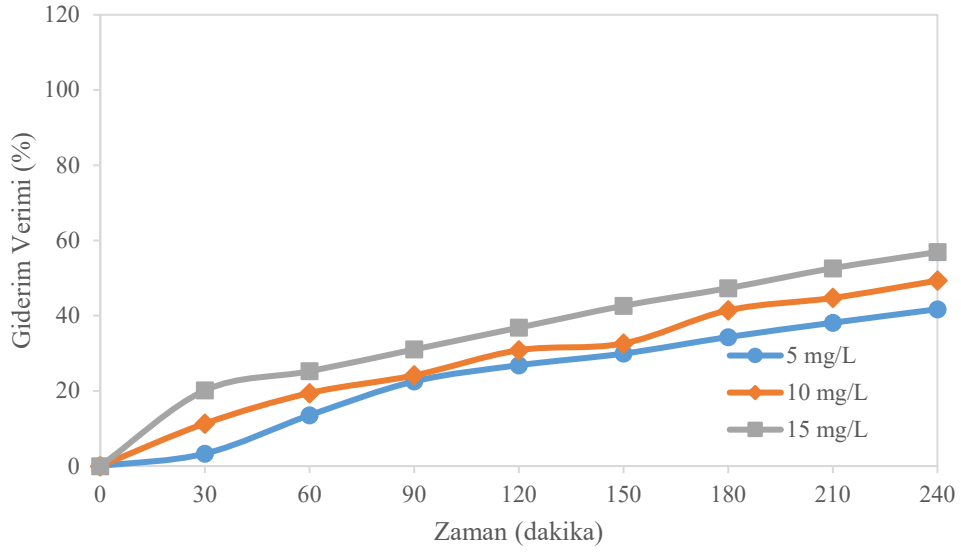
4.1.5. Kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için diğer parametreler (voltaj, amper, sıcaklık, pH, iletkenlik vs.) sabit tutularak sadece kirletici konsantrasyonu değişken parametre olarak çalışılmıştır. Bu durumda proses, Al elektrotlar kullanılarak 1 A akım ve 5 V voltaj uygulanarak 5 mg/L, 10 mg/L ve 15 mg/L kirletici konsantrasyonlarında 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde 15 mg/L kirletici konsantrasyonuna sahip

olan çözeltide diğerlerine oranla daha iyi giderim sağlandığı görülmüştür. Al elektrot için giderim verimleri sırasıyla %99,1, %99,2 ve %99,4'tür (Şekil 4.8.). Fe elektrot için giderim verimleri sırasıyla %41,7, %49,3 ve %56,9'dur (Şekil 4.9.).



Şekil 4.8. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

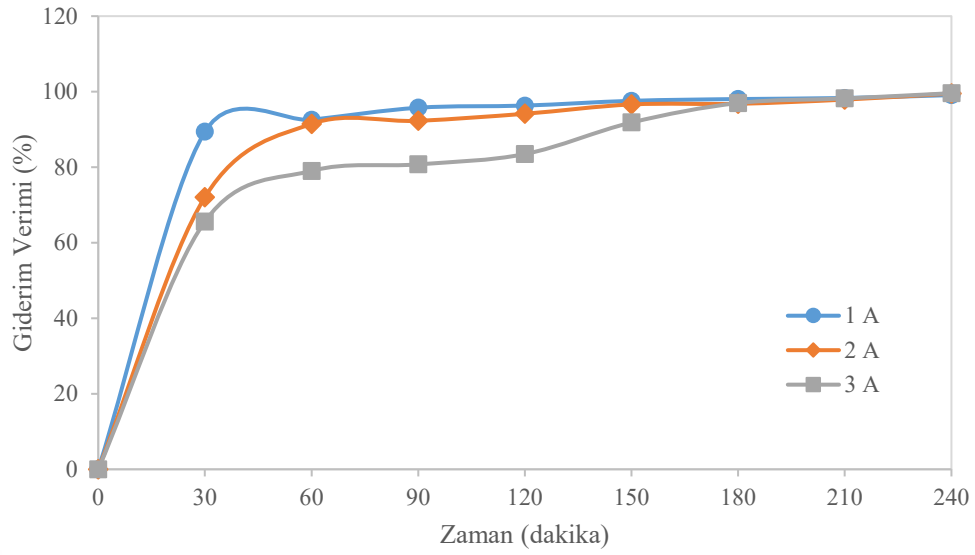


Şekil 4.9. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

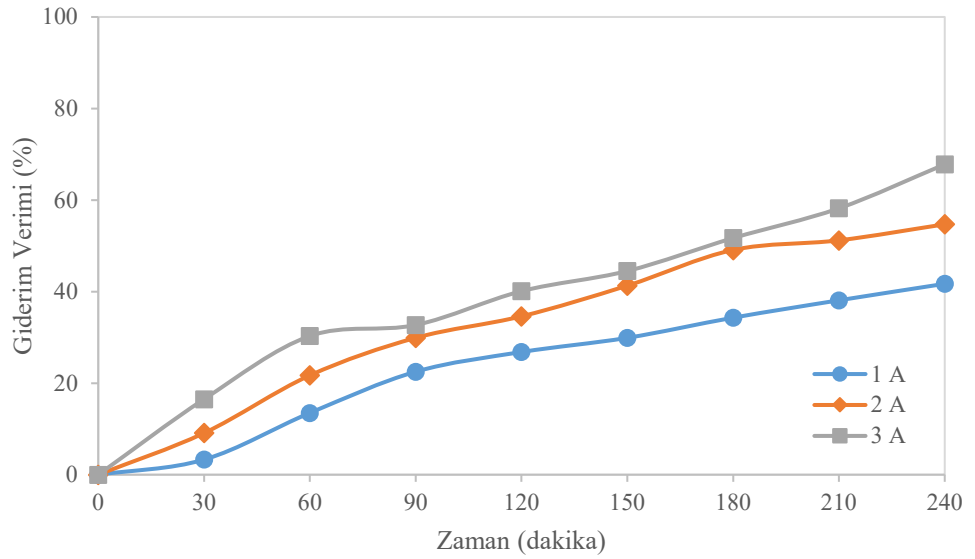
Dubey ve Tewari (2018), yeraltı suyunda bulunan florür iyon konsantrasyonunun etkisini gözlemlemek amacıyla başlangıç konsantrasyonu 2 mg/L'den 10 mg/L'ye değiştirilerek deneyler yapmıştır. Başlangıç florür konsantrasyonu arttığında florürün adsorpsiyon kapasitesinin de arttığı görülmüştür. Sudaki florür konsantrasyonunun artmasıyla, florür iyonlarının mevcudiyeti de artmakta ve bu da adsorpsiyon performansının artmasına neden olmuştur. Ayrıca, daha yüksek florür konsantrasyonunun, alüminyum elektrotlarla EK için daha yüksek florür giderim verimini takip ettiği gerçeği de tespit edilmiştir.

4.1.6. Akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için optimum şartlarda çalışılmıştır. Bu durumda proses, ayrı ayrı 1 A, 2 A ve 3 A akım uygulanarak 5 V voltaj değerinde, doğal pH'da 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Rigol DP832A marka programlanabilir 3 kanal DC güç kaynağı kullanılmıştır. Al elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde akım arttıkça giderim verimleri de artmıştır. Al elektrotta giderim verimleri 1 A, 2 A ve 3 A akım koşullarında sırasıyla %99,1, %99,5 ve %99,6 olarak ölçülmüştür. (Şekil 4.10.). Benzer şekilde Fe elektrot kullanılarak yapılan çalışmalarda da uygulanan akımın artmasıyla giderim veriminin arttığı görülmüştür. Fe elektrotta giderim verimleri , 1 A, 2 A ve 3 A akım koşullarında sırasıyla %41,7, %54,7 ve %67,8 olarak ölçülmüştür. (Şekil 4.11.).



Şekil 4.10. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)



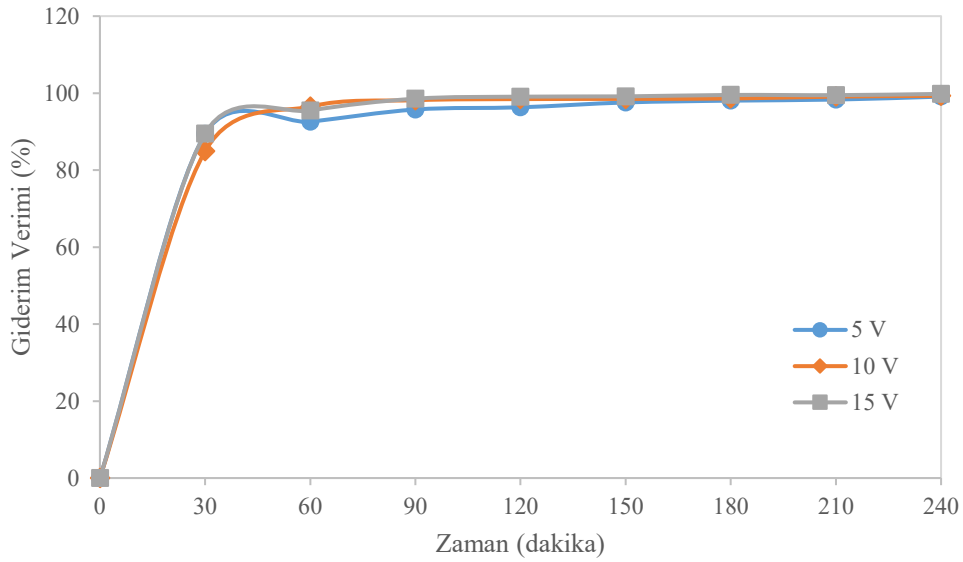
Şekil 4.11. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Aoudj ve ark. (2017) yaptıkları çalışmada florür giderimi için akımdaki artışın daha düşük florür nihai konsantrasyonlarına ulaştığını yani yüksek giderim verimi elde edildiğini göstermiştir. Akım 400 mA ila 600 mA arasında değiştiğinde, nihai florür konsantrasyonu 7,76 mg/L ila 3,75 mg/L arasında değişim göstermiştir. Akım ne kadar

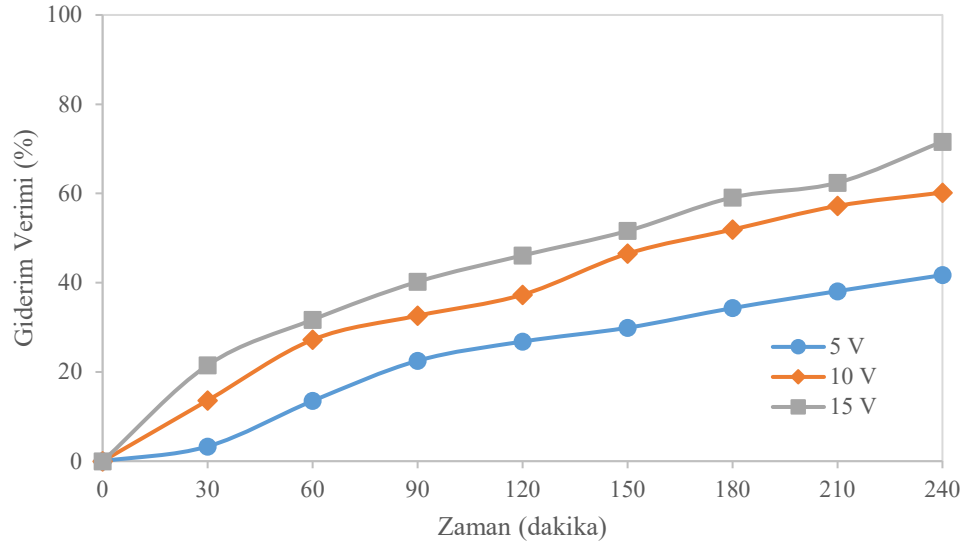
yüksek olursa, metalik çözünme de o kadar büyük olmuştur. Hu ve ark. (2007)'nin yaptıkları çalışma sonuçlarına göre mevcut verimlilik doğru bir şekilde tahmin edilebildiği sürece, uygulanan çeşitli akımlara sahip sistemlerde elektrokoagülasyon prosesinin florür giderimini doğru bir şekilde simüle edebildiğini ortaya koymuştur. Bununla birlikte, akım verimi, Al metalinin anotlardan ve katotlardan çözünmesi nedeniyle genellikle %100'ü aşar ve akım yoğunluğuna, elektrotlar arasındaki uzaklığa, iyonların türlerine, çözeltilerin konsantrasyonlarına, pH ve sıcaklık gibi özelliklerine göre değişkenlik gösterir. Dubey ve Tewari (2018) tarafından yük yüklemesinin ve elektrot potansiyelinin florür konsantrasyonunun uzaklaştırma verimi üzerindeki etkisini gözlemlemek için, sabit florür konsantrasyonu içeren su üzerinde deneyler yapılmıştır. Artan akım üzerine florür iyonlarının uzaklaştırılma oranı artmıştır. En yüksek akım (3 A), 10 dakika sonra %99,9'luk bir konsantrasyon azalma bulgusu ile en hızlı giderim oranını üretmiştir. Ayrıca, reaksiyon hızı kontrolünün, pıhtılaşma doz hızı belirlemesinden de sorumlu olan akım yoğunluğundan etkilendiği varsayılmıştır (Hashim ve ark. 2007).

4.1.7. Voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken voltaj değerinin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için optimum şartlarda çalışılmıştır. Bu durumda proses, ayrı ayrı 5 V, 10 V ve 15 V uygulanarak 1 A akım ve doğal pH'da 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde voltaj değeri arttıkça giderim verimi değişkenlik gösterse de birbirine çok yakın değerlerde ölçülmüştür. Giderim verimleri 5 V, 10 V ve 15 V uygulama koşullarında sırasıyla %99,1, %99,3 ve %99,8'dir (Şekil 4.12.). Benzer şekilde Fe elektrot kullanılarak yapılan çalışmalarda da uygulanan akımın artmasıyla giderim veriminin arttığı görülmüştür. Fe elektrot için giderim verimleri sırasıyla %41,7, %60,2 ve %71,6 olmuştur (Şekil 4.13.).



Şekil 4.12. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)



Şekil 4.13. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

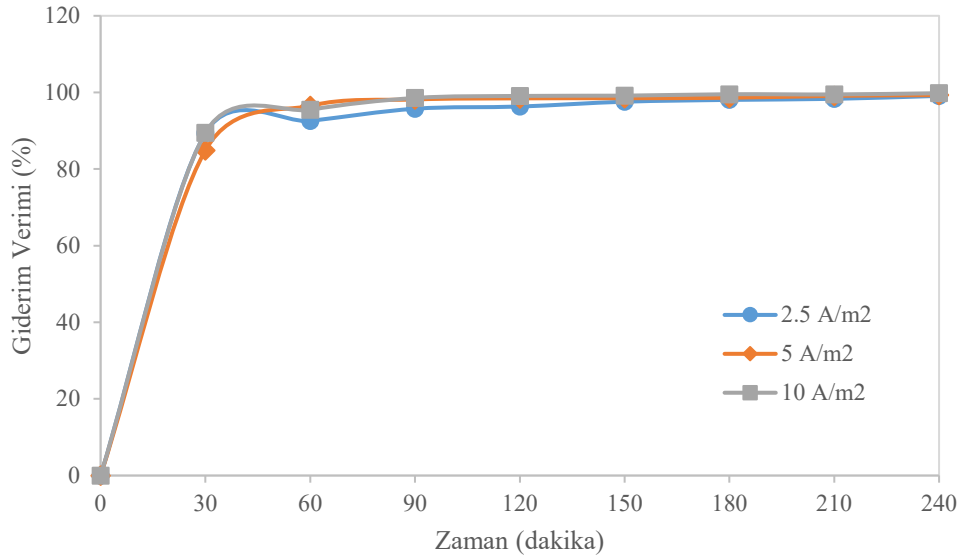
Elektrot potansiyelinin artmasıyla florür gideriminin etkinliği artar. Yüksek voltaj boyutlarında üretilen flokların büyüme hızı artar ve bu da prosesin verimini etkiler. Elektrot potansiyelinin artmasından dolayı oksitlenmiş alüminyum miktarı artar ve buna bağlı olarak yüksek adsorpsiyon hızına sahip hidroksit flokları artar ve

bu da florür giderme etkinliğinin artmasına neden olur (Dubey ve Tewari, 2018). Dubey ve Tewari (2018) tarafından yapılan çalışmada elektrot potansiyeli İlk pH'ın 6'da sabitlendiği 40 V ila 60 V arasında değişen elektrot potansiyeli ile şarj yüklemesi yapılmıştır. Artan voltaj değerlerinde florür iyonlarının giderim oranı da artmıştır. En yüksek voltaj, 10 dakikanın hemen ardından %99,9'luk bir konsantrasyon düşüşüyle en hızlı giderim oranını sağlamıştır. Bu nedenle, elektrokoagülasyon, içme suyundan florür giderimi için uygun bir teknolojidir. Droiche ve ark. (2009) tarafından yapılan bir çalışmada uygulanan potansiyelin florür giderme etkinliğine etkisini araştırmak için çeşitli voltajlar (10, 20 ve 30 V) kullanılarak elektrokoagülasyon işlemi gerçekleştirilmiştir. Voltajın 10'dan 30 V değerine artmasıyla, çıkarılan florür yüzdesi miktarı da artmıştır. Örneğin 80 dakikalık arıtım süreci sonunda artık florür konsantrasyonu 30 V uygulanan voltaj için 9,5 mg/L iken 20 ve 10 V için sırasıyla 10,3 ve 14,2 mg/L olarak bulunmuştur.

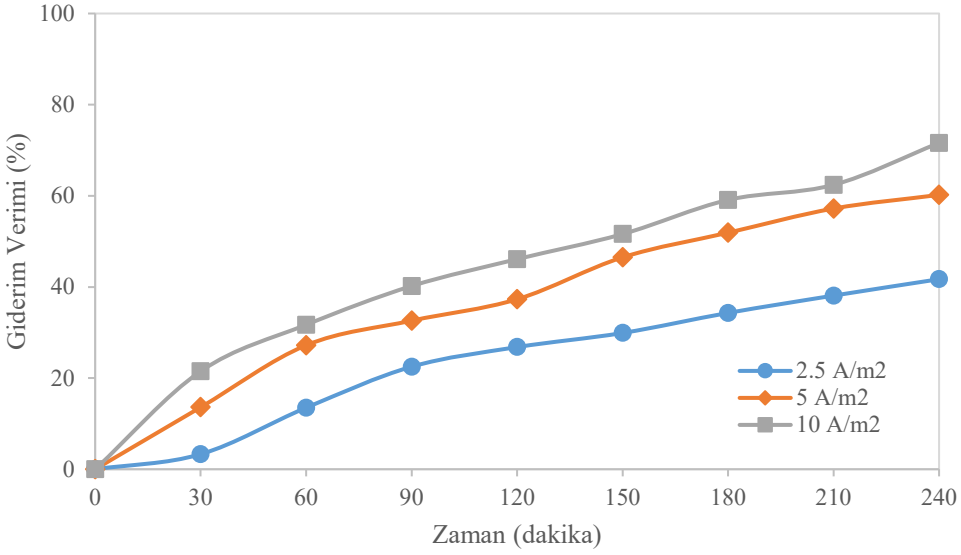
4.1.8. Akım yoğunluğu giderim verimi üzerindeki etkisi

pH: 7,5, süre: 240 dakika, iletkenlik: 50 µS/cm ve başlangıç konsantrasyonu: 5 mg/L sabit tutularak 2,5 A/m^2, 5 A/m^2 ve 10 A/m^2 aralığında araştırılmıştır. Bu değerlerin seçilme nedeni optimum koşullar olmasındandır. Şekil 4.14.'te Al elektrot kullanılarak yapılan çalışmaya ait akım yoğunluğuna bağlı giderim verimleri gösterilmiştir. Al elektrot ile yapılan çalışmada akım yoğunluğu 2,5 A/m^2'den 10 A/m^2'ye arttırıldığında, reaktörde giderim verimi %42'den %99,4'e kadar çıkmıştır. Fe elektrot kullanılarak yapılan çalışmada ise giderim verimi %19'dan %63 kadar çıkmıştır. Florüre ait katodik redüksiyonun neredeyse ters bir durum sergilediği görülmüştür. Ayrıca akım yoğunluğunun artışı ile anodik çözünmenin artış gösterdiği ve sonuç olarak olarak florür giderimi için gerekli olan flok miktarının da arttığı belirlenmiştir. Akım yoğunluğu değeri arttıkça, hava kabarcıklarının oluşumu artmış ancak kabarcıkların boyutunda küçülme görülmüştür. Bu durum H_2 flotasyonu ile kirletici gideriminde fayda sağlamaktadır (Adhoum ve ark., 2004). Şekil 4.14.'te Al elektrot kullanılarak işletilen prosese ait giderim verimlerinin grafiği verilmiştir. Buna göre uygulanan akım yoğunluğu arttıkça giderim verimleri de doğru orantılı olarak artış göstermiştir. Şekil 4.15.'te Fe elektrot kullanılarak işletilen prosese ait giderim

verimlerinin grafiği verilmiştir. Buna göre uygulanan akım yoğunluğu arttıkça giderim verimleri de doğru orantılı olarak artış göstermiştir.



Şekil 4.14. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğu parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm)



Şekil 4.15. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğu parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm)

Un ve ark. (2013) tarafından akım yoğunluğunun florür giderimi üzerindeki etkisi 0.5, 1 ve 2 mA/cm^2'de incelenmiştir. Çeşitli akım yoğunluklarında florür giderme veriminin ve enerji tüketiminin zamana karşı değişimi hesaplanmıştır. Beklendiği gibi akım yoğunluğu arttıkça giderme verimliliği de artış göstermiştir. Giderim verimliliği, üretilen alüminyum miktarına bağlı olarak değişmektedir. Emamjomeh ve Sivakumar (2009) tarafından yapılan bir çalışmada 150 ila 400 mL/dakika arasında değişen farklı akış hızları ve 12,5 ila 50 A/m^2 arasındaki çeşitli akım yoğunluklarında çalışılmıştır. Sabit bir akış hızında akım yoğunluğu artırıldığında çözelti içindeki alüminyum konsantrasyonu artmaktadır. Akım yoğunluğu ve akış hızı sırasıyla 50 A/m^2 ve 150 mL/dakika olduğunda maksimum toplam alüminyum konsantrasyonu 355 mg/L olarak bulunmuştur. Bu nedenle, daha yüksek defloridasyon verimliliği elde etmek için, akış hızı arttığında akım yoğunluğunun daha yüksek olması gerekir. Akım yoğunluğunun florür giderme verimliliği üzerindeki etkisi, bu araştırmada pH seviyesi 7'de, ilk florür konsantrasyonu 10 mg/l'de ve başlangıç florür konsantrasyonu korunurken 1 ila 4 mA/cm^2 arasında değişen üç farklı akım yoğunluğu kullanılarak incelenmiştir (Aayef ve ark., 2021). Plakalar arasındaki mesafe 5 mm'dir. İşletim süresi de 5 ila 20 dakika arasında değişmiştir. Florür giderimi daha yüksek akım yoğunluğunda artış göstermiştir. 10 dakikalık işletimden sonra, 1, 2 ve 4 mA/cm^2'lik elektrik akımı için giderme verimliliği sırasıyla yaklaşık %78, %83 ve %86,5 olmuştur (Aayef ve ark., 2021).

4.1.9. Gerçek su numunesi ile giderim çalışması

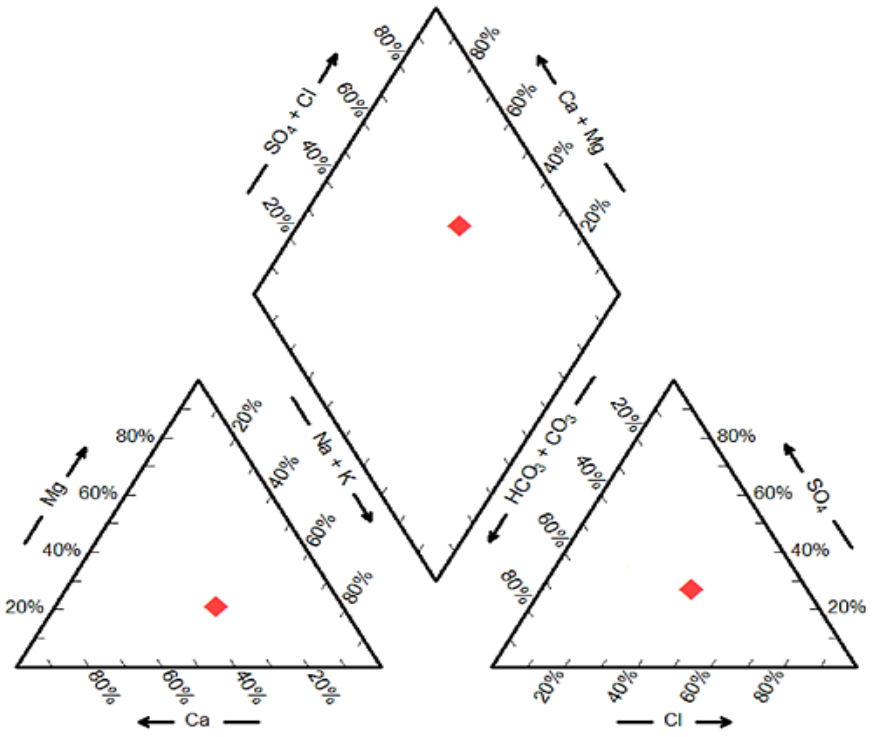
4.1.9.1. Sarım-Karataş Bölgesi jeoloji ve hidrojeolojisi

Yeraltı suyunun pH'ı ve iletkenliği sırasıyla 8,29 ve 486 µS/cm ölçülmüştür. Çalışma alanına ait diğer fizikokimyasal özellikler Çizelge 4.1.'de belirtilmiştir.

Çizelge 4.1. Çalışma alanındaki yeraltı sularının fizikokimyasal özellikleri

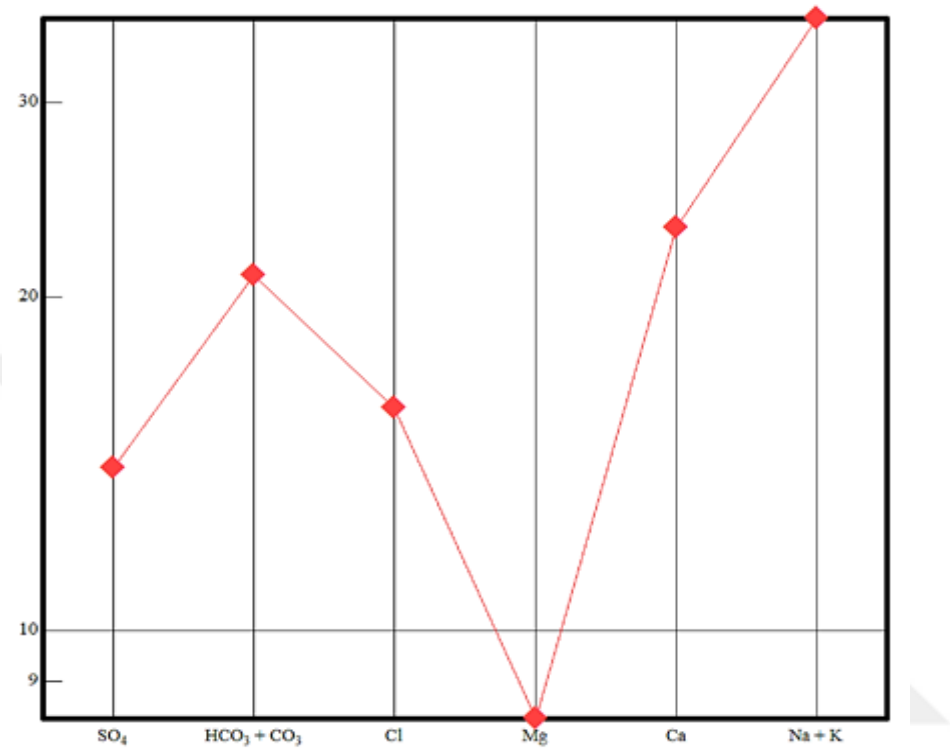
Parametre	Değer
pH	8,29
Elektriksel iletkenlik (µS/cm)	486
Sıcaklık (ºC)	25
F^- (mg/L)	**1,65**
Cl^- (mg/L)	15,89
NO_3^- (mg/L)	8,4
SO_4^{-2} (mg/L)	14,02
Mg^{+2} (mg/L)	8,32
Ca^{+2} (mg/L)	23,11
Na^+ (mg/L)	30,44
HCO_3^- (mg/L)	21,17
K^+ (mg/L)	5,3

Piper diyagramında dört hidrokimyasal fasiyes tanımlanmıştır (1) SO_4^{-2}·Cl^-–Ca^{+2}·Mg^{+2}; (2) HCO_3^-–Na^+; (3) HCO_3^-–Ca^{+2}·Mg^{+2}; (4) SO_4^{-2}·Cl^-–Na^+. Şekil 4.16.'da gösterildiği gibi, çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleme noktaları, öncelikle HCO_3-Na·Ca·Mg olan ana hidrokimyasal fasiyeslerde yer almaktadır. Yeraltı suyundaki katyonların ve anyonların baskınlık sırası sırasıyla $Na^+ > Ca^{+2} > Mg^{+2} > K^+$ ve $HCO_3^- > Cl^- > SO_4^{-2} > NO_3^-$ şeklindedir.



Şekil 4.16. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Piper diyagramı

Yarı Logaritmik Schoeller Diyagramına göre Sarım-Karataş bölgesindeki yeraltı suyu tipi $Na^+ + HCO_3^-$'dir (Şekil 4.17.). Bu sonuçlar Piper diyagramındaki sonuçlarla tutarlıdır.



Şekil 4.17. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Schoeller diyagramı

4.1.9.3. Elektrokoagülasyon ile giderim çalışmaları

Elektrokoagülasyon prosesi ile florür konsantrasyonu, Al ve Fe elektrotlar kullanılarak DSÖ içme suyu yönergelerine göre maksimum kirletici seviyesinin altına başarıyla düşürülmüştür. Al elektrot için ortam koşulları: başlangıç pH: 7,46, akım yoğunluğu: 3,1 A/m^2, çalışma süresi: 240 dakika olmuştur. Fe elektrot için ortam koşulları: başlangıç pH: 8,29, akım yoğunluğu: 4,6 A/m^2, çalışma süresi: 240 dakikadır. Florür giderimi Al ve Fe elektrotlar için sırasıyla %99,4 ve %71,6 olarak bulunmuştur. İşlem süresi boyunca Al anot tarafından ortaya çıkan Al^{+3} iyonları nedeniyle F^- giderim oranı çalışma süresiyle birlikte artmıştır. Florürün $Al(OH)_3$ topaklarından OH^- grubunun yerini aldığı bir kimyasal ikame yoluyla gerçekleştirilmiştir. Bununla birlikte, Fe elektrotlar kullanıldığında florür giderme

verimliliğinin de zamanla arttığı görülmüştür. Hem Al hem de Fe elektrot kullanılarak yeraltı sularından elektrokoagülasyon ile florür giderimi başarıyla sağlanmıştır. Her iki elektrotta giderim üzerinde yaygın kullanıma sahiptir. Çizelge 4.2.'de elektrokoagülasyon çalışma koşulları ve enerji tüketimi verilmiştir.

Çizelge 4.2. Elektrokoagülasyon çalışma koşulları ve enerji tüketimi

Parametre	**Elektrokoagülasyon prosesi**	
Elektrot materyali	Al	Fe
Akım yoğunluğu (A/m^2)	3,1	4,6
Sıcaklık (ºC)	25	25
Başlangıç pH	8,29	7,46
Bitiş pH	7,67	7,17
Başlangıç elektriksel iletkenlik (µS/cm)	486	480
Bitiş elektriksel iletkenlik (µS/cm)	291	278
Çalışma süresi (dakika)	240	240
Enerji tüketimi (kWh/m^3)	0,54	0,71

Bir çözeltinin pH'ı elektrokoagülasyon prosesindeki en önemli parametrelerden biridir (Bensadok ve ark., 2008). Özellikle bu çalışmada pH, florür giderimini ve elektrokimyasal proses performansını etkilemiştir. Deney boyunca kararsızlığı nedeniyle elektrokoagülasyon prosesi sırasında su pH'ının kontrolü çok zor olmuştur. Hem pH hem de iletkenlik belirli zaman aralıklarında ölçülmüştür. Florür giderim oranı artarken her ikisi de düşmüştür. İşletim süresi sonunda pH 7,67 ve iletkenlik 291 µS/cm olarak ölçülmüştür.

4.1.10. Enerji tüketimi

Elektrokoagülasyon prosesindeki önemli ekonomik parametrelerden biri elektrik enerjisi tüketimidir. Çalışmanın 240 dakikalık bir reaksiyon süresi için minimum enerji tüketimi Al ve Fe elektrotlar için sırasıyla, 3,1 A/m^2 ve 4,6 A/m^2 akım yoğunluğunda 0,54 kWh/m^3 ve 0,71 kWh/m^3 değerinde hesaplanmıştır. Bu hesaplamalar, elektrokoagülasyon prosesindeki operasyonel parametreler optimize edildikten sonra yapılmıştır (Yazdanbakhsh ve ark., 2015). Elde edilen sonuçlara göre iletkenlik azaldıkça enerji tüketimi artmıştır (Aoudj ve ark., 2017). Bu çalışmada, elektrokoagülasyon prosesindeki maksimum enerji tüketimi diğer florür giderimi çalışmalarından daha düşük bulunmuştur (Ghosh ve ark., 2008; Zuo ve ark., 2008;

Hakizimana ve ark., 2017). Ehsani ve ark. (2020)'nin yaptıkları bir çalışmada elektrokoagülasyon reaksiyon süresinin artmasıyla birlikte sentetik atıksu arıtımı için Fe ve Al elektrotların elektrik enerjisi tüketim oranı sırasıyla 1,1–6,2 kWh/m^3 ve 2,9−9,14 kWh/m^3, gerçek atık su arıtımı için sırasıyla 0,4–2 kWh/m^3 ve 1,7–7,2 kWh/m^3 aralığında olmuştur. Genel olarak çalışmalarda en yüksek arıtma verimi, en büyük akım yoğunluğu için elde edilmiştir. Bununla birlikte, arzu edilen bir atık F^- konsantrasyon aralığına ulaşılması koşuluyla aşırı enerji tüketimini önlemek için akım yoğunluğunun sınırlandırılması tavsiye edilir. Bu araştırmada, Sarım-Karataş bölgesinden örneklenen yeraltı suyu için güncel elektrik maliyetleri kullanılarak Al elektrot kullanılan proses ile florür giderimi için litre başına 0,13 $, Fe elektrot kullanılan proses ile florür giderimi için litre başına 0,17 $'lık bir maliyet hesaplanmıştır.

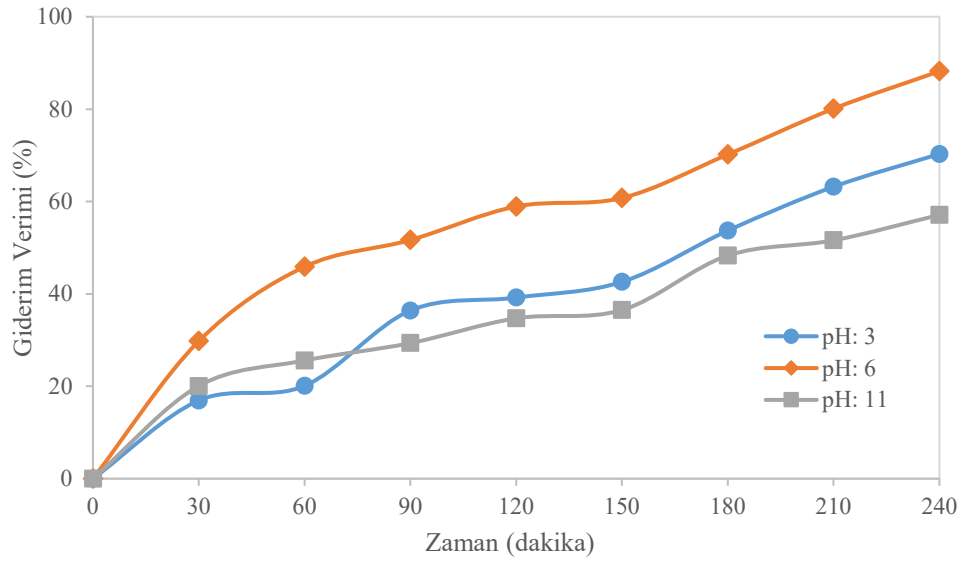
4.2. Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Sulardan Nitrat Gideriminde Optimum Şartların Araştırılması

Bu bölümde Al ve Fe elektrotlar kullanılarak bir elektrokoagülasyon prosesi kurulmuş ve nitrat giderimi üzerine çalışmalar yapılmıştır. Bu çalışmalar giderim veriminin belirlenmesinde pH değişiminin etkisi, elektrot materyalinin etkisi, elektrotlar arası mesafenin etkisi, iletkenlik değişiminin etkisi, kirletici konsantrasyonunun etkisi, akım değişiminin etkisi, voltaj değişiminin etkisi, akım yoğunluğunun etkisi, enerji tüketimi hesaplarını kapsamaktadır. Ayrıca gerçek yeraltı su numunesi ile yapılan giderim çalışmasını da içermektedir.

4.2.1. pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken pH'ın giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için diğer parametreler (voltaj, amper, sıcaklık, iletkenlik vs.) sabit tutularak sadece pH değişkeni çalışılmıştır. Bu durumda Al ve Fe elektrotlar kullanılarak uygulanan akım değeri: 1 A, uygulanan voltaj değeri: 5 V, doğal (hazırlanan sentetik çözeltinin pH metre ile ölçülen değeri) pH: 6, pH: 3 ve pH: 11'de çalışılmıştır. Proses 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune

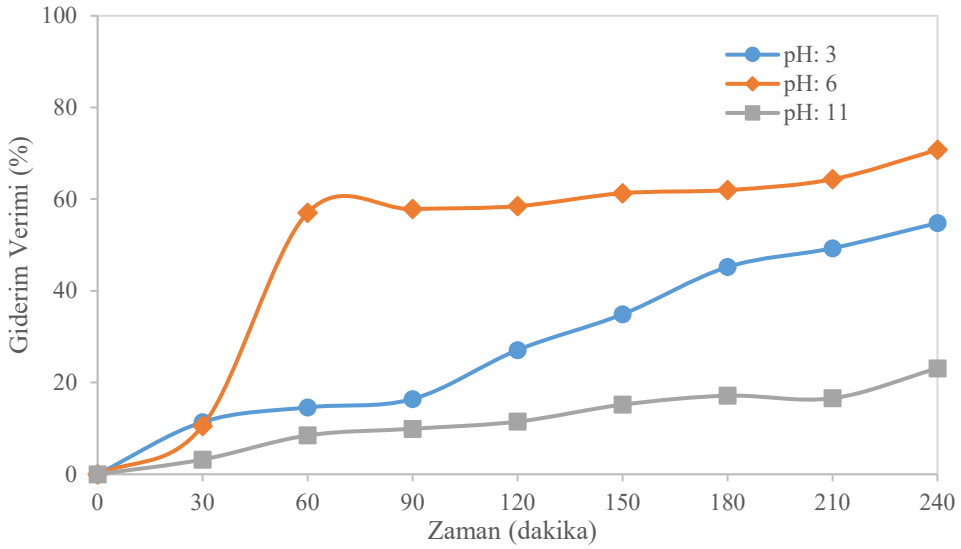
alımları yapılmıştır. Hem Al hem de Fe elektrot kullanılarak aynı şartlar altında kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde Al elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimleri, Fe elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimlerinden nispeten daha yüksektir (Şekil 4.18. ve Şekil 4.19.). Al elektrotun kullanıldığı proses giderim verimleri pH: 3, 6 ve 11 için sırasıyla %70,3, %88,2, %57,1 iken Fe elektrotun kullanıldığı proses giderim verimleri sırasıyla pH: 3, 6 ve 11 için sırasıyla %54,8, %70,8, %23,1 olmuştur. Elektrokoagülasyon proseslerinde pH önemli ve proses etkinliğini belirleyen bir parametredir. Nitrat giderimi en fazla nötre yakın değerde ve asidik ortamda olmuştur.



Şekil 4.18. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH'ın giderim verimine etkisi (başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Majlesi ve ark. (2016) pH'ın giderim verimine etkisini belirlemek için pH 3'ten 11'e değiştirmişlerdir. Nitrat giderim verimi pH 7'de ve 30 dakikalık işletim süresinde %96 olarak elde edilmiştir. Asidik ve alkali pH'larda önemli bir fark gözlenmemiştir; 3 ve 11 pH değerleri için giderim verimleri %96'ya yakın bulunmuştur. Tez çalışmasının sonuçları, içme suyundan nitratın elektrokoagülasyonla giderilmesine

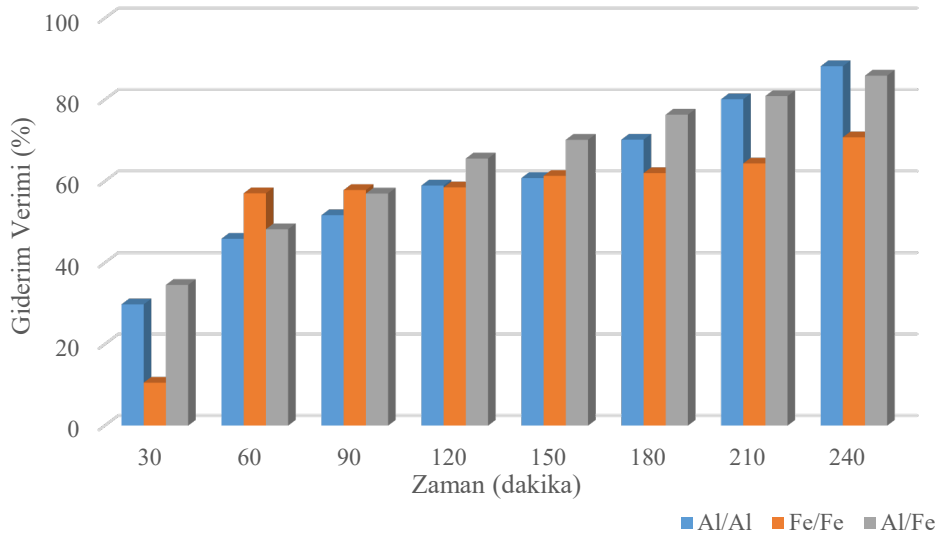
ilişkin Vasudevan ve ark. (2010) tarafından doğrulanmıştır. Çalışmalarında, maksimum giderim etkinliği pH 7'de elde edilmiştir.



Şekil 4.19. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH'ın giderim verimine etkisi (başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

4.2.2. Elektrot materyalinin giderim verimi üzerindeki etkisi

Hem Al hem de Fe elektrot kullanılarak aynı şartlar altında kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde Al elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimleri, Fe elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimlerinden daha yüksektir. Aynı koşullarda (1 A–5 V, doğal pH) Fe elektrot kullanılarak işletilen proseste giderim verimi %70,8 iken, Al elektrot kullanılarak işletilen proseste giderim verimi %88,2 olarak tespit edilmiştir. Aynı koşullar altında Al–Fe kombinasyonu yapılarak işletilen proseste giderim verimi %85,88 olarak ölçülmüştür (Şekil 4.20.).



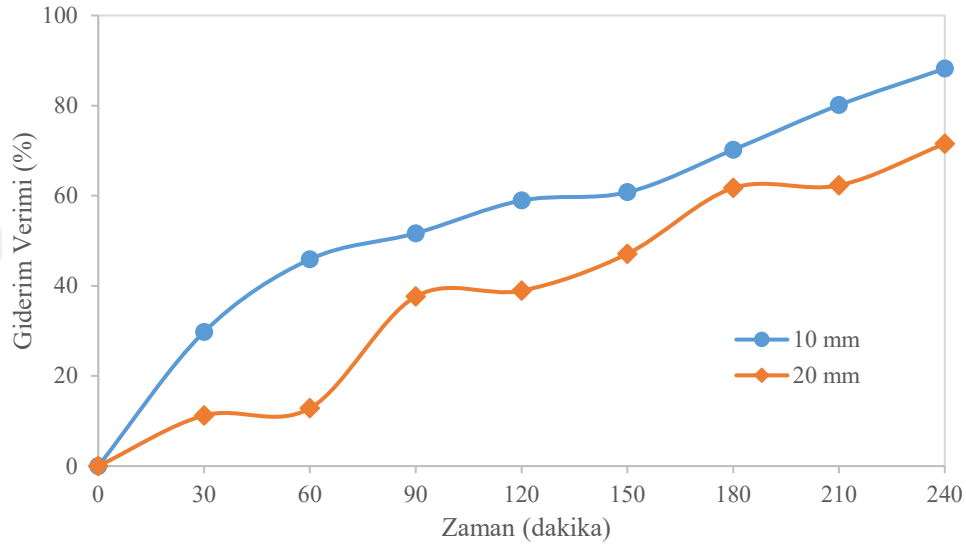
Şekil 4.20. Kullanılan elektrot materyalinin (Al ve Fe ve Al/Fe) elektrokoagülasyon prosesi giderim verimi üzerine etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Çalışmalar, Al elektrotları kullanılarak salınan Al^{+3} iyonlarının elektrokoagülasyon proseslerinde diğer elektrotlara göre daha etkili olduğunu göstermiştir (Jeong ve ark., 2012). Bununla birlikte, elektrokoagülasyon sırasında katotta meydana gelen süreç hakkında kesin bir bilgi yoktur. Elektrokoagülasyon prosesinin ilk aşamalarında sadece Al elektrotlarında amonyağın üretildiği bildirilmiştir (Govindan ve ark., 2015b). Mevcut tez çalışmasında, nitrat gideriminde Al–Al elektrot kombinasyonunun daha yüksek verimliliğe sahip olduğu bulunmuştur. Konuyla ilgili yapılan araştırmalara bakıldığında benzer şekilde elektrokimyasal işlemde Al–Al elektrot kombinasyonları ile daha yüksek giderim veriminin elde edildiği görülmüştür (Jotin ve ark., 2012; Shivayogimath ve Watawati, 2013).

4.2.3. Elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi

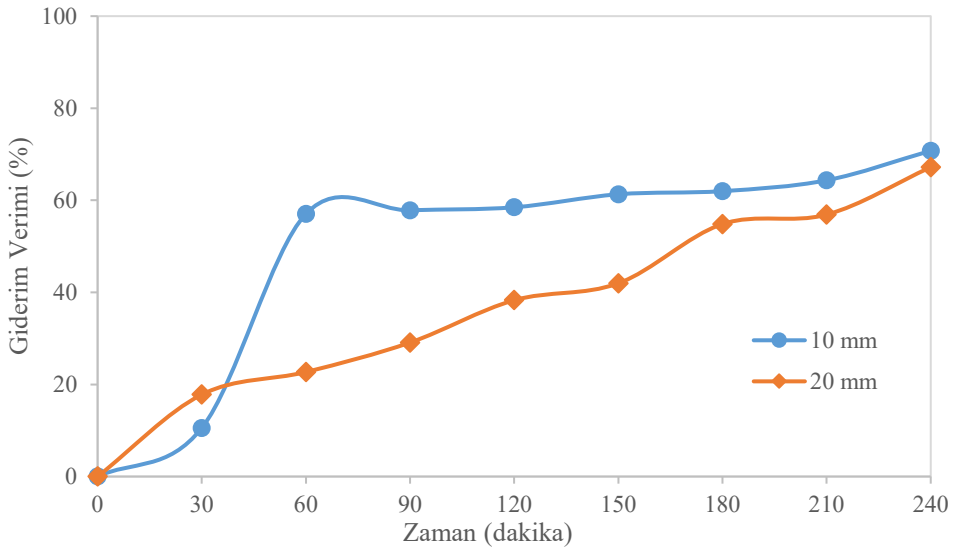
Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için optimum şartlarda çalışılmıştır. Bu durumda proses, ayrı ayrı elektrotlar arası mesafe 10 mm (7 adet elektrot) ve 20 mm (4 adet elektrot) olacak şekilde 1 A akım, 5 V voltaj uygulanmış ve doğal pH'da 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al ve Fe

elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen EK proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde elektrotlar arası mesafe arttıkça giderim verimi azalmıştır. Giderim verimleri Al elektrotlar için elektrotların arasındaki 10 mm ve 20 mm'lik mesafe için sırasıyla %88,2 ve %71,5, Fe elektrotlar için sırasıyla %70,8 ve %67,2 olarak hesaplanmıştır. (Şekil 4.21. ve Şekil 4.22.).



Şekil 4.21. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

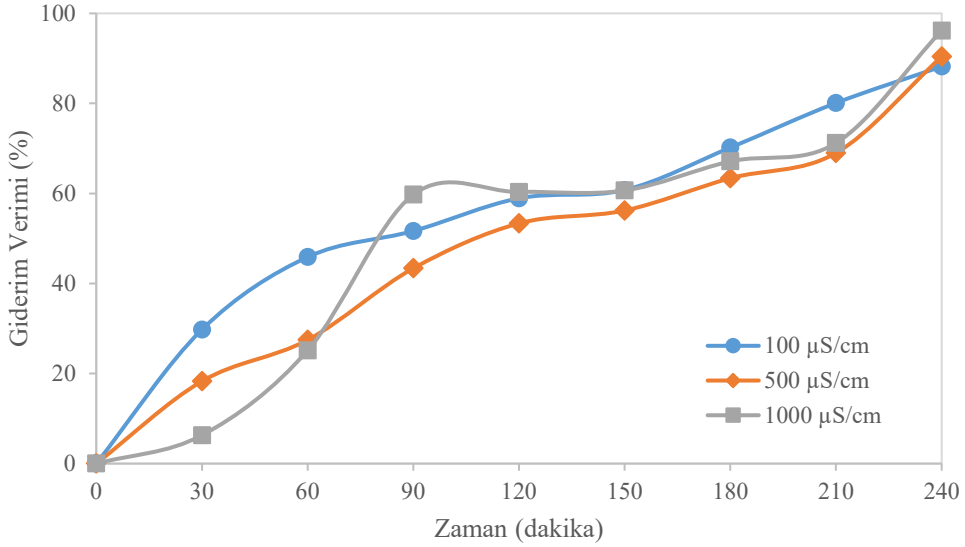
Elektrotlar arasındaki mesafenin artmasıyla elektrostatik çekimdeki azalma, giderimde azalmaya neden olmuştur. Elektrotlar arasındaki mesafe arttıkça akım azalır. Bu durum işletme maliyetini daha da artıracağı için önerilmeyen sabit bir akım yoğunluğunu korumak için voltaj artırılmalıdır. Tez çalışmasında elde edilen deneysel çalışma sonuçları Malakootian ve ark. (2011)'in yaptıkları çalışmayla uyumludur. Onların çalışmasında da elektrot sayısının artmasıyla nitrat giderim veriminin arttığı gözlemlenmiştir. Bunun daha yüksek enerji tüketimi ve daha kısa sürede daha fazla köpük üretilmesinden kaynaklandığı düşünülmektedir (Malakootian ve ark., 2011).



Şekil 4.22. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

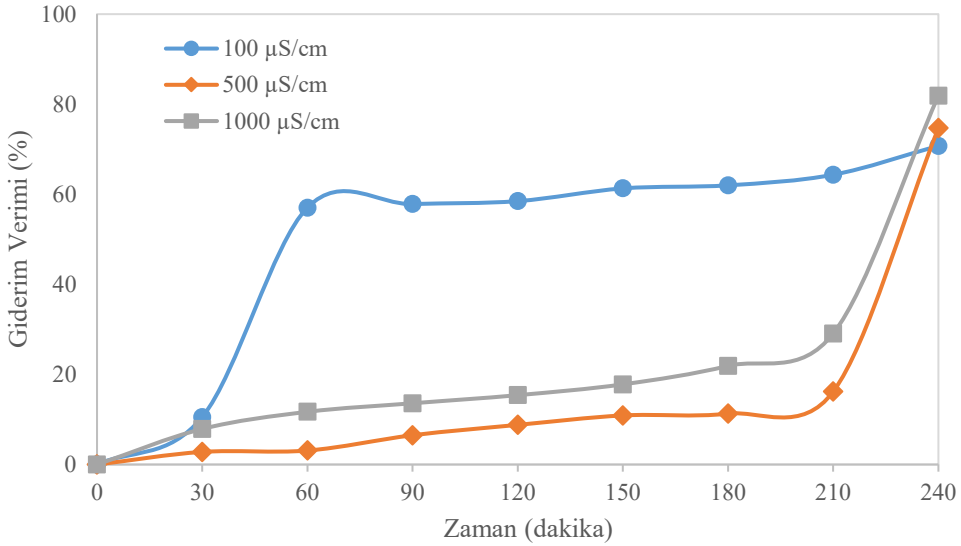
4.2.4. İletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için diğer parametreler (voltaj, amper, sıcaklık, pH vs.) sabit tutularak sadece iletkenlik değişkeni çalışılmıştır. Bu durumda Al elektrotlar kullanılarak 1 A akım ve 5 V voltaj uygulanarak çözeltinin doğal iletkenlik değerinde (100 µS/cm), daha sonra da NaCl ilavesiyle ayarlanan 500 µS/cm ve 1000 µS/cm'de çalışılmıştır. Proses 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al ve Fe elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen EK proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde çözeltinin iletkenlik ve giderim verimi değerleri arasında doğru orantı olduğu tespit edilmiştir (Şekil 4.23. ve Şekil 4.24.). Al elektrotlar için giderim verimleri 100 µS/cm, 500 µS/cm ve 1000 µS/cm için sırasıyla %88,2, %90,4, %96,2 olmuştur. Fe elektrotlar için giderim verimleri 100 µS/cm, 500 µS/cm ve 1000 µS/cm için sırasıyla %70,8, %74,7, %81,9 olmuştur. Sonuç olarak, çözeltinin iletkenlik değeri arttıkça giderim veriminin de arttığı görülmüştür.



Şekil 4.23. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

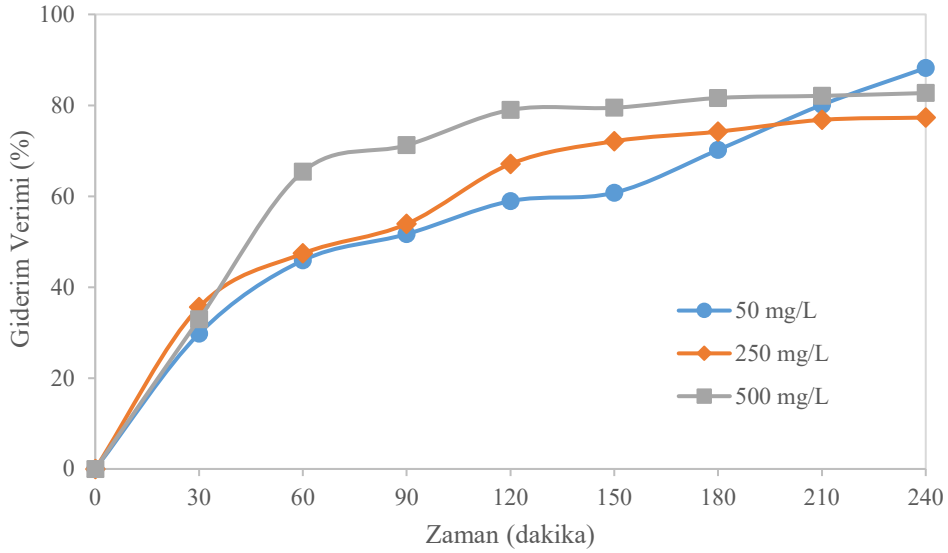
Her deneysel çalışmada çözeltinin iletkenliğinin zamanla arttığı ve bunun sonucunda hücre akışında artış olduğu gözlenmiştir. Yapılan testlerden elde edilen sonuçlar, NaCl yokluğunda nitrat gideriminin NaCl varlığındakinden daha yüksek olduğunu bildiren diğer çalışmalarla (Dash ve Chaudhari, 2005; Li ve ark., 2009) tutarlı bulunmuştur. Bu durumun çözeltide klorür iyonlarının bulunmasından kaynaklandığını açıklamışlardır. Bir başka çalışmada NaCl ilavesinin tuz kullanılmayan teste göre daha düşük verim sağladığı gözlemlenmiştir (Amarine ve ark., 2020).



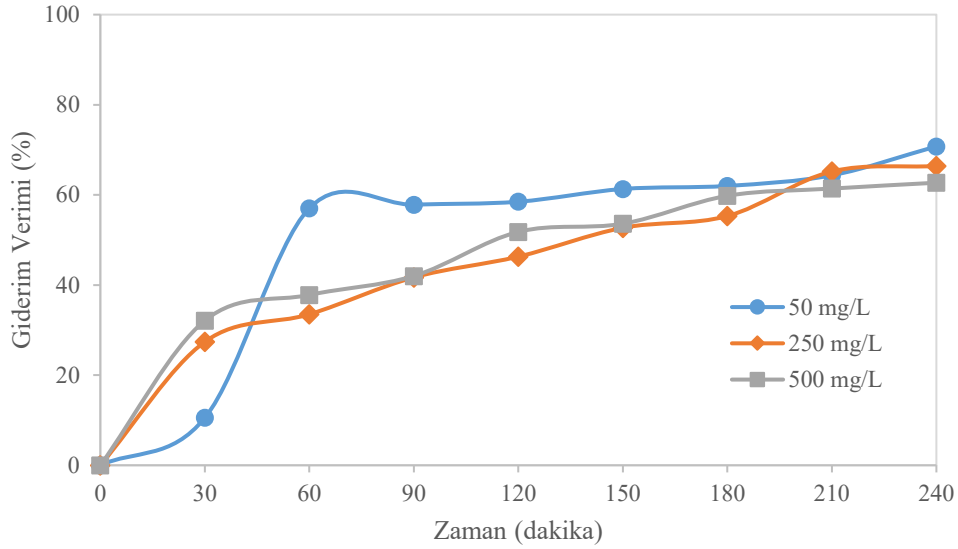
Şekil 4.24. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

4.2.5. Kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için diğer parametreler (voltaj, amper, sıcaklık, pH, iletkenlik vs.) sabit tutularak sadece kirletici konsantrasyonu değişken parametre olarak çalışılmıştır. Bu durumda proses, Al ve Fe elektrotlar kullanılarak 1 A akım ve 5 V voltaj değerinde 50 mg/L, 250 mg/L ve 500 mg/L kirletici konsantrasyonlarında 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen EK proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde 500 mg/L kirletici konsantrasyonuna sahip olan çözeltide diğerlerine oranla daha iyi giderim sağlandığı görülmüştür. Giderim verimleri sırasıyla %88,2, %82,7 ve %77,3'tür (Şekil 4.25.). Fe elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen EK proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde 50 mg/L kirletici konsantrasyonuna sahip olan çözeltide diğerlerine oranla daha iyi giderim sağlandığı görülmüştür. Yani başlangıç konsantrasyonu azaldıkça giderim verimi artmıştır. Giderim verimleri sırasıyla %70,8, %66,4 ve %62,7'dir (Şekil 4.26.).



Şekil 4.25. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)



Şekil 4.26. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

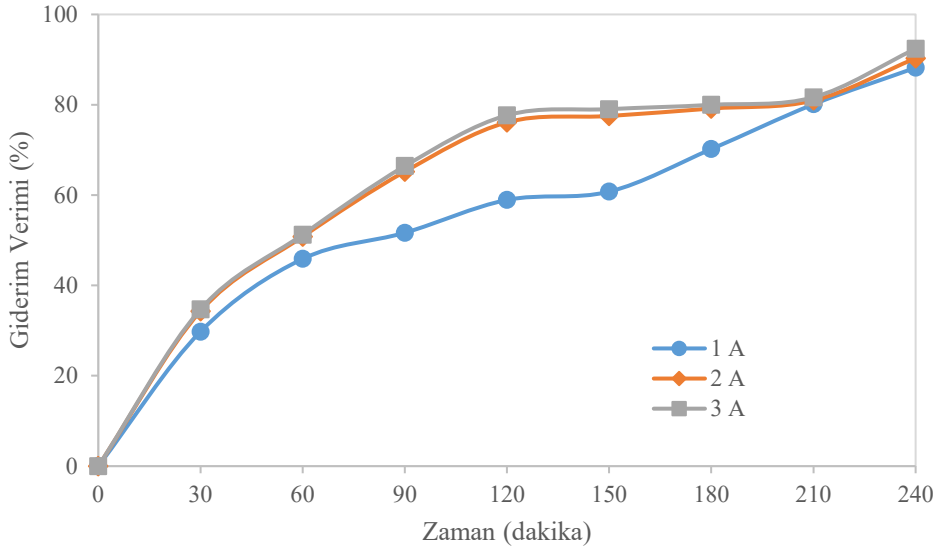
Daha yüksek nitrat konsantrasyonlarında çalışırken, aynı çalışma süresi içinde tüm nitrat iyonlarını gidermek mümkün değildir. Bu nedenle, yüksek nitrat konsantrasyonlarını elektrokoagülasyon ile gidermek için daha fazla zaman gerekir. Sudaki nitrat konsantrasyonu, nitrat giderimini etkileyen önemli bir faktördür. Üç

farklı başlangıç konsantrasyonunun (50 mg/L, 250 mg/L ve 500 mg/L) aynı süredeki giderim oranları da farklılık göstermiştir. Başlangıç konsantrasyonu azaldıkça nitrat giderim oranı artmıştır. Bu sonuçlar aynı zamanda Malakootian ve ark. (2011) tarafından sulu çözeltiden nitrat giderimi için elektrokoagülasyonun etkinliği üzerine ve Koparal ve Ogutveren (2002) tarafından elektroindirgeme ve elektrokoagülasyon yoluyla sudan nitrat giderimi üzerine yapılan araştırmalar (Koparal ve Ogutveren 2002; Malakootian ve ark., 2011) ile uyumludur.

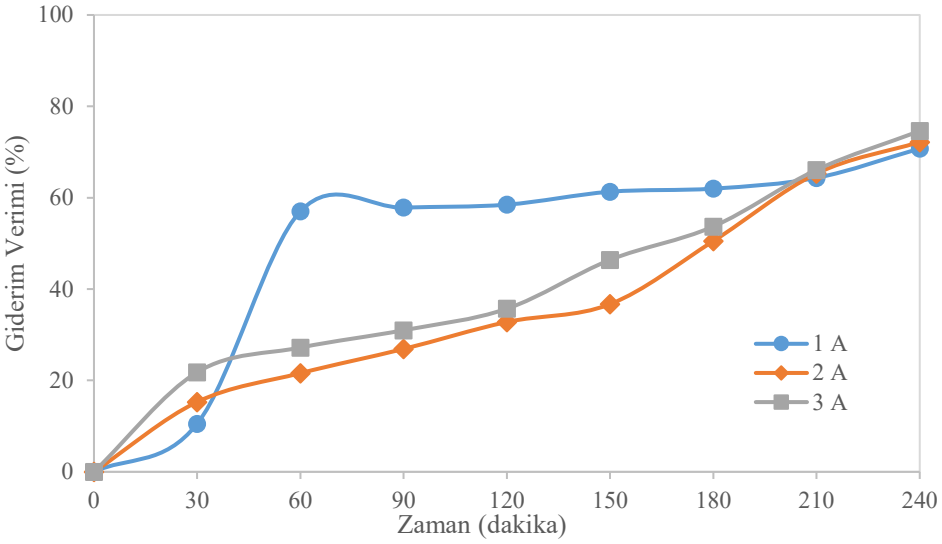
4.2.6. Akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için optimum şartlarda çalışılmıştır. Bu durumda proses, ayrı ayrı 1 A, 2 A ve 3 A akım uygulanarak 5 V ve doğal pH'da 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Rigol DP832A Programlanabilir 3 Kanal DC Güç Kaynağı kullanılmıştır. Al elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde akım arttıkça giderim verimi de artmıştır. Giderim verimleri 1 A, 2 A ve 3 A akım koşullarında sırasıyla %88,2, %90,3 ve %92,4 olarak ölçülmüştür. (Şekil 4.27.). Benzer şekilde Fe elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen EK proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde akım arttıkça giderim veriminin arttığı görülmüştür. Giderim verimleri 1 A, 2 A ve 3 A akım koşullarında sırasıyla %70,8, %72,2 ve %74,6 olarak ölçülmüştür (Şekil 4.28.).

Yehya ve ark. (2014)'ün yaptıkları çalışmanın bir bölümünde ilk nitrat konsantrasyonu ve akımın nitrat giderimi üzerindeki etkileri incelenmiştir. Sonuçlar, akım artışının nitrat gideriminin hızlanmasına yol açtığını, böylece nitrat konsantrasyonunun 50 mgNO_3/L kılavuz değerinin altına daha hızlı düştüğünü göstermiştir. Sonuç olarak, akımdaki artışın aynı anda NO_2 iyonlarının oluşum hızını ve bunların NH_4^+'ya indirgenme hızını artırdığı, ancak NH_4^+'nın oluşum hızını biraz daha azalttığı görülmüştür.



Şekil 4.27. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

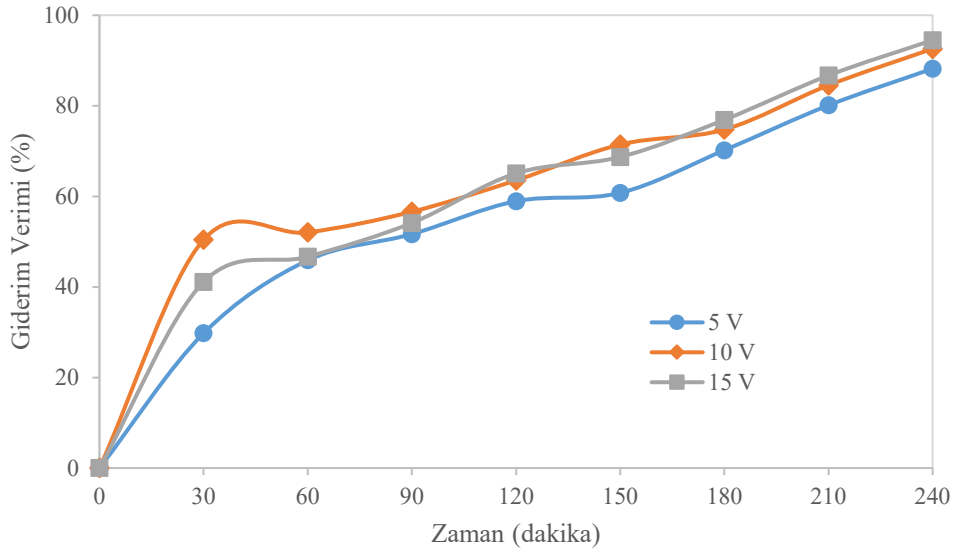


Şekil 4.28. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

4.2.7. Voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken voltaj değerinin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için optimum şartlarda çalışılmıştır. Bu durumda proses,

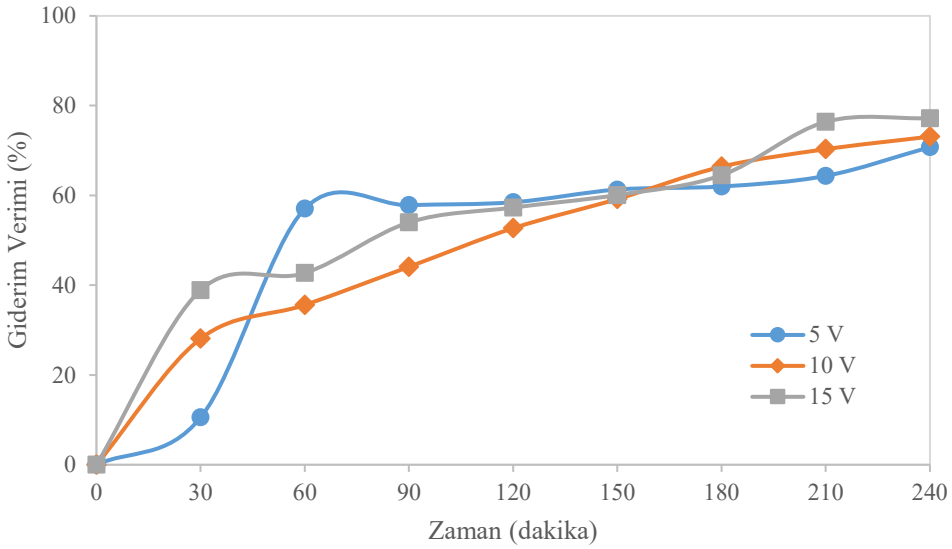
ayrı ayrı 5 V, 10 V ve 15 V uygulanarak 1 A akım, doğal pH'da 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Rigol DP832A Programlanabilir 3 Kanal DC Güç Kaynağı kullanılmıştır. Al elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde voltaj değeri arttıkça giderim verimi değişkenlik gösterse de birbirine çok yakın değerlerde ölçülmüştür. Al elektrot için giderim verimleri 5 V, 10 V ve 15 V uygulama koşullarında sırasıyla %88,2, %92,6 ve %94,5'dir (Şekil 4.29.). Benzer şekilde Fe elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde voltaj değeri arttıkça giderim verimi değişkenlik gösterse de birbirine çok yakın değerlerde ölçülmüştür. Giderim verimleri 5 V, 10 V ve 15 V uygulama koşullarında sırasıyla %70,8, %73,1 ve %77,2'dir (Şekil 4.30.).



Şekil 4.29. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Kumar ve Goel (2010)'un yaptıkları çalışmada daha yüksek akımın daha fazla kirletici maddeyi tutması ve giderme verimliliğini artırması beklenmiştir. Çalışmada demir elektrotlar kullanılmıştır. Bu nedenle, uygulanan potansiyelin giderim verimliliği üzerindeki etkisi, 300 mg/L'lik aynı başlangıç nitrat konsantrasyonu kullanılarak incelenmiştir. 10 V değerinde maksimum giderim verimliliği %50,3

olmuştur ve kararlı duruma ulaşması yaklaşık 6 saat sürmüştür. 25 V değerinde maksimum giderim verimliliği %84 olmuş ve kararlı duruma ulaşması 3 saat sürmüştür. Uygulanan potansiyeldeki artış, kararlı durum konsantrasyonu elde etmek için gereken sürenin azalmasına ve nitrat giderme yüzdesinin artmasına neden olmuştur. Bunun nedeni, uygulanan voltajın artmasıyla pıhtılaştırıcı üretim hızının artması ve kompleksler oluşturmak ve iyonları çökeltmek için çözeltide bulunan demir hidroksit miktarının da artması olabilir.

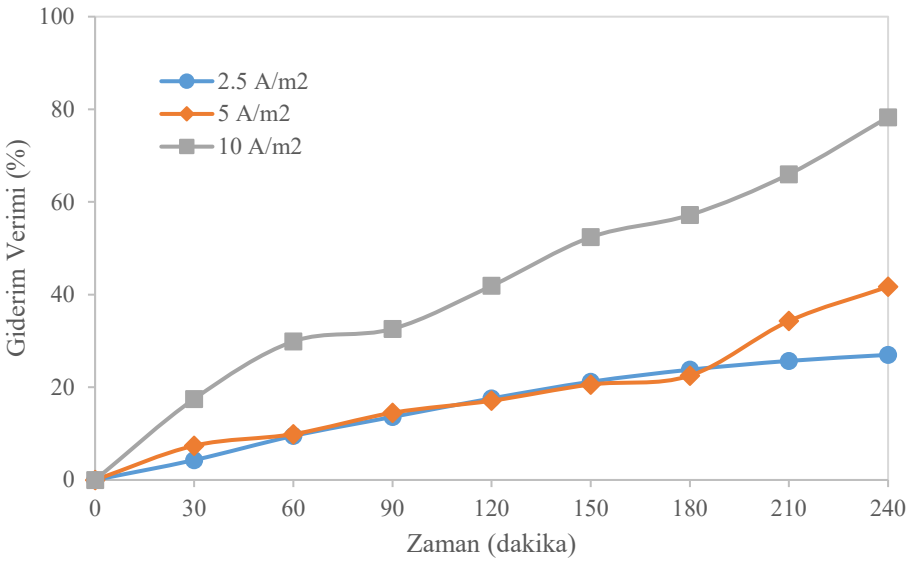


Şekil 4.30. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

4.2.8. Akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi

pH: 6, süre: 240 dakika, iletkenlik: 100 µS/cm ve başlangıç konsantrasyonu: 50 mg/L sabit tutularak 2,5, 5 ve 10 A/m^2 aralığında araştırılmıştır. Bu değerlerin seçilme nedeni optimum koşullar olmasındandır. Al elektrot kullanılarak yapılan çalışmaya ait akım yoğunluğuna bağlı giderim verimleri gösterilmiştir. Al elektrot ile yapılan çalışmada akım yoğunluğu 2,5 A/m^2 den 10 A/m^2 ye arttırıldığında, reaktörde giderim verimi %27'den %78,3'e kadar çıkmıştır. Fe elektrot kullanılarak yapılan çalışmada ise giderim verimi %13'ten %67'ye kadar çıkmıştır. Reaktördeki akım yoğunluğu değerinin artmasıyla birlikte anodik çözünme miktarı artmış ve bunun sonucu olarak

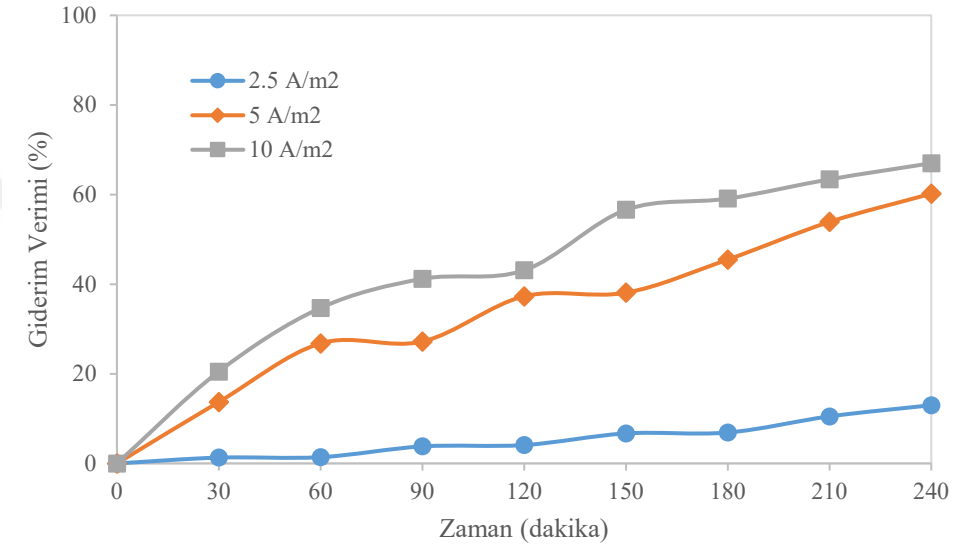
nitrat giderimi için gerekli flok miktarı da artış göstermiştir. Şekil 4.31.'de Al elektrot kullanılarak işletilen prosese ait giderim verimlerinin grafiği verilmiştir. Buna göre uygulanan akım yoğunluğu arttıkça giderim verimleri de doğru orantılı olarak artış göstermiştir. Şekil 4.32.'de Fe elektrot kullanılarak işletilen prosese ait giderim verimlerinin grafiği verilmiştir. Buna göre uygulanan akım yoğunluğu arttıkça giderim verimleri de doğru orantılı olarak artış göstermiştir.



Şekil 4.31. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm)

Lakshmi ve ark. (2013)'nın yaptıkları çalışmada akım yoğunluğunun etkilerini araştırmak için, pH 7'de 500 mg/L nitrat içeren çözeltiler kullanılarak, akım yoğunluğu 0.1 ila 0.75 A/dm^2 arasında değişen bir dizi deney gerçekleştirilmiştir. NO_3^-'ün giderim verimleri, 0,1, 0,15, 0,25, 0,5 ve 0,75 A/dm^2 akım yoğunlukları için sırasıyla %93,02, 94,6, 95,9, 96,2 ve %96,8 olmuştur. Sonuçlardan, 0,25 A/dm^2'nin ötesinde, giderim verimliliğinin daha yüksek akım yoğunluklarında neredeyse sabit kaldığı bulunmuştur. Bu davranış, akım arttığında pıhtılaşma hızının artmasıyla kolayca açıklanabilir, bu da adsorpsiyonun nitrat için bağlanma yerlerinin mevcudiyetine bağlı olduğunu göstermektedir (Vasudevan ve ark., 2009). Akım yoğunluğu arttıkça enerji tüketimi de hızla artmaktadır. Lacasa ve ark. (2019)'un yaptıkları çalışmada farklı akım yoğunluklarında (0,1 ila 5,0 mA/cm^2 arasında değişen) demir ve alüminyum

elektrotlar kullanılarak nitratların giderilmesi üzerindeki elektrokimyasal metal dozunun etkisi çalışılmıştır. Araştırılan mevcut yoğunlukların hiçbiri için (uygulanan belirli bir akım yükü veya dozlanan metal reaktif için) nitrat giderimi üzerinde demir veya alüminyum kullanımının önemli bir etkisi olmadığı görülmüş ve sonuçlarda önemli bir fark gözlenmemiştir. Ancak akım yoğunluğu arttıkça nitrat giderim verimi artış göstermiştir.



Şekil 4.32. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm)

4.2.9. Gerçek su numunesi ile giderim çalışması

4.2.9.1. Harran Ovası jeoloji ve hidrojeolojisi

Harran Ovası, jeolojik olarak pleyistosen–holosen alüvyonlarından, ovanın kuzey ve doğu–batı yönlerinde ise miyosen–holosen yaşlı formasyonlarından oluşmaktadır. Ovanın bazı kesimlerinde aşınmış höyükler mevcuttur. Ovada oligo-miyosen, eosen, alt miyosen, pleistosen–eski alüvyon, neojen, holosen–yeni alüvyon ve bazalt birimleri yaygındır (Dinç ve ark., 1988). Harran Ovası, kuzey–güney doğrultulu faylarla eosen yaşlı kireçtaşları ile sınırlanan bir graben yapısı içinde yer almaktadır. Ova, eosen, paleosen, pliyosen, miyosen ve pleyistosen yaşlı kayaçlardan

oluşmaktadır. Eosen kireçtaşı ovanın yeraltı su kaynaklarını içeren önemli bir jeolojik birimdir. Çalışma alanında sığ akifer ve derin akifer olmak üzere başlıca iki tip akifer bulunmaktadır. Sığ akifer serbest bir akiferdir. Kil, çakıl ve kum içeren oleistosen kayaçlarından oluşmaktadır ve kalınlığı yaklaşık 60 m'dir. Kapalı akifer olarak da tanımlanan derin akifer, eosen karstik kireçtaşlarından oluşmaktadır ve kalınlığı yaklaşık 300 m'dir. Ovanın batısında, doğusunda ve kuzeyinde eosen yaşlı karstik kireçtaşları görülmektedir. Sonuçlar ovada yeraltı suyunun kuzeyden güneye doğru aktığını göstermektedir (Özel ve ark., 2019; Yesilnacar ve Yenigün, 2011).

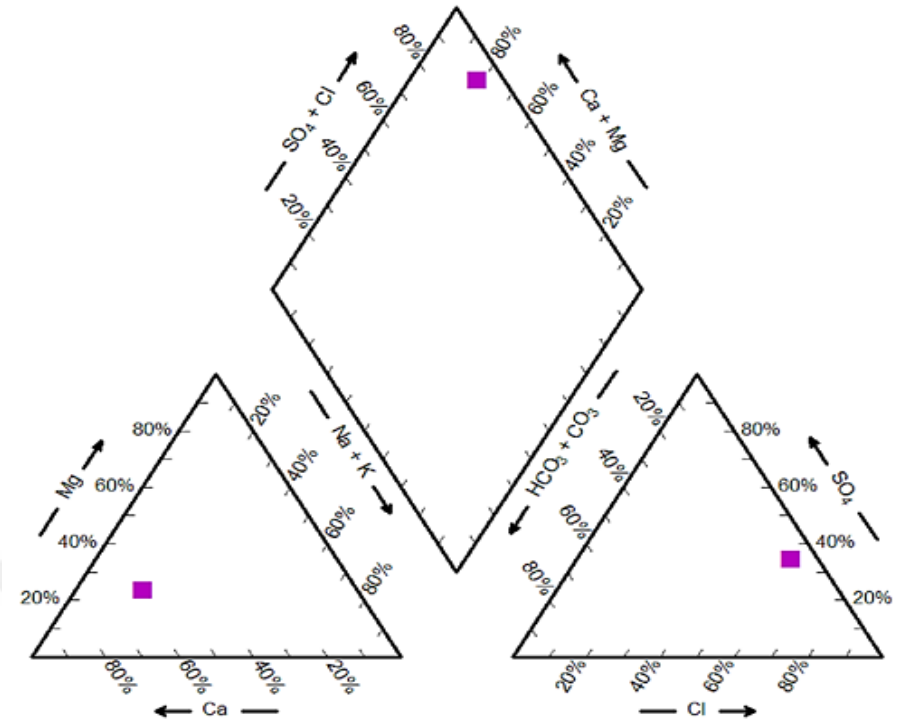
Kuyulardan alınan su numunelerine ait fizikokimyasal özellikler Çizelge 4.3.'de verilmiştir.

Çizelge 4.3. Çalışma alanındaki yeraltı sularının fizikokimyasal özellikleri

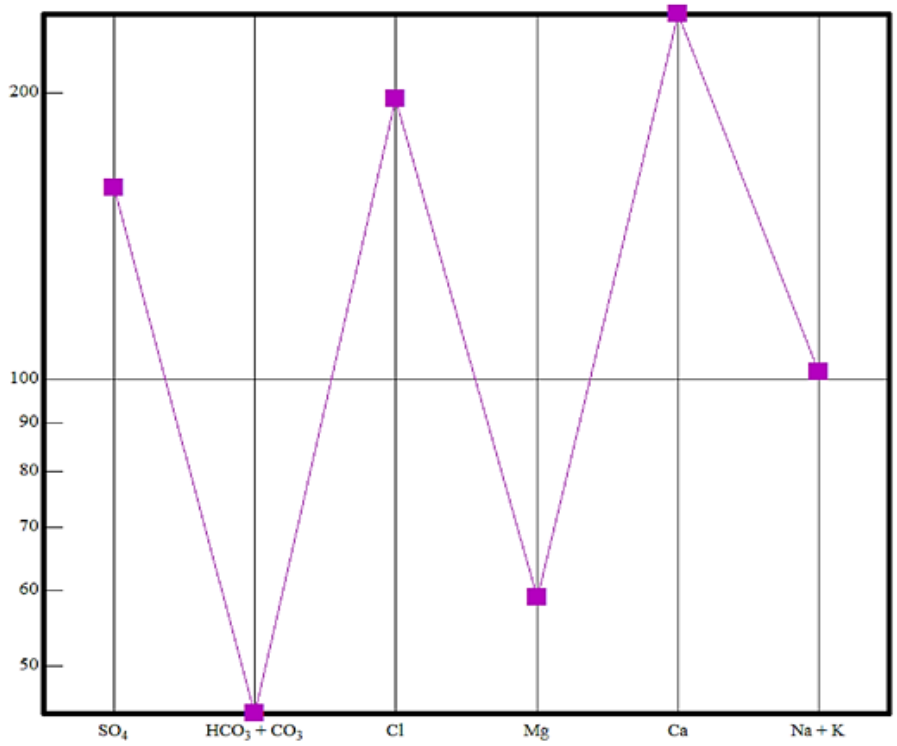
Parametre	**Değer**
pH	7,45
Elektriksel iletkenlik (µS/cm)	2350
Sıcaklık (ºC)	20,3
NO_3^- (mg/L)	**550**
Cl^- (mg/L)	196,9
F^- (mg/L)	0,31
SO_4^{-2} (mg/L)	158,8
Mg^{+2} (mg/L)	58,97
Ca^{+2} (mg/L)	242,3
Na^+ (mg/L)	69,12
HCO_3^- (mg/L)	47,78
K^+ (mg/L)	32,74

Piper diyagramı dört hidrokimyasal fasiyes tanımlanmıştır (1) SO_4^{-2}·Cl^-–Ca^{+2}·Mg^{+2}; (2) HCO_3^-–Na^+; (3) HCO_3^-–Ca^{+2}·Mg^{+2}; (4) SO_4^{-2}·Cl^-–Na^+. Şekil 4.33.'de gösterildiği gibi, çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleme noktaları, öncelikle Cl^-–Na^+·Ca^{+2}·Mg^{+2} olan ana hidrokimyasal fasiyeslerde yer almaktadır. Yeraltı suyundaki katyonların ve anyonların baskınlık sırası sırasıyla $Ca^{+2} > Na^+ > Mg^{+2} > K^+$ ve $NO_3^- > Cl^- > SO_4^{-2} > HCO_3^-$ şeklindedir.

Yarı Logaritmik Schoeller Diyagramında, çalışma alanındaki yeraltı sularının neredeyse tamamı Ca^{+2} + Cl^-'dir (Şekil 4.34.). Bu sonuçlar Piper diyagramındaki sonuçlarla tutarlıdır.



Şekil 4.33. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Piper diyagramı



Şekil 4.34. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Schoeller diyagramı

4.2.9.2. Elektrokoagülasyon ile giderim çalışması

Tez çalışması kapsamında Harran Ovası'nda belirlenen farklı on kuyudan numuneler alınıp analizler yapılmıştır. Kuyuların ortalama derinliği yaklaşık 10 m'dir. Nitrat analizleri mart ayında (sulama öncesi) yapılmıştır. Yapılan bu analizler sonucunda en yüksek nitrat konsantrasyonu Uğurlu ilçesinden alınan numunede gözlenmiştir (Çizelge 4.4.). Bu nedenle elektrokoagülasyon ile giderim çalışması bu kuyudan alınan numune ile yapılmıştır.

Çizelge 4.4. Örnekleme noktalarının nitrat değerleri

No	Örnekleme noktaları	NO_3^- (mg/L)
K1	Çamlıdere	31,1
K2	Yardımcı	42,9
K3	Kısas	75,7
K4	**Uğurlu**	**550**
K5	Ozanlar	64,2
K6	Kızıldoruç	198,9
K7	Olgunlar	26,8
K8	Yaygılı	125,2
K9	Bolatlar	69,1
K10	Uğraklı	144

Bunun üzerine Al ve Fe elektrotlu elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak nitrat giderim çalışmalarının Uğurlu ilçesindeki kuyudan alınan yeraltı suyu ile yapılmıştır. Yeraltı suyunun başlangıç özellikleri pH: 7,45, iletkenlik: 2350 μS/cm (diğer parametreler için bkz. Çizelge 4.5.)'dir. Bununla birlikte, demir elektrotlarla elektrokoagülasyon işleminin nitrat giderimi üzerinde önemli bir etkisi olmamıştır. Al elektrot kullanılan prosesin giderim verimliliği %62,26, Fe elektrot kullanılan proses için bu değer %39,32 şeklindedir. Sentetik nitrat çözeltisi ile yapılan elektrokoagülasyon çalışmalarında Fe elektrot ile %70'lere varan bir giderim görülmesine rağmen gerçek yeraltı suyu çalışmasında giderim verimi istenilen seviyede değildir. Bunun nedeni gerçek yeraltı suyundaki diğer anyon ve katyonların elektrokoagülasyon prosesi sırasında girişim yaparak giderim verimini düşürmesi olabilir. 50 mg/L nitrat sağlık standardına ulaşmak için, Harran Ovası'ndaki Uğurlu köyünden alınan su, Al elektrot kullanılarak 240 dakikadan fazla elektrokoagülasyon prosesinin uygulanmasını gerektirmiştir. Çalışmalarda kullanılan Al–Al elektrot

kombinasyonunun Fe–Fe elektrot kombinasyonuna göre daha iyi verim sağladığı görülmüştür.

Çizelge 4.5. Elektrokoagülasyon prosesi çalışma koşulları ve enerji tüketimi

Parametre	Elektrokoagülasyon prosesi	
Elektrot materyali	Al	Fe
Akım yoğunluğu (A/m^2)	2,31	3,1
Sıcaklık (ºC)	21	21
Başlangıç pH	7,45	7,45
Bitiş pH	7,04	3,03
Başlangıç elektriksel iletkenlik (µS/cm)	2350	2350
Bitiş elektriksel iletkenlik (µS/cm)	1462	2450
Çalışma süresi (dakika)	240	240
Enerji tüketimi (kWh/m^3)	2,07	2,91

4.2.10. Enerji tüketimi

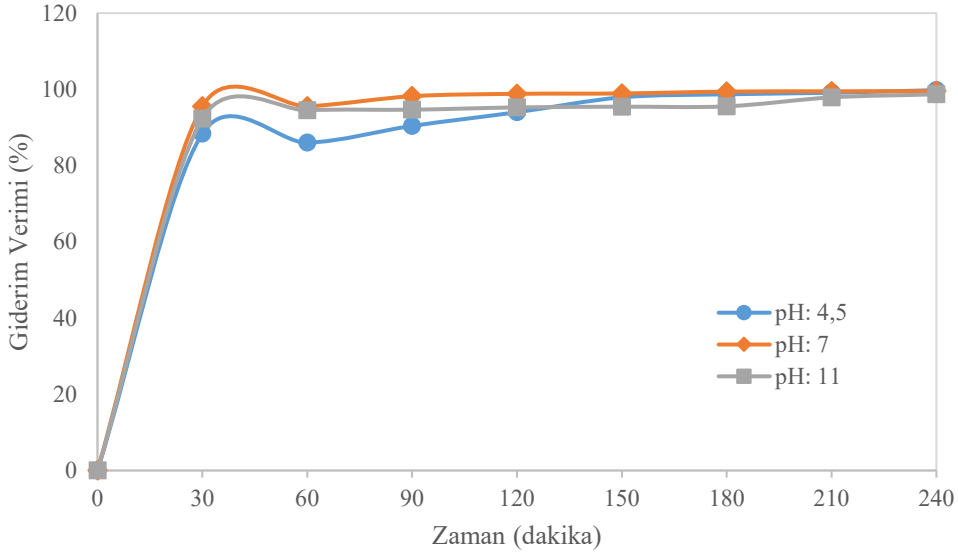
Elektrokoagülasyon prosesindeki önemli ekonomik parametrelerden biri elektrik enerjisi tüketimidir. Çalışmanın 240 dakikalık bir reaksiyon süresi için minimum enerji tüketimi Al ve Fe elektrotlar için sırasıyla 2,31 A/m^2 ve 3,1 A/m^2 akım yoğunluklarında 2,07 kWh/m^3 ve 2,91 kWh/m^3 değerinde hesaplanmıştır. Bu hesaplamalar, elektrokoagülasyon prosesindeki operasyonel parametreler optimize edildikten sonra yapılmıştır (Yazdanbakhsh ve ark., 2015). Nitrat gideriminin litre veya metreküp başına maliyetine ilişkin çeşitli hesaplamalar vardır. Menkouchi Sahli ve ark. (2006) Marakeş merkezinde elektrodiyaliz tersine çevirme sistemi ile yüzey ve yeraltı sularının nitrat giderimi konusunda, m^3 başına 0,17 $ tahmini nitrat giderim maliyeti elde edilmiştir (Elyanow ve Persechino 2005). Başka bir çalışmada nitrat giderimi için ters osmoz pilot tesisi uygulanmış; sonuçlar, nitratı gidermenin maliyetinin m^3 başına tahmini olarak 0,5 $ olduğunu göstermiştir (Menkouchi Sahli ve ark. 2006). Pirsaheb ve ark. (2015), m^3 başına 1 $'lık bir maliyet elde edilmiştir (Pirsaheb ve ark. 2015). Bu araştırmada, Harran Ovası'ndan örneklenen Uğurlu yeraltı suyu için güncel elektrik maliyetleri kullanılarak Al elektrot kullanılarak yapılan nitrat giderimi çalışmalarında litre başına 0,49 $, Fe elektrot kullanılarak yapılan nitrat giderimi çalışmalarında ise litre başına 0,7 $'lık bir maliyet hesaplanmıştır. EK prosesi ile giderim maliyeti daha yüksek gibi görünse de diğer yöntemlerin ilk yapılandırma ve bakım maliyetleri elektrokoagülasyon prosesine göre çok daha yüksektir.

4.3. Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Sulardan Arsenik Gideriminde Optimum Şartların Araştırılması

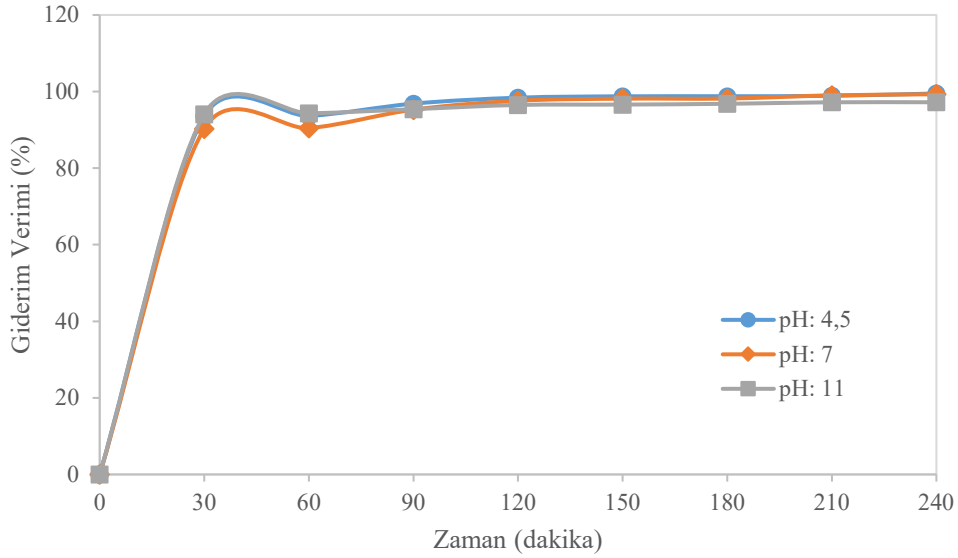
Bu bölümde Al ve Fe elektrotlar kullanılarak bir elektrokoagülasyon prosesi kurulmuş ve arsenik giderimi üzerine çalışmalar yapılmıştır. Bu çalışmalar giderim veriminin belirlenmesinde pH değişiminin etkisi, elektrot materyalinin etkisi, elektrotlar arası mesafenin etkisi, iletkenlik değişiminin etkisi, kirletici konsantrasyonunun etkisi, akım değişiminin etkisi, voltaj değişiminin etkisi, akım yoğunluğunun etkisi, enerji tüketimi hesaplarını kapsamaktadır. Ayrıca gerçek yeraltı su numunesi ile yapılan giderim çalışmasını da içermektedir.

4.3.1. pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken pH'ın giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için diğer parametreler (voltaj, amper, sıcaklık, iletkenlik vs.) sabit tutularak sadece pH değişkeni çalışılmıştır. Bu durumda Al ve Fe elektrotlar kullanılarak uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, doğal (hazırlanan sentetik çözeltinin pH metre ile ölçülen değeri) pH: 4,5, pH: 7 ve pH: 11'de çalışılmıştır. Proses 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Hem Al hem de Fe elektrot kullanılarak aynı şartlar altında kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde; Al elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimleri, Fe elektrot ile kesikli olarak işletilen EK proseslerinden elde edilen giderim verimlerinden nispeten daha yüksektir. Al elektrot için giderim verimleri pH: 4,5, pH: 7 ve pH: 11 için sırasıyla %99,8, %99,5 ve %98,7 (Şekil 4.35.), Fe elektrot için giderim verimleri pH: 4,5, pH: 7 ve pH: 11 için sırasıyla %99,5, %99,3 ve %97,2'dır (Şekil 4.36.).



Şekil 4.35. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)



Şekil 4.36. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde pH değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

López-Guzmán ve ark. (2019) çalışmalarında başlangıç pH değeri 5 olduğunda, arseniğin giderim veriminin daha yüksek olduğunu bulmuşlardır. Çünkü pH artışı bu değerden daha fazla olmuştur. İlk pH 5'ten ulaşılan nihai pH, 6,74 ila 7,45 aralığındadır. Arseniğin giderilmesini sağlamak için hemen hemen tüm geleneksel

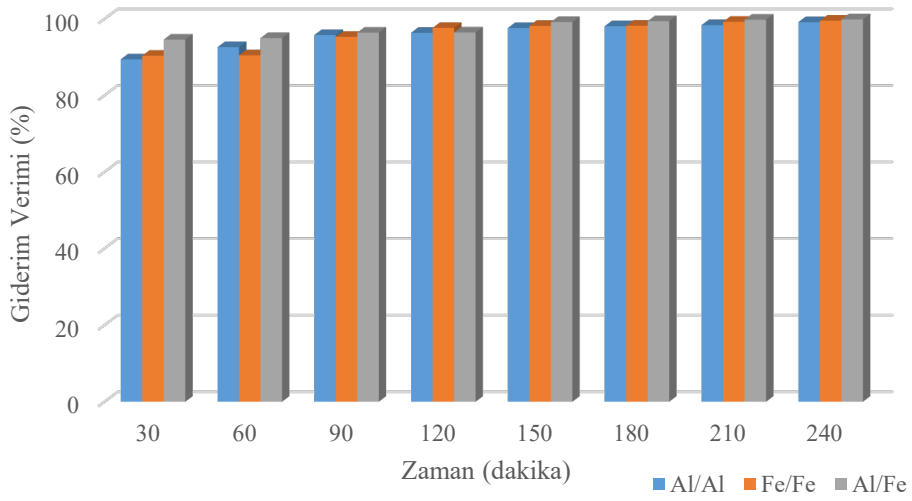
yöntemlerde arseniğin As(III)'ten As(V)'e oksitlenmesi gerekir. Elektrokoagülasyon işlemi sırasında, oksidasyon, reaktifler veya ara aşamalar eklenmesine gerek kalmadan işlem sırasında gerçekleşir. Bu oksidasyon gerçekleştirildiğinde, türler $H_2AsO_4^{-2}$ çözeltide 6 ila 8 pH aralığında bulunurken, $Fe(OH)_3$, pH 3'ten itibaren çözeltide sabittir (Can ve ark., 2014). Arsenik giderimi, pH'ın 3'ten 7'ye yükselmesinin bir sonucu olarak desteklenir, bu nedenle, başlangıçtaki asidik koşullardaki bir işlemde, arsenik giderimini artırmak için işlem boyunca pH'ın artması gerekir ki bu çok önemlidir (Thakur ve Mondal, 2017). Vasudevan ve ark. (2012) benzer bir sonuç elde ederek, arsenat giderim verimliliğinin, en yüksek arsenat gideriminin elde edildiği pH değeri 2'den 7'ye yükseldiğinde arttığı sonucuna varmıştır. Banerji ve Chaudhari'ye (2016) göre, demir elektrotların kullanılmasıyla As(III)'ün As(V)'e oksidasyonu pH 7'de daha yüksektir.

4.3.2. Elektrot materyalinin giderim verimi üzerindeki etkisi

Hem Al hem de Fe elektrot kullanılarak aynı şartlar altında kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde Al elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimleri, Fe elektrot ile kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen giderim verimlerinden daha yüksek olduğu görülmüştür. Al elektrot kullanılan proseste giderim verimi %99,8, Fe elektrot kullanılan proseste giderim verimi %99,5 olmuştur. Al–Fe kombinasyonuyla çalıştırılan reaktörde giderim verimi %99,9 olarak hesaplanmıştır (Şekil 4.37.).

Elektrokoagülasyon prosesleri için elektrot malzemesinin seçimi esas olarak giderilecek demir ve alüminyum anot elektrotları, çözeltideki pıhtılaştırıcıları üretmek için etkili ve ekonomik bir şekilde oksitlenebildikleri için elektrokoagülasyon proseslerinde yaygın olarak kullanılır (Mohora ve ark., 2018; Sandoval ve ark., 2019). Demir ve alüminyum, değişen özellikler sergileyen farklı metallerdir. Demirin hem fiyat hem de gelişmiş paslanma, manyetik özellikler ve erime/kaynama noktası açısından alüminyumdan üstün olduğu bilinmektedir. Maitlo ve ark. (2019) çalışmalarında hem demir hem de alüminyum anot elektrotları kullanmıştır. Arsenik giderme oranı açısından demir anot elektrotları,

alüminyum anot elektrotlarından daha iyi performans sergilemiştir. Kumar ver ark. (2004)'ün çalışmalarında titanyum, demir veya alüminyum elektrot ile arsenik gidermeye yönelik elektrokoagülasyon prosesi, düşük akım yoğunluğu koşulu altında anot olarak demir levhanın diğerlerinden daha verimli olduğunu göstermiştir. Alüminyum elektrot ile daha düşük giderim etkinliğinin makul nedenleri, alüminyum tuzlarının daha yüksek çözünürlüğü ve elektrokoagülasyon prosesinde üretilen yerinde (in-situ) alüminyum komplekslerinin daha düşük adsorpsiyon kapasitesi ile ilişkili olabilir. Alüminyum elektrotlu elektrokoagülasyon prosesi, son saflaştırma için daha uygundur.

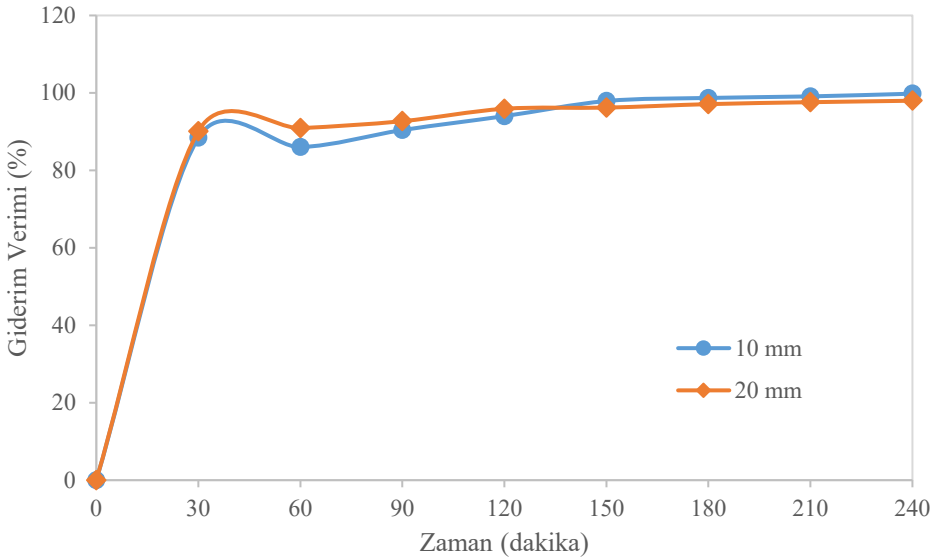


Şekil 4.37. Kullanılan elektrot materyalinin (Al ve Fe ve Al/Fe) elektrokoagülasyon prosesi giderim verimi üzerine etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

4.3.3. Elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için optimum şartlarda çalışılmıştır. Bu durumda proses, ayrı ayrı elektrotlar arası mesafe 10 mm (7 adet elektrot) ve 20 mm (4 adet elektrot) olacak şekilde 1 A akım ve 5 V voltaj değerinde, doğal pH'da 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen

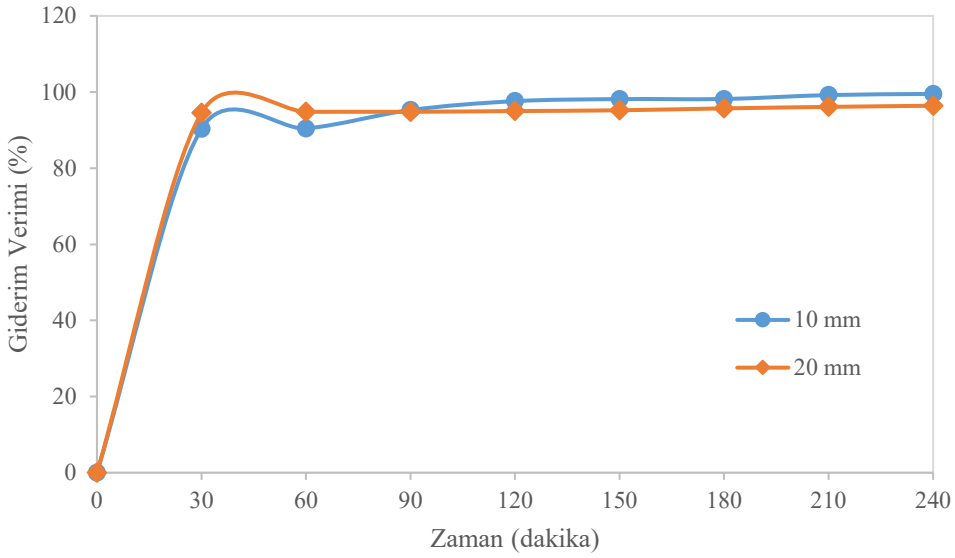
analiz verileri değerlendirildiğinde elektrotlar arası mesafe arttıkça giderim verimi azalmıştır. Al elektrot kullanılan prosesin giderim verimleri 10 ve 20 mm için sırasıyla %99,8 ve %97,9 olmuştur (Şekil 4.38.). Aynı şekilde Fe elektrot için elektrotlar arası mesafe arttıkça giderim verimi azalma göstermiştir. Fe elektrot kullanılan prosesin giderim verimleri 10 ve 20 mm için sırasıyla %99,5 ve %96,4 olmuştur (Şekil 4.39.).



Şekil 4.38. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Sahu ve ark. (2014) daha büyük elektrot mesafesi ile, kütle transferinde ve katılımcı türlerin hareketinde bir azalma olduğunu ve bunun da reaksiyon hızının düşmesine yol açtığını gözlemlemişlerdir. Bununla birlikte, elektrot mesafesi optimum değerin altında olduğunda, elektrokoagülasyon reaktöründeki engelleyici kütle transferiyle ilişkili olarak arsenik giderim verimini düşürmüş, bu da elektrolit direncinin artmasına ve arsenik gideriminin kararsızlığına neden olmuştur. Bir diğer çalışmada, elektrot mesafesinin 0,5'ten 1 cm'ye artmasıyla arsenik giderim yüzdesi %92,47'den %98,51'e yükselmiştir. Elektrotlar arası mesafenin çok az olması (0,5 cm) çözeltinin elektrotlar arasında dolaşmasını zorlaştırır, bu nedenle giderim daha azdır, elektrotlar arası mesafenin 1 cm'ye kadar artmasıyla kademeli olarak artar. Arseniğin hidroksil polimerleri ile daha az etkileşimi nedeniyle elektrot mesafesinin 1,5'ten 2 cm'ye artmasıyla arsenik giderimi azalır. Diğer bir deyişle lokal konsantrasyon ve

elektrostatik çekimdeki azalmalar giderimin azalmasının sebepleridir. İşletme maliyeti, elektrotlar arası mesafenin 0,5'ten 1 cm'ye artmasıyla biraz artar, ardından elektrotlar arası mesafeyle doğrusal olarak artar. Elektrotlar arasındaki mesafe arttıkça akım azalır, dolayısıyla sabit bir akım yoğunluğunu korumak için voltajın yükseltilmesi gerekir, bu da işletme maliyetini daha da artırır. Yukarıdaki tartışmadan, en uygun elektrot mesafesinin 1 cm olduğu bulunmuştur (Thakur ve Mondal, 2017). Çalışma sonucu, tez çalışmasıyla uyumludur.

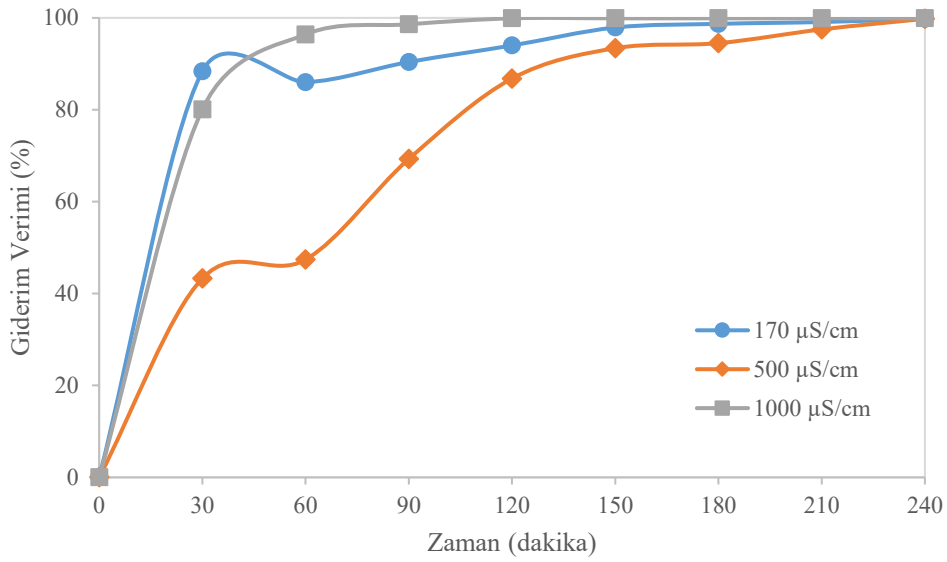


Şekil 4.39. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde elektrotlar arası mesafenin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

4.3.4. İletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken iletkenlik parametresinin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için diğer parametreler (voltaj, amper, sıcaklık, pH vs.) sabit tutularak sadece iletkenlik değişkeni çalışılmıştır. Bu durumda Al elektrotlar kullanılarak 1 A akım ve 5 V voltaj uygulanarak çözeltinin kendi iletkenlik değerinde (170 µS/cm), daha sonra da NaCl ilavesiyle ayarlanan 500 ve 1000 µS/cm'de çalışılmıştır. Proses 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al ve Fe elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde

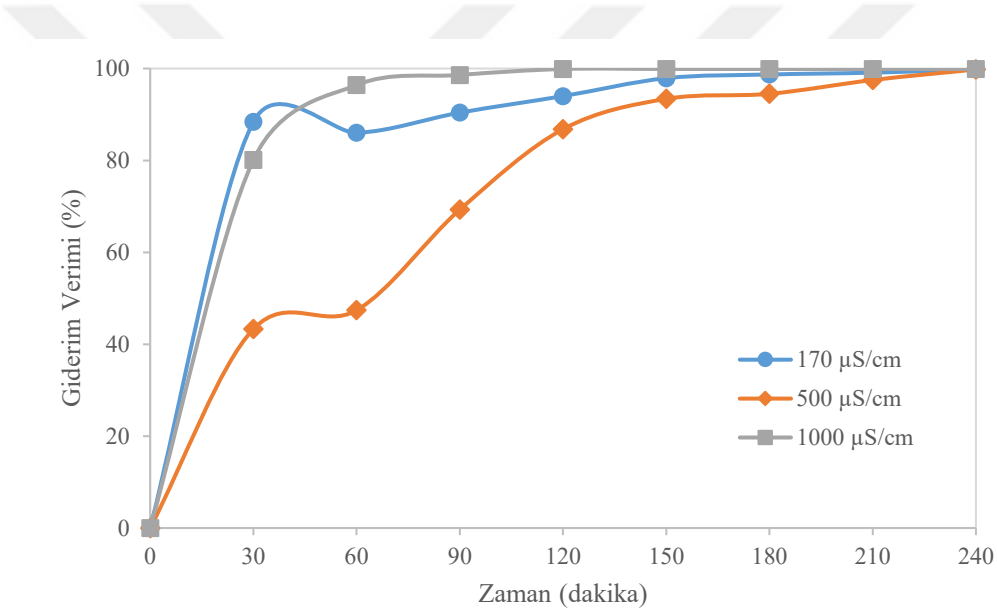
çözeltinin iletkenlik değeri ile giderim verimi arasında doğru orantı olduğu tespit edilmiştir. Proses genelinde Al ve Fe elektrotlar için çözeltinin iletkenlik değeri arttıkça giderim veriminin de arttığı görülmüştür. Al elektrot kullanılan proses giderim verimleri 170, 500 ve 1000 µS/cm iletkenlik değerleri için sırasıyla %99,8, %99,8 ve %99,9 (Şekil 4.40.), Fe elektrot kullanılan proses giderim verimleri 170, 500 ve 1000 µS/cm iletkenlik değerleri için sırasıyla %99,5, %99,9 ve %99,9 olmuştur (Şekil 4.41.).



Şekil 4.40. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Thakur ve Mondal (2017) çalışmalarında arseniğin giderilmesini çözeltinin özgül iletkenliğine de bağlamışlardır. Bu çalışmada ucuz fiyatı ve düşük toksisitesi nedeniyle NaCl destekleyici elektrolit olarak seçilmiştir. NaCl konsantrasyonundaki artış arsenik giderilme yüzdesini %98,51'e yükseltmiştir. Bu, çözeltinin farklı NaCl dozuyla artan iyonik iletkenliği nedeniyle arsenik giderimi hızlı bir şekilde gerçekleşmiştir. Klorür iyonlarının eklenmesi, çözelti iletkenliğini artırarak elektrik akımının geçişini kolaylaştırarak alüminyum elektrotların pasif filmlerini parçalamaktadır (Behbahani ve ark., 2011). Bu durum, alüminyum anotun çözelti içinde daha fazla çözünmesine izin verir ve giderim artar. Kumar ve Goel (2010), her deneysel çalışma sırasında, çözeltinin iletkenliğinin zamanla arttığını ve bunun

sonucunda hücre akımında bir artış olduğunu gözlemiştir. İletkenlikteki artış, anot metalinin çözünmesine atfedilebilir, yani elementel demir, demir ve demir iyonlarına dönüştürülür, katodun siyah rengi ise metal oksitlerin birikmesine bağlanabilir. Çözeltilerin iletkenliğinin arttırılmasıyla arsenik giderme verimliliği artış gösterir. Ayrıca iletkenlikte görülen artışla voltaj ve güç değerleri düşerek enerji tüketimini azaltır. Buna göre, NaCl ilavesi anotta pasivasyon tabakasının oluşmasını engeller ve elektrokoagülasyon prosesinde aşırı omik düşüşü önler. Yüksek iletkenliğin, kimyasal tüketiminde küçük bir artışa neden olmasına rağmen, enerji tüketimini azaltmak ve elektrokoagülasyon performansını iyileştirmekten yana olduğu bildirilmiştir (Song ve ark., 2014).

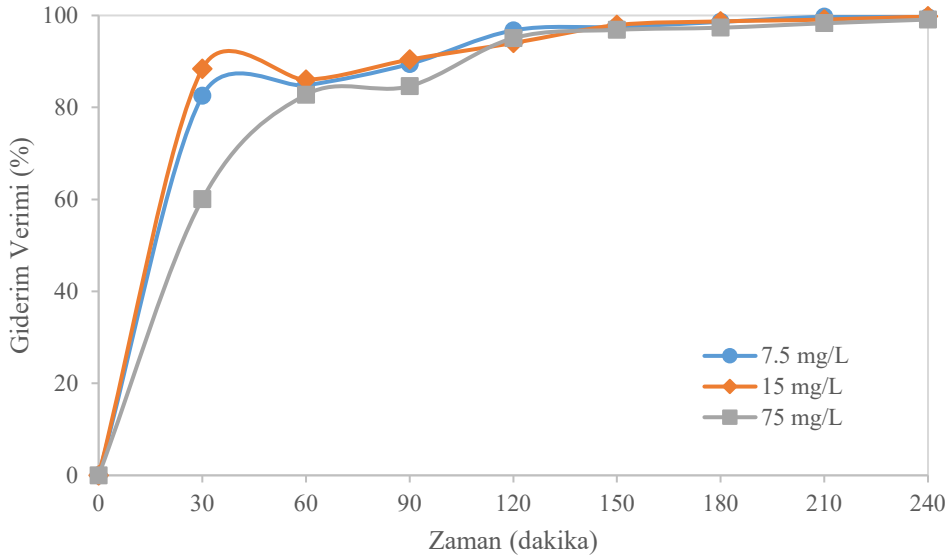


Şekil 4.41. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde iletkenlik değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

4.3.5. Kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken kirletici konsantrasyonunun giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için diğer parametreler (voltaj, amper, sıcaklık, pH, iletkenlik vs.) sabit tutularak sadece kirletici konsantrasyonu değişken parametre olarak çalışılmıştır. Bu durumda proses, Al ve Fe elektrotlar kullanılarak 1 A akım ve 5 V voltaj uygulanarak 7,5 mg/L, 15 mg/L ve 75 mg/L kirletici konsantrasyonlarında

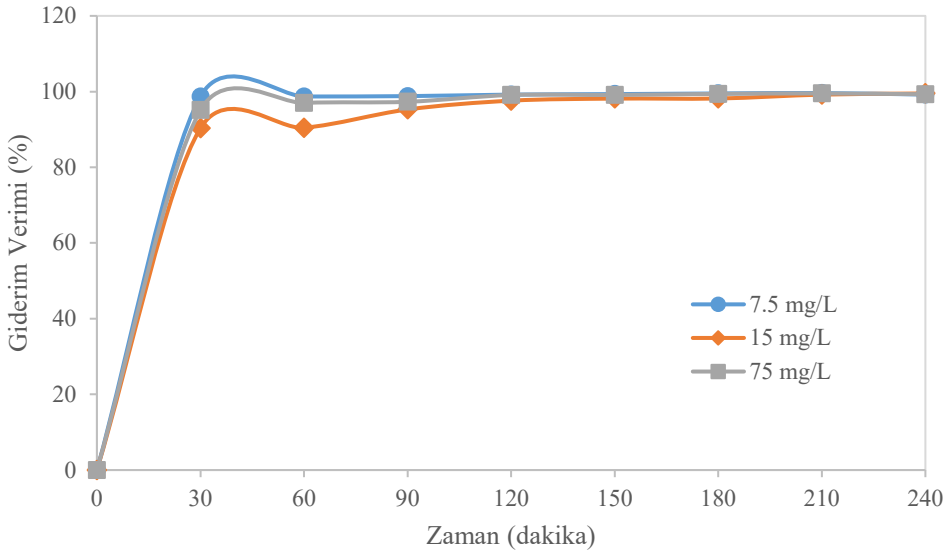
240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Al elektrot kullanılan proses giderim verimleri 7,5 mg/L, 15 mg/L ve 75 mg/L As konsantrasyon değerleri için sırasıyla %99,6, %99,8 ve %99,1 (Şekil 4.42.), Fe elektrot kullanılan proses giderim verimleri 7,5 mg/L, 15 mg/L ve 75 mg/L As konsantrasyon değerleri için sırasıyla %99,2, %99,5 ve %99,3 olmuştur (Şekil 4.43.).



Şekil 4.42. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyon değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Can ve ark. (2014)'nın elde ettikleri deneysel veriler, artan başlangıç arsenik konsantrasyonunun arsenik giderim verimini azalttığını göstermiştir. Bu şu şekilde açıklanabilir; tüm arsenik konsantrasyonları için aynı miktarda Fe^{+3} aynı akım yoğunluğunda çözeltiye geçmesine rağmen, Fe^{+3} daha yüksek arsenik konsantrasyonu içeren çözeltiler için yetersiz kalmıştır. Artan arsenik konsantrasyonu ile çözelti iletkenliği artış göstermiştir. Bu durum sonucunda uygulanan potansiyel ve enerji tüketimi azalmıştır. Banerji ve Chaudhari (2016) tüm başlangıç arsenik konsantrasyonları için, giderim veriminin başlangıçta yüksek olduğunu ardından kademeli olarak bir düşüş izlediğini tespit etmişlerdir. Bu sonuçlar diğer yayınlanmış literatürle uyumlu olmuştur (Amrose ve ark., 2013). Kobya ve ark. (2011) diğer araştırmacıların aksine daha yüksek ilk arsenik konsantrasyonunda daha yüksek arsenik giderme verimliliği, akım yoğunluğu ve elektrot yüzey alanında orantılı bir

artışla elde edilebildiğini savunmuşlardır. Daha yüksek arsenik konsantrasyonlarında arsenik iyonlarının, Fe veya Al elektrotlarının çevresinde kolaylıkla elektrokoagüle olması sonucu giderim verimi artmıştır. Ayrıca beklenildiği gibi işletme süresi arttıkça işletme maliyeti de artmıştır. Bununla birlikte, literatür çalışmaları, artan As konsantrasyonları ile giderim verimlerinde önemli bir düşüş olduğunu bildirmiştir ve arsenik giderim eğilimleri, elektrokoagülasyon prosesinin başlangıcındaki keskin giderimlerle bu çalışmada elde edilenlerle aynı olmuştur.

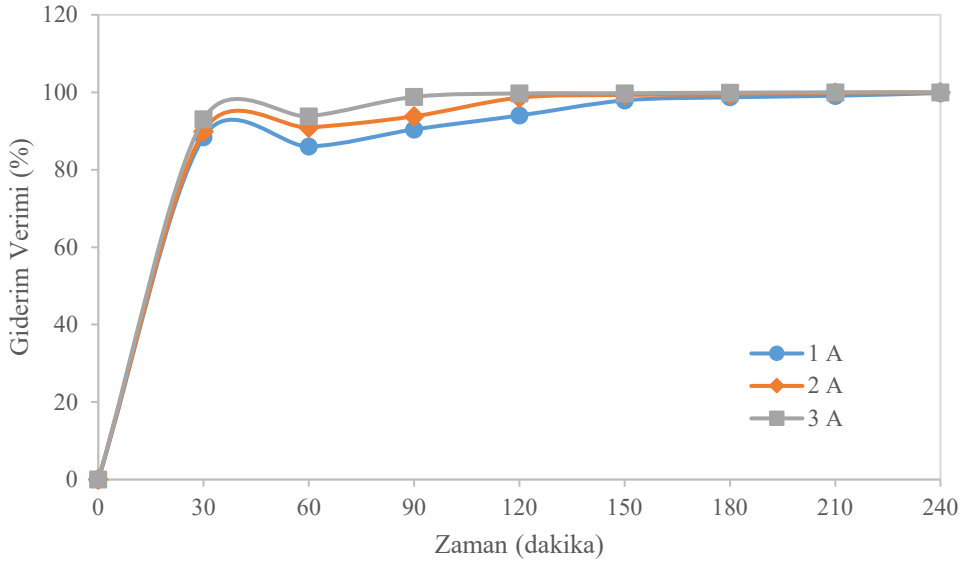


Şekil 4.43. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde kirletici konsantrasyon değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

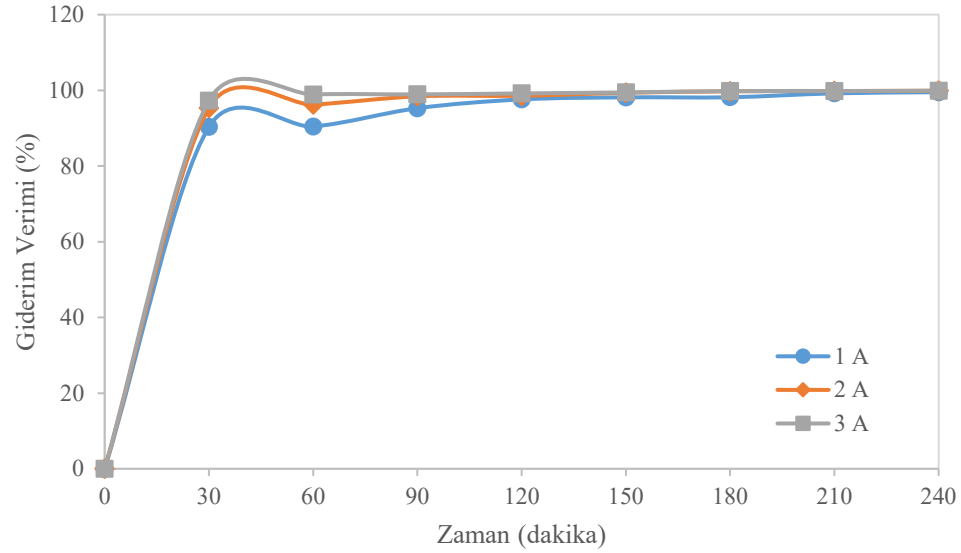
4.3.6. Akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken akım değerinin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için optimum şartlarda çalışılmıştır. Bu durumda proses, ayrı ayrı 1 A, 2 A ve 3 A akım uygulanarak 5 V ve doğal pH'da 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Rigol DP832A Programlanabilir 3 Kanal DC Güç Kaynağı kullanılmıştır. Al ve Fe elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde akım arttıkça giderim verimi de artış göstermiştir. Al elektrotlara ait giderim verimleri 1 A, 2 A ve 3 A için sırasıyla %99,8, %99,9 ve

%99,9 olmuştur (Şekil 4.44.). Fe elektrotlara ait giderim verimleri 1 A, 2 A ve 3 A için sırasıyla %99,5, %99,8 ve %99,9 (Şekil 4.45.).



Şekil 4.44. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

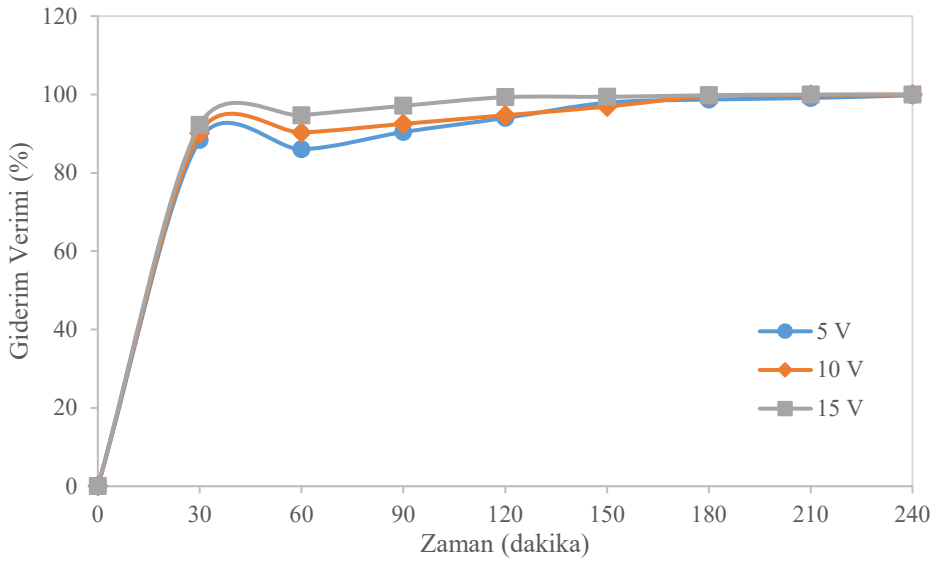


Şekil 4.45. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

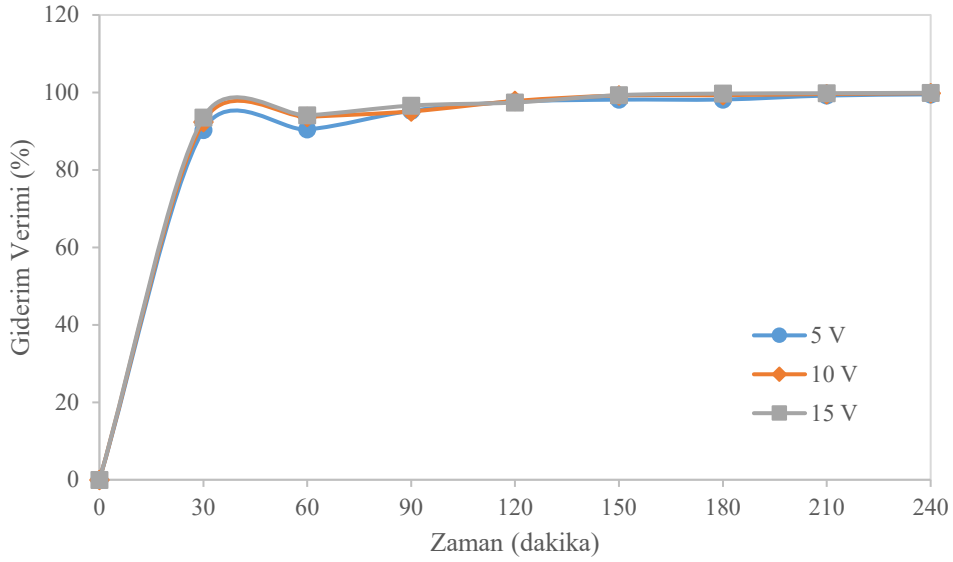
Omwene ve ark. (2010)'un yaptıkları çalışmada uygulanan daha yüksek akımda, özellikle 0,1 A'da, Fe için >%95,05 ve Al için > %94,52 giderme verimliliği elde etmişlerdir. As konsantrasyonunu limit değerlerin (≤ 10 µg/L) altına indirmek için Fe ve Al elektrotlar için sırasıyla 6 ve 30 dakikalık çalışma süresi gerekli olmuştur. Uygulanan akımın artmasıyla gerekli çalışma süresinin azalması, daha yüksek metal çözünme hızı ile ilişkilidir. Uygulanan yüksek akım değerlerinde daha fazla Fe^{+2} veya Al^{+3} iyonu elde edilmiş ve sonuç olarak bunlar arseniğin giderim verimini arttırmıştır (Gomes ve ark., 2007). Çeşitli araştırmacılar, akım yoğunluğunun EK tarafından arsenik giderimi üzerindeki etkisini değerlendirmiştir (Kobya ve ark., 2011; Kumar ve ark., 2004). Banerji ve Chaudhari (2016) akım yoğunluğunun EK tarafından As(III) giderimi üzerindeki etkisini belirlemek için deneyler yapmışlardır. Sonuç olarak daha düşük akım yoğunluğunun —15 mA > 30 mA > 60 mA— daha iyi arsenik giderimi sağladığı ve As(III) oksidasyon veriminin de aynı sırada arttığı görülmüştür, bunun nedeni muhtemelen Fe(IV)'ün etkisiz kullanımı olabilir.

4.3.7. Voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi

Elektrokoagülasyon prosesi işletilirken voltaj değerinin giderim verimi üzerindeki etkisini belirlemek için optimum şartlarda çalışılmıştır. Bu durumda proses, ayrı ayrı 5 V, 10 V ve 15 V uygulanarak 1 A akım ve doğal pH'da 240 dakika boyunca işletilmiştir ve her 30 dakikada bir numune alımları yapılmıştır. Rigol DP832A Programlanabilir 3 Kanal DC Güç Kaynağı kullanılmıştır. Al ve Fe elektrot kullanılarak kesikli olarak işletilen elektrokoagülasyon proseslerinden elde edilen analiz verileri değerlendirildiğinde voltaj değeri arttıkça giderim verimi çok az oranda değişkenlik göstermiştir. Her iki elektrot kullanımında da voltaj değerlerinin artmasıyla giderim verimleri de artmıştır. Al elektrotla çalıştırılan reaktöre ait giderim verimleri 5 V, 10 V ve 15 V için sırasıyla %99,8, %99,9 ve %99,9 olmuştur (Şekil 4.46.). Fe elektrotlara ait giderim verimleri 5 V, 10 V ve 15 V için sırasıyla %99,5, %99,9 ve %99,9'tür (Şekil 4.47.).



Şekil 4.46. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 7,5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)



Şekil 4.47. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde voltaj değişiminin giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2)

Atasoy ve ark. (2021)'in yaptıkları çalışmada kısa elektrokoagülasyon ile arsenik gideriminde zamana bağlı voltaj etkisi de araştırılmıştır. Bu bağlamda 5 V, 10 V ve 15 V gerilim uygulamaları için As giderim oranları, artan süre ile önemli ölçüde artmıştır.

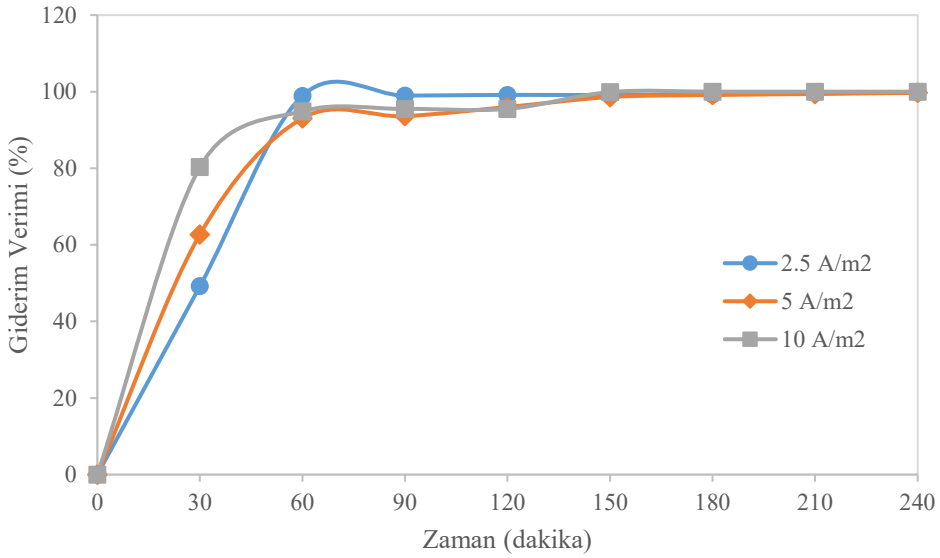
Ancak düşük voltaj değerlerinde (2 V, 2,5 V ve 3 V) As gideriminde zaman içinde önemli bir değişiklik gözlenmemiştir.

4.3.8. Akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi

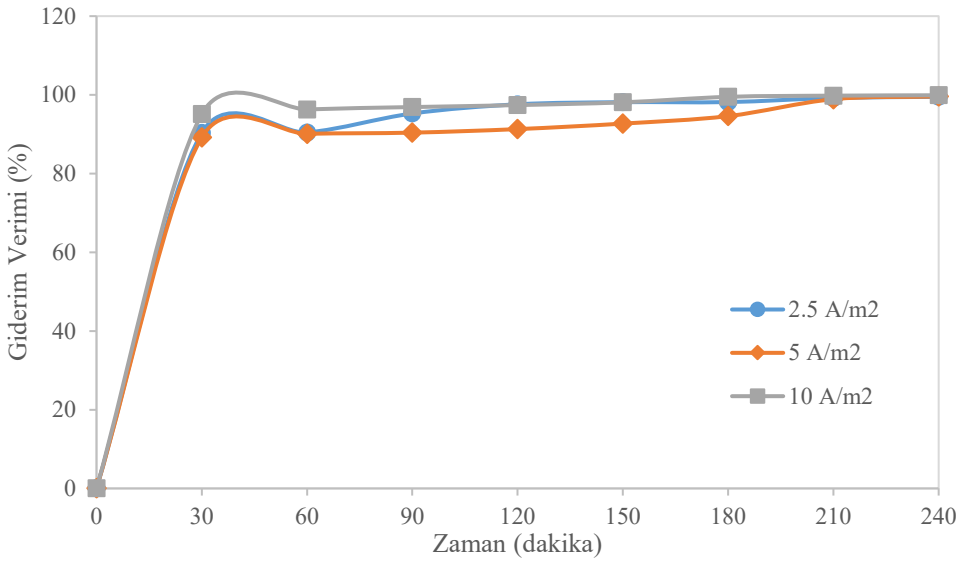
pH: 4,5, süre: 240 dakika, iletkenlik: 170 µS/cm ve başlangıç konsantrasyonu: 15 mg/L sabit tutularak 2,5 A/m^2, 5 A/m^2 ve 10 A/m^2 aralığında araştırılmıştır. Bu değerlerin seçilme nedeni optimum koşullar olmasındandır. Al elektrot kullanılarak yapılan çalışmaya ait akım yoğunluğuna bağlı giderim verimleri gösterilmiştir. Al ve Fe elektrot ile yapılan çalışmalarda akım yoğunluğu 2,5 A/m^2 den 10 A/m^2 ye arttırıldığında, reaktörde giderim verimi %100'e kadar çıkmıştır. Reaktördeki akım yoğunluğu değerindeki artış ile anodik çözünme miktarının arttığı ve bunun sonucunda arsenik gideriminin sağlanması için gerekli flok miktarının artış gösterdiği belirlenmiştir. Şekil 4.48.'de Al elektrot kullanılarak işletilen prosese ait giderim verimlerinin grafiği verilmiştir. Buna göre uygulanan akım yoğunluğu arttıkça giderim verimleri de doğru orantılı olarak artış göstermiştir. Şekil 4.49.'de Fe elektrot kullanılarak işletilen prosese ait giderim verimlerinin grafiği verilmiştir. Buna göre uygulanan akım yoğunluğu arttıkça giderim verimleri de doğru orantılı olarak artış göstermiştir.

Can ve ark. (2014) yaptıkları çalışmada akım yoğunluğunun 0,18 mA/cm^2'den 1,07 mA/cm^2'ye çıkarılmasının arsenik giderme verimini daha da artırdığını tespit etmişlerdir. Akım yoğunluğunun artmasıyla demirin çözünme hızı artmış ve böylece sabit miktarda kirletici daha fazla $Fe(OH)_3$ ile reaksiyona girmiş ve daha fazla kirletici uzaklaştırılmıştır. Akım yoğunluğunun 0,18 mA/cm^2'den 1,07 mA/cm^2'ye çıkarılması sonucu arsenik giderim verimi %88,88'den %99,68'e yükselmiştir. Kobya ve ark. (2016) tarafından elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun ve işletim süresinin önemli iki parametre olduğu tespit edilmiştir. 1,75, 2,50 ve 5,00 A/m^2 (uygulanan akımlar: 0,038, 0,05 ve 0,11 A) farklı akım yoğunluklarında ve farklı elektrokoagülasyon sürelerinde çalışılmıştır. Sonuç olarak akım yoğunluğu arttıkça elektrokoagülasyon işletim süresi azalmış ve giderim verimi artmıştır. Thakur ve Mondal (2017) akım yoğunluğunun işletme maliyeti üzerindeki etkisini, arseniğin

giderim yüzdesini anlamak için, 10-60 A/m^2 aralığında farklı akım yoğunluklarında birkaç laboratuvar deneyi yapmışlardır. Akım yoğunluğu 10 A/m^2 işletme maliyetinde, arsenik giderim yüzdesi %96,11 bulunmuştur. 40 A/m^2 ve üzerindeki akım yoğunluğu arsenik kalıntı konsantrasyonu 10 µg/L altına düşmüştür ve bu, DSÖ yönergelerine göre güvenli içme suyu kapsamına girmiştir. Arseniğin maksimum giderim yüzdesi 60 A/m^2 akım yoğunluğunda %99,47 bulunmuştur. Bu, sırasıyla anot ve katotta yüksek miktarda Al^{+3} ve OH^- iyonlarının oluşmasına ve yüksek akım yoğunluğu uygulandığında bunların $AlOH_3$ oluşturmak üzere bir araya gelmesine atfedilebilir.



Şekil 4.48. Al elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm)



Şekil 4.49. Fe elektrot kullanılarak işletilen elektrokoagülasyon prosesinde akım yoğunluğunun giderim verimi üzerindeki etkisi (başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm)

4.3.9. Gerçek su numunesi ile giderim çalışması

4.3.9.1. Karaali Jeotermal Sahası jeoloji ve hidrojeolojisi

Karaali jeotermal alanının akifer kaynağını, alanda bariyer görevini üstlenen ve çevresinde bulunan Paleosen yaşlı tortul kayaçlar oluşturmaktadır. Özellikle paleosen birimler üzerindeki kireçtaşları ise yeraltı suyu açısından zengindir. Bölgenin çevresini karstik özelliğe sahip olan eosen yaşlı kireçtaşları kaplamaktadır. Ovanın kuzey bölgelerinde Akçakale grabeni olarak adlandırılan alüvyon dolgulu düzlükler ile aralarında yüzeylenen eosen yaşlı kireçtaşları bulunmaktadır. Bölgenin doğusunda miyosen kireçtaşları geniş bir alanı kaplamaktadır. Bölgenin batısında ise oligo–miyosen yaşlı kireçtaşları yüzeylenmiştir (Baba ve ark., 2015). Sahanın dış cephelerinde paleozoyikten eosene kadar değişik türde ve yaşta kaya birimleri mevcuttur.

Güneydoğu Anadolu Bölgesi'nde yer alan jeotermal sahaların hidrojeolojik, jeolojik, hidrojeokimyasal özellikleri, potansiyelleri ve kullanım alanları ile ilgili GAP illeri jeotermal kaynakları araştırma projesi kapsamında araştırmalar yürütülmüştür.

Güneydoğu Anadolu Bölgesi, jeotermal kaynaklar bakımından zengin ve önemli bir paya sahiptir. Bununla birlikte Karaali Jeotermal Sahası'ndaki sıcak su kaynağı termal turizm amacına hizmet etmektedir.

Çalışma sahasında yer alan jeotermal kuyu ve kaynaklardan fiziksel ve kimyasal analizlerin yapılabilmesi için numune alımları yapılmıştır. Bu numunelerde pH, sıcaklık ve elektriksel iletkenlik gibi parametre ölçümleri sahada yapılmıştır. Daha sonra laboratuvar ortamında eser element analizleri gerçekleştirilmiştir. Ayrıca, bu numunelerde ağır metal analizleri de yapılmıştır. Elde edilen bulgular ışığında arsenik değeri 44 µg/L ile limit değerlerinin çok üzerinde tespit edilmiştir. Bu sonuca göre sahadaki sıcak suyun kesinlikle içme amaçlı kullanılmaması gerektiği rapor edilmiştir. Ayrıca numune analizlerinde yüksek konsantrasyonlarda molibden (146 µg/L), vanadyum (2406 µg/L) ve selenyum (153 µg/L) da bulunmuştur (GAP, 2015).

Mevcut tez çalışmasında bölgeden alınan su numunelerinde analizi yapılan parametreler Çizelge 4.6.'da sunulmuştur. Buna göre arsenik konsantrasyonu 1,264 mg/L çıkmıştır.

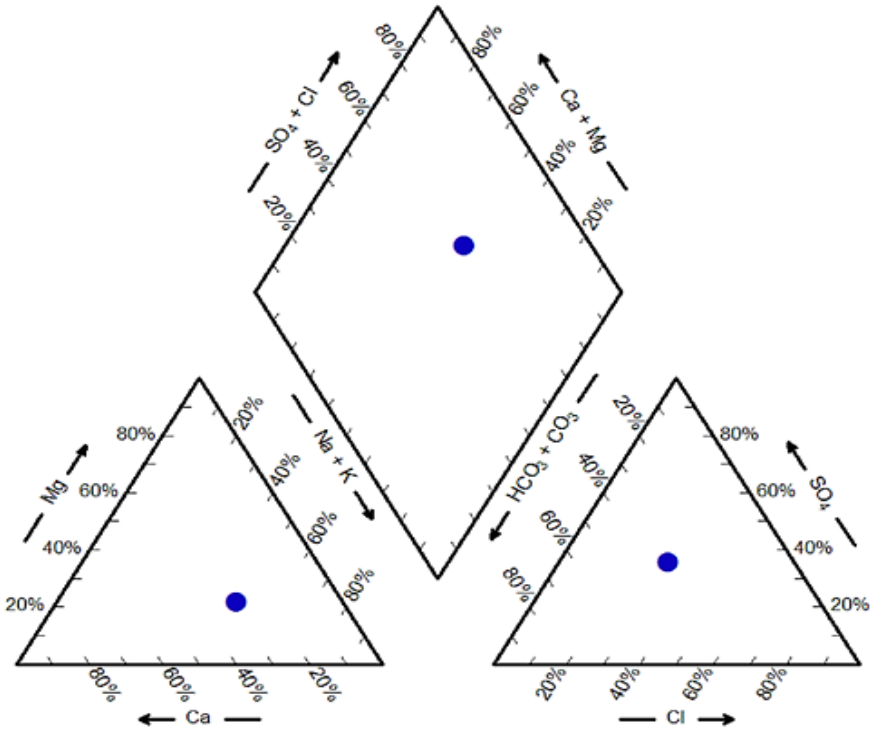
Çizelge 4.6. Çalışma alanındaki yeraltı sularının fizikokimyasal özellikleri

Parametre	**Değer**
pH	7,81
Elektriksel iletkenlik (µS/cm)	815
Sıcaklık (ºC)	25
As (mg/L)	**1,264**
Cl^- (mg/L)	51,89
NO_3^- (mg/L)	28,4
SO_4^{-2} (mg/L)	84,02
Mg^{+2} (mg/L)	16,44
Ca^{+2} (mg/L)	36,88
Na^+ (mg/L)	65,96
HCO_3^- (mg/L)	107,5
K^+ (mg/L)	8,02

Karaali jeotermal sahasında ölçülen EC değeri 815 µs/cm, pH değeri ise 7,8'dir. Çalışma alanındaki jeotermal suda yapılan kimyasal analizlerin sonuçları, suyun hidrojeokimyasal fasiyesini belirlemek amacıyla Piper ve Schoeller diyagramları üzerine yerleştirilmiştir. Karaali jeotermal sahasında görülen başlıca katyonlar Ca^{+2} ve

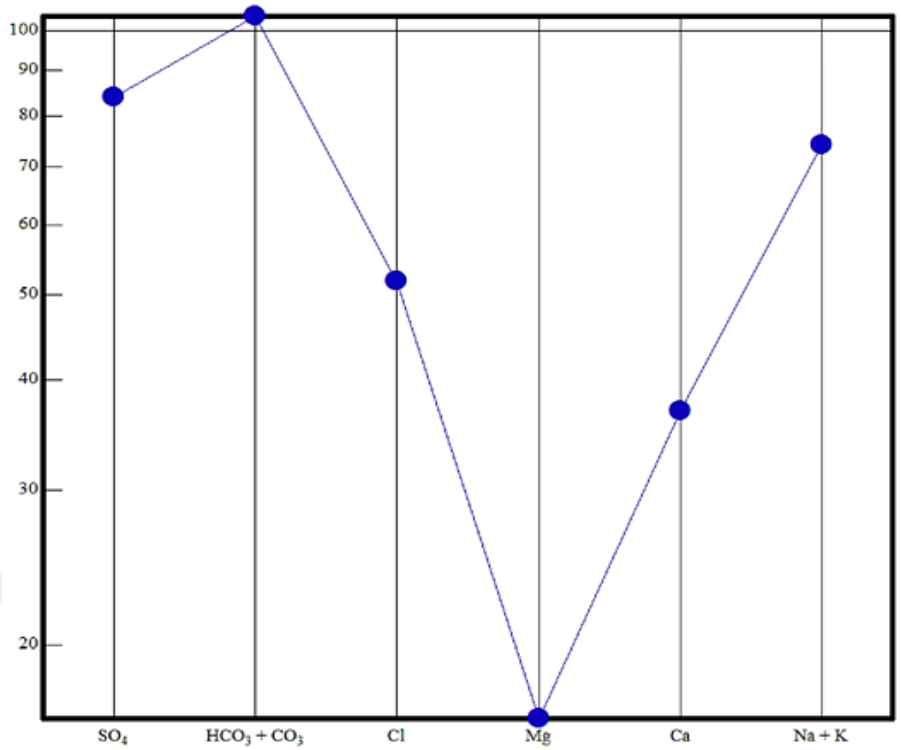
Na^+, anyon ise HCO_3^-'tür. Mevcut çalışma ile Baba ve ark. (2018)'nın yaptıkları çalışma karşılaştırıldığında, sahadan alınan numunelerde belirlenen başlıca iyonların benzerlik gösterdiği görülmüştür.

Piper diyagramına göre dört hidrokimyasal fasiyes tanımlanmıştır: (1) $SO_4 \cdot Cl^- – Ca^{+2} \cdot Mg^{+2}$; (2) $HCO_3^- – Na^+$; (3) $HCO_3^- – Ca^{+2} \cdot Mg^{+2}$; (4) $SO_4 \cdot Cl^- – Na^+$. Şekil 4.50.'te gösterildiği gibi, çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleme noktaları, öncelikle $HCO_3^- – Na^+ \cdot Ca^{+2} \cdot Mg^{+2}$ olan ana hidrokimyasal fasiyeslerde yer almaktadır. Katyon ve anyonların baskınlık sırası sırasıyla $Na^+ > Ca^{2+} > Mg^{2+} > K^+$ ve $HCO_3^- > SO4^{2-} > Cl^- > NO_3^-$ şeklindedir.



Şekil 4.50. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Piper diyagramı

Yarı Logaritmik Schoeller Diyagramı'na göre çalışma alanındaki yeraltı sularının neredeyse tamamı $Na^+ + HCO_3^-$'tür (Şekil 4.51.). Bu sonuçlar Piper diyagramındaki sonuçlarla tutarlıdır.



Şekil 4.51. Çalışma alanındaki yeraltı suyu örnekleri için Schoeller diyagramı

4.3.9.2. Elektrokoagülasyon ile giderim çalışması

Elektrokoagülasyon prosesi ile arsenik konsantrasyonu, Al ve Fe elektrotlar kullanılarak DSÖ içme suyu yönergelerine göre maksimum kirletici seviyesinin altına başarıyla düşürülmüştür. Arsenik giderimi her iki elektrot türü için %99,9 olarak bulunmuştur. Metal hidroksit türlerinin (hem Al hem de Fe hidroksitler) çözünürlüğü büyük ölçüde sulu ortamın kimyasına bağlıdır. Hem başlangıç pH'ı hem de elektrokoagülasyon sırasında pH'ın yükselmesi veya azalması arsenik çözünürlüğünü ve dolayısıyla giderim performansını da etkiler. Hem Al hem de Fe elektrot kullanılarak yeraltı sularından elektrokoagülasyon ile arsenik giderimi başarıyla sağlanmıştır. Her iki elektrotta giderim üzerinde yaygın kullanıma sahiptir. Çizelge 4.7.'de elektrokoagülasyon çalışma koşulları ve enerji tüketimi verilmiştir.

Çizelge 4.7. Elektrokoagülasyon çalışma koşulları ve enerji tüketimi

Parametre	Elektrokoagülasyon prosesi	
Elektrot materyali	Al	Fe
Akım yoğunluğu (A/m^2)	5,2	5,8
Sıcaklık (ºC)	25	25
Başlangıç pH	7,76	7,87
Bitiş pH	7,60	7,63
Başlangıç elektriksel iletkenlik (µS/cm)	807	767
Bitiş elektriksel iletkenlik (µS/cm)	627	434
Çalışma süresi (dakika)	240	240
Enerji tüketimi (kWh/m^3)	0,46	0,51

4.3.10. Enerji tüketimi

Elektrokoagülasyon prosesindeki önemli ekonomik parametrelerden biri de elektrik enerjisi tüketimidir. Çalışmanın Al ve Fe elektrot ile 240 dakikalık bir reaksiyon süresi için minimum enerji tüketimi sırasıyla 5,2 A/m^2 ve 5,8 A/m^2 akım yoğunluğunda 0,46 kWh/m^3 ve 0,51 kWh/m^3 değerinde hesaplanmıştır. Bu hesaplamalar, elektrokoagülasyon prosesindeki operasyonel parametreler optimize edildikten sonra yapılmıştır (Yazdanbakhsh ve ark., 2015). As gideriminin litre veya metreküp başına maliyetine ilişkin çeşitli hesaplamalar vardır. Thakur ve Mondal (2017)'nin yaptıkları bir çalışmada 10 A/m^2 akım yoğunluğunda işletme maliyetinin 0,357 $/m^3 olduğu bulunmuştur. Başka bir çalışmada Al top elektrotlu havalandırmalı bir elektrokoagülasyon reaktörü As(III) giderimi için incelenmiştir ve toplam işletim maliyeti 0,583 $/m^3 olarak bulunmuştur (Goren ve ark., 2020). Bu araştırmada, Karaali jeotermal sahasından yapılan örnekleme çalışması için güncel elektrik maliyetleri kullanılarak Al elektrot ile As giderimi için litre başına 0,11 $, Fe elektrot ile As giderimi için litre başına 0,12 $'lık bir maliyet hesaplanmıştır. Elektrokoagülasyon prosesi ile arsenik giderimi çok kısa sürelerde gerçekleştiği için maliyeti de düşük seviyelerde olmuştur. Bu nedenle elektrokoagülasyon prosesi arsenik gideriminde tercih edilebilir çevre dostu bir yöntemdir.

5. SONUÇLAR ve ÖNERİLER

5.1. Sonuçlar

Bu tez çalışmasında, Al ve Fe elektrotların kullanıldığı bir elektrokoagülasyon prosesinde pH seviyesi, elektrik akımı, elektrotlar arasındaki mesafe, elektrot türü, iletkenlik, konsantrasyon, akım yoğunluğu gibi ana işletim bileşenlerinin sentetik ve gerçek yeraltı sularından florür, nitrat ve arsenik kirleticilerinin giderilmesi üzerindeki etkisi araştırılmıştır. Ana işletim bileşenlerinin kirleticilerin giderim verimliliğini büyük ölçüde etkilediği görülmüş olup, elektrokoagülasyon yönteminin florür, nitrat ve arseniğin yeraltı sularından uzaklaştırılmasında başarı ile uygulanabileceği belirlenmiştir.

Elektrokoagülasyon yöntemi ile florür giderimi çalışmaları sentetik ve gerçek yeraltı suyu olmak üzere iki farklı koşulda yapılmıştır. Sentetik su ile yapılan giderim çalışmalarının optimize edilmiş çalışma koşulları; başlangıç pH: 7,5, başlangıç florür konsantrasyonu: 5 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 50 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2, işletim süresi 240 dakika olarak belirlenmiştir. Her iki elektrot türünde (Al ve Fe) de aynı çalışma koşulları kullanılmıştır. Yapılan deneysel çalışma sonuçlarına göre alüminyum elektrot kullanılan proseslerde giderim verimi demir elektrot kullanılan proseslere oranla daha fazla elde edilmiştir. Sarım-Karataş bölgesinden alınan gerçek yeraltı suyunda tespit edilen anyon ve katyonların baskınlık sırası sırasıyla $Na^{+} > Ca^{+2} > Mg^{+2} > K^{+}$ ve $HCO_3^{-} > Cl^{-} > SO_4^{-2} > NO_3^{-}$ şeklindedir. Gerçek yeraltı suyu çalışma koşulları ise Al elektrot kullanılan proseste başlangıç pH: 8,9, başlangıç florür konsantrasyonu: 1,65 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 486 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 3,1 A/m^2, çalışma süresi 240 dakika olmuştur. Demir elektrot kullanılan proseste ise pH: 7,46, başlangıç florür konsantrasyonu: 1,65 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 480 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 4,6 A/m^2, çalışma süresi 240 dakikadır. Bu koşullar altında florür

giderimi Al ve Fe elektrotlar için sırasıyla %99,4 ve %71,6 olarak bulunmuştur. Çalışmanın 240 dakikalık bir reaksiyon süresi için minimum enerji tüketimi Al ve Fe elektrotlar için sırasıyla, 3,1 A/m^2 ve 4,6 A/m^2 akım yoğunluğunda 0,54 kWh/m^3 ve 0,71 kWh/m^3 değerinde hesaplanmıştır. Ayrıca Sarım-Karataş bölgesinden örneklenen yeraltı suyu için güncel elektrik maliyetleri kullanılarak Al elektrot kullanılan proses ile florür giderimi için litre başına 0,13 $, Fe elektrot kullanılan proses ile florür giderimi için litre başına 0,17 $'lık bir maliyet hesaplanmıştır. Arıtılmış sudaki nihai florür konsantrasyonu, bu çalışmada kullanılan tüm konfigürasyonlar için DSÖ yönergelerine göre belirlenen yasal sınırın (1,5 mg/L) altında bulunmuştur.

Elektrokoagülasyon yöntemi ile nitrat giderimi çalışmaları sentetik ve gerçek yeraltı suyu olmak üzere iki farklı koşulda yapılmıştır. Sentetik su ile yapılan giderim çalışmalarının optimize edilmiş çalışma koşulları; başlangıç pH: 6, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 50 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 100 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2, işletim süresi 240 dakika olarak belirlenmiştir. Her iki elektrot türünde (Al ve Fe) de aynı çalışma koşulları kullanılmıştır. Yapılan deneysel çalışma sonuçlarına göre alüminyum elektrot kullanılan proseslerde giderim verimi demir elektrot kullanılan proseslere göre daha fazla elde edilmiştir. Harran Ovası gerçek yeraltı suyunda tespit edilen anyon ve katyonların baskınlık sırası sırasıyla $Ca^{+2} > Na^{+} > Mg^{+2} > K^{+}$ ve $NO_3^{-} > Cl^{-} > SO_4^{-2} > HCO_3^{-}$ şeklinde olmuştur. Gerçek yeraltı suyu çalışma koşulları ise Al elektrot kullanılan proseste başlangıç pH: 7,45, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 550 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 2350 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,31 A/m^2, çalışma süresi 240 dakika olmuştur. Demir elektrot kullanılan proseste ise başlangıç pH: 7,45, başlangıç nitrat konsantrasyonu: 550 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 2350 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 3,1 A/m^2, çalışma süresi 240 dakikadır. Bu koşullar altında nitrat giderimi Al elektrot kullanılan proses için %62,26, Fe elektrot kullanılan proses için %39,32 olarak elde edilmiştir. Çalışmanın 240 dakikalık bir reaksiyon süresi için minimum enerji tüketimi Al ve Fe elektrotlar için sırasıyla 2,31 A/m^2 ve 3,1 A/m^2 akım yoğunluklarında 2,07 kWh/m^3 ve 2,91 kWh/m^3 değerinde hesaplanmıştır. Harran

Ovası'ndan örneklenen Uğurlu yeraltı suyu için güncel elektrik maliyetleri ile Al elektrot kullanılarak yapılan nitrat giderimi çalışmalarında litre başına 0,49 $, Fe elektrot kullanılarak yapılan nitrat giderimi çalışmalarında ise litre başına 0,7 $'lık bir maliyet hesaplanmıştır. Arıtılmış sudaki nihai nitrat konsantrasyonu, bu çalışmada kullanılan tüm konfigürasyonlar için DSÖ yönergelerine göre belirlenen yasal sınırın (50 mg/L) altında bulunmuştur.

Elektrokoagülasyon yöntemi ile arsenik giderimi çalışmaları sentetik ve gerçek yeraltı suyu olmak üzere iki farklı koşulda yapılmıştır. Sentetik su ile yapılan giderim çalışmalarının optimize edilmiş çalışma koşulları; başlangıç pH: 4,5, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 15 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 170 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 2,5 A/m^2, işletim süresi 240 dakika olarak belirlenmiştir. Her iki elektrot türünde (Al ve Fe) de aynı çalışma koşulları kullanılmıştır. Yapılan deneysel çalışma sonuçlarına göre alüminyum elektrot kullanılan proseslerde giderim verimi demir elektrot kullanılan proseslere göre nispeten daha fazla elde edilmiştir. Karaali Jeotermal Sahası gerçek yeraltı suyunda tespit edilen anyon ve katyonların baskınlık sırası sırasıyla $Na^+ > Ca^{2+} > Mg^{2+} > K^+$ ve $HCO_3^- > SO4^{2-} > Cl^- > NO_3^-$ şeklindedir. Gerçek yeraltı suyu çalışma koşulları ise Al elektrot kullanılan proseste başlangıç pH: 7,76, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 1,264 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 807 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 5,2 A/m^2, çalışma süresi 240 dakika olmuştur. Demir elektrot kullanılan proseste ise başlangıç pH: 7,87, başlangıç arsenik konsantrasyonu: 1,264 mg/L, başlangıç çözelti iletkenliği: 767 µS/cm, uygulanan akım: 1 A, uygulanan voltaj: 5 V, elektrotlar arası mesafe: 10 mm, akım yoğunluğu: 5,8 A/m^2, çalışma süresi 240 dakikadır. Bu koşullar altında arsenik giderimi her iki elektrot türü için %99,9 olarak bulunmuştur. Çalışmanın 240 dakikalık bir reaksiyon süresi için minimum enerji tüketimi Al ve Fe elektrotlar için sırasıyla 5,2 A/m^2 ve 5,8 A/m^2 akım yoğunluklarında 0,46 kWh/m^3 ve 0,51 kWh/m^3 değerinde hesaplanmıştır. Karaali jeotermal sahası yeraltı suyu için güncel elektrik maliyetleri ile Al elektrot kullanılarak yapılan arsenik giderimi çalışmalarında litre başına 0,11 $, Fe elektrot kullanılarak yapılan arsenik giderimi çalışmalarında ise litre başına 0,12 $'lık bir maliyet hesaplanmıştır. Arıtılmış sudaki

nihai arsenik konsantrasyonu, bu çalışmada kullanılan tüm konfigürasyonlar için DSÖ yönergelerine göre belirlenen yasal sınırın (10 µg/L) altında bulunmuştur.

Temel kirleticilerin giderilmesi için basit, uygun maliyetli ve oldukça verimli su arıtma teknolojilerinden biri olan elektrokoagülasyona gösterilen ilgi gün geçtikçe artmaktadır. Bu tez çalışması kapsamında elektrokoagülasyon prosesi, florür, nitrat ve arsenik kirleticilerini yeraltı sularından verimli bir şekilde uzaklaştırmak için gelecek vaat eden, yetkin bir elektrokimyasal proses olarak kabul edilmiştir.

5.2. Öneriler

Elektrokoagülasyon, ekonomik bir teknoloji olarak kabul edilen ve genel olarak Al veya Fe anotların kullanılmasıyla daha yüksek giderim verimlerinin elde edildiği bir prosestir. Bu elektrokimyasal teknoloji, bazı durumlarda tamamen gidermeyi başaramasa da yüksek kirletici içeriklerini önemli ölçüde azaltabilir. Elektrokoagülasyon yaklaşımında en ekonomik metodolojileri önermek için Zn ve Cu gibi alternatif malzemeler kurban anotlar olarak kullanılabilir. Ayrıca, uygulamada çok daha çekici eko-sürdürülebilir prosesler için, pahalı olmayan ve yenilenebilir enerjilerin (güneş ışığı veya rüzgâr enerjisi) alternatif kullanımı da araştırılabilir.

Elektrokoagülasyon çalışma koşullarını optimize etmek için yanıt yüzey metodoloji (RSM) ve Box-Behnken tasarımı gibi optimizasyon yöntemleri kullanılabilir.

Daha düşük enerji gereksinimleri olan kirleticileri daha yüksek verimlilikle giderebilen birkaç başka tamamlayıcı ile elektrokoagülasyon prosesi veya ön/son arıtma olarak kombine/hibrit elektrokoagülasyon teknolojileri kullanılabilir. Çevrenin korunması için elektrokoagülasyon gibi elektrokimyasal teknolojilerin etkili bir şekilde uygulanmasını ve kullanılmasını sağlamada disiplinler arası çalışmalar yapılabilir.

Elektrokoagülasyon prosesinin kirletici atık üretiminin olmaması ile başlatma, çalıştırma ve bakım giderlerinin de düşük olması gibi avantajlarının yanı sıra özellikle büyük ölçekli proseslerde, elektrik tüketimi ve önemli miktarda spesifik pompa gücü gerektiren sürekli çalışma modu ana dezavantajları arasında sayılabilir. Bu dezavantajları minimize etmek ve geri kazanılmış su üretmek için güneş (güneş fotovoltaik hücresinden) veya rüzgâr (yel değirmeninden) gibi yenilenebilir enerji kaynakları ile büyük ölçekli elektrokoagülasyon proseslerine enerji akışı sağlanabilir. Ayrıca yerçekimsel su akış sistemiyle birleştirilen elektrokoagülasyon prosesi, özellikle elektriğin olmadığı kırsal bölgelerde avantajlı olabilir.

Bu çalışma, elektrokoagülasyon prosesi ile kirletici madde giderimini, kirlilik kontrolünün sağlanmasını ve bu sayede hibrit sistemlerin geliştirilmesine fayda sağlayabilir. Ayrıca, proses tasarım uygulamalarını geliştirmek için ampirik bir veri tabanı oluşturulmasıyla birlikte bireysel/endüstriyel uygulamalarda uzun vadeli büyük ölçekli çalışmalara temel oluşturabilir.

KAYNAKLAR

AAYEF, A. N., AL MASOODI, W. T. M., KAMEL, R. J., ABDULREDHA, M., ALMANSOORI, N. A., KOT, P., and MURADOV, M., 2021. An experimental study for adapting electrocoagulation as a technique for fluoride removal from water. In IOP Conference Series: Materials Science and Engineering IOP Publishing 1058(1): 012012.

ABDEL-AZIZ, M. H., EL-ASHTOUKHY, E. Z., ZOROMBA, M. S., BASSYOUNI, M., and SEDAHMED, G. H., 2020. Removal of nitrates from water by electrocoagulation using a cell with horizontally oriented Al serpentine tube anode. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 82: 105–112.

ABDULHADI, B. A., KOT, P., HASHIM, K. S., SHAW, A., and KHADDAR, R. A., 2019. Influence of current density and electrodes spacing on reactive red 120 dye removal from dyed water using electrocoagulation/electroflotation (EC/EF) process IOP Conference Series: Materials Science and Engineering 584: 012035.

ACHARYA, S., SHARMA, S.K. and KHANDEGAR, V., 2021. Nitrate removal from groundwater by electrocoagulation: process optimization through response surface method. Journal of Hazardous, Toxic, and Radioactive Waste, 25(3): 04021014.

ADHOUM, N., MONSER, L., BELLAKHAL, N., and BELGAIED, J. E., 2004. Treatment of electroplating wastewater containing Cu^{2+}, Zn^{2+} and Cr (VI) by electrocoagulation. Journal of Hazardous Materials, 112(3): 207–213.

AMARINE, M., LEKHLIF, B., MLIJI, E. M., and ECHAABI, J., 2020. Nitrate removal from groundwater in Casablanca region (Morocco) by electrocoagulation. Groundwater for Sustainable Development, doi: 10.1016/j.gsd.2020.100452.

AMOOEY, A. A., GHASEMI, S., MIRSOLEIMANI-AZIZI, S. M., GHOLAMINEZHAD, Z., and CHAICHI, M. J., 2014. Removal of diazinon from aqueous solution by electrocoagulation process using aluminum electrodes. Korean Journal of Chemical Engineering, 31: 1016–1020. https://doi.org/10.1007/s11814-014-0032-4.

AMROSE, S., GADGIL, A., SRINIVASAN, V., KOWOLIK, K., MULLER, M., HUANG, J., and KOSTECKI, R., 2013. Arsenic removal from groundwater using iron electrocoagulation: effect of charge dosage rate. Journal of Environmental Science and Health, Part A, 48(9): 1019–1030.

ANO, J., BRITON, B. G. H., KOUASSI, K. E., and ADOUBY, K., 2020. Nitrate removal by electrocoagulation process using experimental design methodology: A techno-economic optimization. Journal of Environmental Chemical Engineering, 8(5): 104292.

AOUDJ, S., KHELIFA, A., and DROUICHE, N., 2017. Removal of Fluoride, SDS, Ammonia and turbidity from semiconductor wastewater by combined electrocoagulation-electroflotation. Chemosphere, 180: 379–387.

ASTM (American Society for Testing and Materials), 2001. Standard guide for sampling groundwater monitoring wells. D4448-01, 17. Retrieved from https://www.astm. org/DATABASE.CART/HISTORICAL/D4448-01.htm.

ASTM (American Society for Testing and Materials), 2005. Standard guide for field preservation of ground-water samples. D6517–00. Retrieved from https://www.astm. org/DATABASE.CART/HISTORICAL/D6517-00R05. Htm.

ATASOY, A. D., and YESILNACAR, M. I., 2017. The hydrogeochemical occurrence of fluoride in groundwater and its effect on human health: a case study from Sanliurfa, Turkey. Environment and Ecology Research, 5(2), 167–172.

ATASOY, A. D., BAGCI, Y., YURTSEVER, A., KARABULUT, B. and YENIGÜN, İ., 2021. Electrocoagulation process for short treatment period of arsenic contaminated water. Environmental Engineering & Management Journal, 20(12): 1973–1980.

ATASOY, A. D., YEŞILNACAR, M. İ., YAZICI-KARABULUT, B., and ÖZDEMIR-ŞAHIN, M., 2016. Fluoride in groundwater and its effects on dental health. World Journal of Environmental Research, 6(2): 51–57.

BABA, A., AKKUŞ, İ., ŞAROĞLU, F., ÖZEL, N., YEŞILNACAR, M.İ., NALBANTÇILAR, M.T., DEMIR, M., GÖKÇEN, G., ARSLAN, Ş., DURSUN, N., and YAZDANI, H., 2015. GAP illeri jeotermal kaynakları araştırma projesi. GAP Bölge Kalkınma İdaresi Başkanlığı, Şanlıurfa.

BABANEZHAD, E., QADERI, F., and ZIRI, M. S., 2018. Spatial modeling of groundwater quality based on using Schoeller diagram in GIS base: a case study of Khorramabad, Iran. Environmental Earth Sciences, https://link.springer.com/article/10.1007/s12665-018-7541-0.

BANERJI, T., and CHAUDHARI, S., 2016. Arsenic removal from drinking water by electrocoagulation using iron electrodes- an understanding of the process parameters. Journal of Environmental Chemical Engineering, 4(4): 3990–4000. https://doi.org/10.1016/j.jece.2016.09.007.

BENSADOK, K., BENAMMAR, S., LAPICQUE, F., and NEZZAL, G., 2008. Electrocoagulation of cutting oil emulsions using aluminum plate electrodes. Journal of Hazardous Materials, 152: 423–430.

BHATNAGAR, A., and SILLANPÄÄ, M., 2011. A review of emerging adsorbents for nitrate removal from water. Chemical Engineering Journal, 168: 493–504.

BHATNAGAR, A., and SILLANPÄÄ, M., 2011. A review of emerging adsorbents for nitrate removal from water. Chemical Engineering Journal, 168: 493–504. https://doi.org/10.1016/j.cej.2011.01.103.

CAN, B. Z., 2010. Sulu çözeltilerden Arsenik ve Bor'un birlikte ve seçimli olarak elektrokoagülasyon yöntemi ile giderimi. Atatürk Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Doktora Tezi, Erzurum, 50–56.

CAN, B. Z., BONCUKCUOGLU, R., YILMAZ, A. E., and FIL, B. A., 2014. Effect of some operational parameters on the arsenic removal by electrocoagulation using iron electrodes. Journal of Environmental Health Science and Engineering, 12(1): 1–10.

CAN, O. T., 2020. Fenol çözeltisinin farklı elektrotlar kullanılarak elektrooksidasyonu. Bitlis Eren Üniversitesi Fen Bilimleri Dergisi, 9(2): 952–957.

CARVALHO, C. A. P., NICODEMO, C. A. Z., MERCADANTE, D. C. F., CARVALHO, F. S., BUZALAF, M. A. R., and CARVALHO SALES-PERES, S.H., 2013. Dental fluorosis in the primary dentition and intake of manufactured soy-based foods with fluoride. Clinical Nutrition, 32: 432–437.

CHEN, G., 2004. Electrochemical technologies in wastewater treatment. Separation and Purification Technology, 38: 11–41.

CHEN, J., WU, H., and QIAN, H., 2016. Groundwater nitrate contamination and associated health risk for the rural communities in an agricultural area of Ningxia, northwest China. Expo Health Journal, 8: 349–359. doi:10.1007/s12403-016-0208-8.

CHUAH, C. J., LYE, H. R., ZIEGLER, A. D., WOOD, S. H., KONGPUN, C., and RAJCHAGOOL, S., 2016. Fluoride: a naturally-occurring health hazard in drinking-water resources of northern Thailand. Science of the Total Environment, 545: 266–279.

DANESHVAR, N., ASHASSI-SORKHABI, H., and TIZPAR, A., 2003. Decolorization of orange II by electrocoagulation method. Separation and Purification Technology, 31: 153–162.

DAS, D., and NANDI, B. K., 2021. Arsenic removal from tap water by electrocoagulation: investigation of process parameters, kinetic analysis, and operating cost. Journal of Dispersion Science and Technology, 42: 328–337.

DASH, B. P., and CHAUDHARI, S. 2005. Electrochemical denitrification of simulated groundwater. Water Research, 39: 4065–4072.

DHADGE, V. L., MEDHI, C. R., CHANGMAI, M., and PURKAIT, M. K., 2018. Household unit for the treatment of fluoride, iron, arsenic and microorganism contaminated drinking water. Chemosphere, 199: 728–736.

DINÇ, U., ŞENOL, S., SAYIN, M., KAPUR, S., GÜZEL, N., DERICI, R., YEŞILSOY, M. Ş., and YEĞINGIL İ., 1988. Güneydoğu Anadolu Bölgesi toprakları (GAT) 1. Harran Ovası. TUBITAK araştırma projesi final raporu, project no: TOAG534 (ss. 225–238).

DROUICHE, N., AOUDJ, S., LOUNICI, H., DROUICHE, M., OUSLIMANE, T., and GHAFFOUR, N., 2012. Fluoride removal from pretreated photovoltaic wastewater by electrocoagulation: an investigation of the effect of operational parameters. Procedia Engineering, 33: 385–391.

DUBEY, A., and TEWARI, A., 2018. Performance of Aluminium Electrode in Defluoridation of Water During Electrocoagulation. Materials Focus, 7(5): 657–661.

DURMAZ, H., ARDIÇ, M., AYGÜN, O., and GENLI, N., 2007. Nitrate and nitrite levels in well waters in Sanliurfa region. Van Veterinary Journal, 18: 51–54.

EDMUNDS, W. M., and SMEDLEY, P. L., 2005. Fluoride in natural waters Essentials of Medical Geology ed BJ Alloway and O Selinus 301–329.

EHSANI, H., MEHRDADI, N., ASADOLLAHFARDI, G., BIDHENDI, G. N., and AZARIAN, G., 2020. A new combined electrocoagulation-electroflotation process for pretreatment of synthetic and real Moquette-manufacturing industry wastewater: Optimization of operating conditions. Journal of Environmental Chemical Engineering, 8(5): 104263.

EL OUARDI, M., QOURZAL, S., ALAHIANE, S., ASSABBANE, A., and DOUCH, J., 2015. Effective removal of nitrate ions from aqueous solution using new clay as potential low-cost adsorbent. Journal of Encapsulation and Adsorption Sciences, 5: 178–190. https://doi.org/10.4236/jeas.2015.54015.

ELYANOW, D., and PERSECHINO, J., 2005. Advances in nitrate removal, water and process technologies. Available from: http://www.gewater.com/Americas/English/TP1033EN.pdf.

EMAMJOMEH, M. M., and SIVAKUMAR, M., 2005. Electrocoagulation technology for nitrate removal. In: Ninth Annual Environmental Research Event (ERE) Conference, 29th November–2nd December, Hobart, Tasmania, Australia, Published in the Conference Proceeding.

EMAMJOMEH, M. M., and SIVAKUMAR, M., 2009. Review of pollutants removed by electrocoagulation and electrocoagulation/flotation processes. Journal of Environmental Management, 90(5): 1663-1679.

EMAMJOMEH, M. M., JAMALIA, H. A., NAGHDALI, Z., and MOUSAZADEH, M., 2019. Carwash wastewater treatment by the application of an environmentally friendly hybrid system: an experimental design approach. Desalination and Water Treatment, 160: 171–177.

EMAMJOMEH, M. M., KAKAVAND, S., JAMALIA, H. A., ALIZADEH, S. M., SAFDARI, M., MOUSAVIE, S. E. S., HASHIM, K. S., and MOUSAZADEH M., 2020. The treatment of printing and packaging wastewater by electrocoagulation–flotation: the simultaneous efficacy of critical parameters and economics. Desalination and Water Treatment, 205: 161–174.

EPSTEIN, R., NIR, O., LAHAV, O., and GREEN, M., 2015. Selective nitrate removal from groundwater using a hybrid nanofiltration-reverse osmosis filtration scheme. Chemical Engineering Journal, 279: 372–378. https://doi.org/10.1016/j.cej.2015.05.010.

GAO, B., GAO, L., GAO, J., XU, D., WANG, Q., and SUN, K., 2019. Simultaneous evaluations of occurrence and probabilistic human health risk associated with trace elements in typical drinking water sources from major river basins in China. Science of The Total Environment, https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.02.148.

GHANBARI, F., MORADI, M., ESLAMI, A., and EMAMJOMEH, M. M., 2014. Electrocoagulation/flotation of textile wastewater with simultaneous application of aluminum and iron as anode. Environmental Processes, 1(4): 447–457.

GHANBARI, F., MORADI, M., MOHSENI-BANDPEI, A., GOHARI, F., MIRTALEB ABKENAR, T., and AGHAYANI, E., 2014. Simultaneous application of iron and aluminum anodes for nitrate removal: a comprehensive parametric study. International Journal of Environmental Science and Technology, 11(6): 1653–1660.

GHOSH, D., MEDHI, C. R., and PURKAIT, M. K., 2008. Treatment of fluoride containing drinking water by electrocoagulation using monopolar and bipolar electrode connections. Chemosphere, 73: 1393–1400.

GOMES, J. A. G., DAIDA, P., KESMEZ, M., WEIR, M., MORENO, H., PARGA, J. R., IRWIN, G., MCWHINNEY, H., GRADY, T., PETERSON, E., and COCKE, D. L., 2007. Arsenic removal by electrocoagulation using combined Al–Fe electrode system and characterization of products. Journal of Hazardous Materials B, 139: 220–231. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2005.11.108.

GONG, W.-X., QU, J.-H., LIU, R.-P., and LAN, H.-C., 2012. Effect of aluminum fluoride complexation on fluoride removal by coagulation. Colloids and Surfaces A, 395: 88–93.

GOREN, A. Y., KOBYA, M., and ONCEL, M. S., 2020. Arsenite removal from groundwater by aerated electrocoagulation reactor with Al ball electrodes: human health risk assessment. Chemosphere, 251: 126363.

GOVINDAN, K., NOEL, M., and MOHAN, R., 2015a. Removal of nitrate ion from water by electrochemical approaches. Journal of Water Process Engineering, 6: 58–63. https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2015.02.008.

GOVINDAN, K., RAJA, M., MAHESHWARI, S. U., NOEL, M., and OREN, Y., 2015b. Comparison and understanding of fluoride removal mechanism in Ca^{2+}, Mg^{2+} and Al^{3+} ion assisted electrocoagulation process using Fe and Al electrodes. Journal of Environmental Chemical Engineering, 3(3): 1784–1793.

GRAÇA, N. S., RIBEIRO, A. M., and RODRIGUES, A. E., 2019. Modeling the electrocoagulation process for the treatment of contaminated water. Chemical Engineering Science, 197: 379–385. https://doi.org/10.1016/j.ces.2018.12.038.

GRICH, N. B., ATTOUR, A., MOSTEFA, M. L. P., GUESMI, S., TLILI, M., and LAPICQUE, F., 2019. Fluoride removal from water by electrocoagulation: Effect of the type of water and the experimental parameters. Electrochimica Acta, 316: 257–265.

GUZMÁN, A., NAVA, J. L., COREÑO, O., RODRÍGUEZ, I., and GUTIÉRREZ, S., 2016. Arsenic and fluoride removal from groundwater by electrocoagulation using a continuous filter-press reactor. Chemosphere, 144: 2113–2120.

HAKIZIMANA, J. N, GOURICH, B., CHAF, M., STIRIBA, Y., VIAL, C., DROGUI, P., and NAJA, J., 2017. Electrocoagulation process in water treatment: a review of electrocoagulation modeling approaches. Desalination, 404: 1–21. https://doi.org/10.1016/j.desal.2016.10.011.

HASHIM, K. S., SHAW, A., KHADDAR, R. A., PEDROLA, M. O., and PHIPPS, D., 2017. Energy efficient electrocoagulation using a new flow column reactor to remove nitrate from drinking water: experimental, statistical, and economic approach. Journal of Environmental Management, 196: 224–233. https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2017.03.017.

HU, C. Y., LO, S. L., and KUAN, W. H., 2003. Effects of co-existing anions on fluoride removal in electrocoagulation (EC) process using aluminum electrodes. Water Research, 37: 4513–4523. https://doi.org/10.1016/S0043-1354(03)00378-6.

HU, C. Y., LO, S. L., and KUAN, W. H., 2005. Effects of the molar ratio of hydroxide and fluoride to Al(III) on fluoride removal by coagulation and electrocoagulation. Journal of Colloid and Interface Science, 283: 472–476.

HU, C. Y., LO, S. L., and KUAN, W. H., 2007. Simulation the kinetics of fluoride removal by electrocoagulation (EC) process using aluminum electrodes. Journal of Hazardous Materials, 145(1-2): 180–185.

IRIGOYEN-CAMACHO, M. E., GARCÍA PÉREZ, A., MEJÍA GONZÁLEZ, A., and HUIZAR ALVAREZ, R., 2016. Nutritional status and dental fluorosis among school children in communities with different drinking water fluoride concentrations in a central region in Mexico. Science of the Total Environment, 541: 512–519.

ISLAM, M. A., MORTON, D. W., JOHNSON, B. B., PRAMANIK, B. K., MAINALI, B., and ANGOVE, M. J., 2018. Metal ion and contaminant sorption onto aluminium oxide-based materials: materials: A review and future research. Journal of Environmental Chemical Engineering, 6: 6853–6869.

JOTIN, R., IBRAHIM, S., and HALIMOON, N., 2012. Electro coagulation for removal of chemical oxygen demand in sanitary landfill leachate. International Journal of Environmental Science and Technology, 3: 107–110.

JUNG, K., HWANG, M., PARK, D., and AHN, K., 2015. Combining fluidized metal-impregnated granular activated carbon in three-dimensional electrocoagulation system: Feasibility and optimization test of color and COD removal from real cotton textile wastewater. Separation and Purification Technology, 146: 154–167.

KAHRAMAN, N., ATASOY, A. D., ve YEŞILNACAR, M. İ. (2016). Harran Ovası serbest akiferinde yaz ve kış dönemleri nitrat kirliliğinin araştırılması (2014-2015). Harran Üniversitesi Mühendislik Dergisi, 1(2): 1–8.

KALARUBAN, M., LOGANATHAN, P., KANDASAMY, J., NAIDU, R., and VIGNESWARAN, S., 2017. Enhanced removal of nitrate in an integrated electrochemical-adsorption system. Separation and Purification Technology, 189: 260–266.

KIM, K. J., BAEK, K., JI, S., CHEONG, Y., YIM, G., and JANG, A., 2016. Study on electrocoagulation parameters (current density, pH, and electrode distance) for removal of fluoride from groundwater. Environmental Earth Sciences, 75(1): 1–8.

KOBYA, M., AKYOL, A., DEMIRBAS, E. and ONCEL, M. S., 2014. Removal of arsenic from drinking water by batch and continuous electrocoagulation processes using hybrid Al-Fe plate electrodes. Environmental Progress & Sustainable Energy, 33(1): 131–140.

KOBYA, M., DEMIRBAS, E., and AKYOL, A., 2009. Electrochemical treatment and operating cost analysis of textile wastewater using sacrificial iron electrodes. Water Science and Technology, 60, 2261–2270.

KOBYA, M., GEBOLOGLU, U., ULU, F., ONCEL, S., and DEMIRBAS, E., 2011. Removal of arsenic from drinking water by the electrocoagulation using Fe and Al electrodes. Electrochimica Acta, 56(14): 5060–5070.

KOBYA, M., OZYONAR, F., DEMIRBAS, E., SIK, E. and ONCEL, M. S., 2015. Arsenic removal from groundwater of Sivas-Şarkişla Plain, Turkey by electrocoagulation process: comparing with iron plate and ball electrodes. Journal of Environmental Chemical Engineering, 3(2): 1096–1106.

KOBYA, M., SIK, E., DEMIRBAS, E., GOREN, A. Y., and ONCEL, M. S., 2018. Optimization of some cations for removal of arsenic from groundwater by electrocoagulation process. Journal of Environmental Chemical Engineering, 4: 1484–1494.

KODERA, T., AKIZUKI, S., and TODA, T., 2017. Formation of simultaneous denitrification and methanogenesis granules in biological wastewater treatment. Process Biochemistry, 58: 252–257. https://doi.org/10.1016/j.procbio.2017.04.038.

KUMAR, N. S., and GOEL, S., 2010. Factors influencing arsenic and nitrate removal from drinking water in a continuous flow electrocoagulation (EC) process. Journal of Hazardous Materials, 173: 528–533. https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2009.08.117.

KUMAR, P. R., CHAUDHARI, S., KHILAR, K. C., and MAHAJAN, S. P., 2004. Removal of arsenic from water by electrocoagulation. Chemosphere, 55: 1245–1252.

LACASA, E., CANIZARES, P., SAEZ, C., FERNANDEZ, F.J., and RODRIGO, M. A., 2011. Removal of arsenic by iron and aluminium electrochemically assisted coagulation. Separation and Purification Technology, 79: 15–19.

LACASA, E., CAÑIZARES, P., SÁEZ, C., MARTÍNEZ, F., and RODRIGO, M. A., 2013. Modelling and cost evaluation of electro-coagulation processes for the removal of anions from water. Separation and Purification Technology, 107: 219–227. https://doi.org/10.1016/j.seppur.2013.01.035.

LI, L., VAN GENUCHTEN, C. M., ADDY, S. E. A., YAO, J., GAO, N., and GADGIL, A. J., 2012. Modeling As(III) oxidation and removal with iron electrocoagulation in groundwater. Environmental Science & Technology, 46: 12038–12045. https://doi.org/10.1021/es302456b.

LI, M., FENG, C., ZHANG, Z., LEI, X., CHEN, R., YANG, Y., and SUGIURA, N., 2009. Simultaneous reduction of nitrate and oxidation of by-products using electrochemical method. Journal of Hazardous Materials, 171: 724–730.

LÓPEZ-GUZMÁN, M., ALARCÓN-HERRERA, M. T., IRIGOYEN-CAMPUZANO, J. R., TORRES-CASTAÑÓN, L. A., and REYNOSO-CUEVAS, L., 2019. Simultaneous removal of fluoride and arsenic from well water by electrocoagulation. Science of the Total Environment, 678: 181–187.

LU, J., TANG, Q., WANG, Z. R., XU, C., and LIN, S. L., 2016. A study on continuous and batch electrocoagulation process for fluoride removal. Desalination and Water Treatment, 57(58): 28417–28425.

MAITLO, H. A., KIM, J. H., AN, B. M., and PARK, J. Y., 2018. Effects of supporting electrolytes in treatment of arsenate-containing wastewater with power generation by aluminum air fuel cell electrocoagulation. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 57: 254–262. https://doi.org/10.1016/j.jiec.2017.08.031.

MAJLESI, M., MOHSENY, S. M., SARDAR, M., GOLMOHAMMADI, S., and SHEIKHMOHAMMADI, A., 2016. Improvement of aqueous nitrate removal by using continuous electrocoagulation/electroflotation unit with vertical monopolar electrodes. Sustainable Environment Research, 26: 287–290. doi:10.1016/j.serj.2016.09.002.

MALAKOOTIAN, M., YOUSEF, N., and FATEHIZADEH, A., 2011. Survey efficiency of electrocoagulation on nitrate removal from aqueous solution. International Journal of Environmental Science and Technology, 8: 107–114. https://doi.org/10.1007/BF03326200.

MARTINEZ, J., ORTIZ, A., and ORTIZ, I., 2017. State-of-the-art and perspectives of the catalytic and electrocatalytic reduction of aqueous nitrates. Applied Catalysis B: Environmental, 207: 42–59. https://doi.org/10.1016/j.apcatb.2017.02.016.

MENA, V. F., BETANCOR-ABREU, A., GONZÁLEZ, S., DELGADO, S., SOUTO, R. M., and SANTANA, J. J., 2019. Fluoride removal from natural volcanic underground water by an electrocoagulation process: parametric and cost evaluations. Journal of Environmental Management, 246: 472–483.

MENKOUCHI SAHLI, M. A., and TAHAIKT, M., 2006. Technical optimization of nitrate removal for groundwater by ED using a pilot plant. Desalination 189: 200–208. https://doi.org/10.1016/j.desal.2005.06.025.

MODIRSHAHLA, N., BEHNAJADY, M. A., and KOOSHAIIAN, S., 2007. Investigation of the effect of different electrode connections on the removal efficiency of tartrazine from aqueous solutions by electrocoagulation. Dyes and Pigments, 74: 249–257.

MOHAN, D., and PITTMAN JR, C. U., 2007. Arsenic removal from water/wastewater using adsorbents—a critical review. Journal of Hazardous Materials, 142(1-2): 1–53.

MOHORA, E., RONČEVIĆ, S., AGBABA, J., ZRNIĆ, K., TUBIĆ, A., and DALMACIJA, B., 2018. Arsenic removal from groundwater by horizontal-flow continuous electrocoagulation (EC) as a standalone process. Journal of Environmental Chemical Engineering, 6: 512–519. https://doi.org/10.1016/j.jece.2017.12.042.

MOLLAH, M. Y. A., SCHENNACH, R., PARGA, J. R., and COCKE, D., 2001. Electrocoagulation – science and application. Journal of Hazardous Materials, B84: 29–41.

MORENO, H. A., COCKE, D. L., GOMES, J. A. G., MORKOVSKY, P., PARGA, J. R., PETERSON, E., and GARCIA, C., 2009. Electrochemical reactions for electrocoagulation using iron electrodes. Industrial & Engineering Chemistry Research, 48: 2275–2282. https://doi.org/10.1021/ie8013007.

MORES, R., MELLO, P. A., ZAKRZEVSKI, C. A., TREICHEL, H., KUNZ, A., STEFFENS, J., and DALLAGO, R. M., 2018. Reduction of soluble organic carbon and removal of total phosphorus and metals from swine wastewater by electrocoagulation. Brazilian Journal of Chemical Engineering, 35: 1231–1240.

MOUSSA, D. T., EL-NAAS, M. H, NASSER, M., and AL-MARRI, M. J., 2017. A comprehensive review of electrocoagulation for water treatment: potentials and challenges. Journal of Environmental Management, 186: 24–41. https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2016.10.032.

MROCZEK, E. K., GRAHAM, D., and BACON L., 2019. Removal of arsenic and silica from geothermal fluid by electrocoagulation. Journal of Environmental Chemical Engineering, 7: 103232, https://doi.org/10.1016/j.jece.2019.103232.

NARIYAN, E., SILLANPÄÄ, M., and WOLKERSDORFER, C., 2018. Uranium removal from Pyhäsalmi/Finland mine water by batch electrocoagulation and optimization with the response surface methodology. Separation and Purification Technology, 193: 386–397.

OH, C., PAK, S., HAN, Y. S., HA, N. H. H., HONG, M., and JI, S., 2019. Field demonstration of solar-powered electrocoagulation water treatment system for purifying groundwater contaminated by both total coliforms and arsenic. Environmental Technology, 42: 397–409.

OMWENE, P. I., CELEN, M., ONCEL, M. S., and KOBYA, M., 2019. Arsenic removal from naturally arsenic contaminated ground water by packed-bed electrocoagulator using Al and Fe scrap anodes. Process Safety and Environmental Protection, 121: 20–31. https://doi.org/10.1016/j.psep.2018.10.003.

ORNEK, S., 1955. Diş çürüklerinde ve diş florozisinde memleket sularının ihtiva ettikleri florun rolü. Ankara Üniversitesi Tıp Fakültesi Mecmuası, 7-8(4): 129–137.

ORTIZ, J. M., EXPÓSITO, E., GALLUD, F., GARCÍA-GARCÍA, V., MONTIEL, V., and ALDAZ, V. A., 2008. Desalination of underground brackish waters using an electrodialysis system powered directly by photovoltaic energy. Solar Energy Materials and Solar Cells, 92: 1677–1688. https://doi.org/10.1016/j.solmat.2008.07.020.

PALKO, J. W., OYARZUN, D. I., HA, B., STADERMANN, M., and SANTIAGO, J. G., 2018. Nitrate removal from water using electrostatic regeneration of functionalized adsorbent. Chemical Engineering Journal, 334: 1289–1296. https://doi.org/10.1016/j.cej.2017.10.161.

PIPER, A. M., 1944. A graphical procedure in the geochemical interpretation of water analysis. American Geophysical Union Transaction, 25: 914–928.

PIRSAHEB, M., KHOSRAVI, T., SHARAF, K., and MOURAD, M., 2015. Comparing operational cost and performance evaluation of electrodialysis and reverse osmosis systems in nitrate removal from drinking water in Golshahr, Mashhad. Desalination and Water Treatment, 57: 5391–5397. https://doi.org/10.1080/19443994.2015.1004592.

PULKKA, S., MARTIKAINEN, M., BHATNAGAR, A., and SILLANPÄÄ, M., 2014. Electrochemical methods for the removal of anionic contaminants from water: a review. Separation and Purification Technology, 132: 252–271. https://doi.org/10.1016/j.seppur.2014.05.021.

RODZIEWICZ, J., MIELCAREK, A., JANCZUKOWICZ, W., and BRYSZEWSKI, K., 2020. Electric power consumption and current efficiency of electrochemical and electrobiological rotating disk contactors removing nutrients from wastewater generated in soil less plant cultivation systems. Water, 12: 213–222. https://doi.org/10.3390/w12010213.

ROSALES, M., COREÑO, O. and NAVA, J. L., 2018. Removal of hydrated silica, fluoride and arsenic from groundwater by electrocoagulation using a continuous reactor with a twelve-cell stack. Chemosphere, 211: 149–155.

SADLER, R., MAETAM, B., EDOKPOLO, B., CONNELL, D., YU, J., STEWART, D., PARK, M. J., GRAY, D., and LAKSONO, B., 2016. Health risk assessment for exposure to nitrate in drinking water from village wells in Semarang. Indonesia. Environmental Pollution, 216: 738–745. https://doi.org/10.1016/j.envpol.2016.06.041.

SAHU, O., MAZUMDAR, B., and CHAUDHARI, P. K., 2014. Treatment of wastewater by electrocoagulation: a review. Environmental Science and Pollution Research, 21: 2397–2413.

SAMATYA, S., KABAY, N., YUKSEL, U., ARDA, M., and YUKSEL, M., 2006. Removal of nitrate from aqueous solution by nitrate selective ion exchange resins. Reactive & Functional Polymers, 66: 1206–1214. https://doi.org/10.1016/j.reactfunctpolym.2006.03.009.

SANDOVAL, M. A., FUENTES, R., NAVA, J. L., CORENO, O., LI, Y., and HERNÁNDEZ, J. H., 2019. Simultaneous Removal of Fluoride and Arsenic from Groundwater by Electrocoagulation Using a Filter-Press Flow Reactor with a Three-Cell Stack. Separation and Purification Technology, 208: 208–216.

SARKAR, M., BANERJEE, A., and PRAMANICK, P. P., 2006. Kinetics and mechanism of fluoride removal using laterite. Industrial & Engineering Chemistry Research, 45: 5920–5927. https://doi.org/10.1021/ie060016j.

SCHOELLER, H., 1955. Géochimie des eaux souterraines. Aplication aux eaux des gisements de pétrole. Inst Français duPétrole, Paris (in French).

SHIVAYOGIMATH, C. B., and WATAWATI, C. (2013). Treatment of solid waste leachate by electrocoagulation technology. International Journal of Research in Engineering and Technology, 2: 266–269.

SILVA, J. F. A., GRAÇA, N. S., RIBEIRO, A. M., and RODRIGUES, A. E., 2018. Electrocoagulation process for the removal of co-existent fluoride, arsenic and iron from contaminated drinking water. Separation and Purification Technology, 197: 237–243.

SONG, P., YANG, Z., XU, H., HUANG, J., YANG, X., and WANG, L., 2014. Investigation of influencing factors and mechanism of antimony and arsenic removal by electrocoagulation using Fe-Al electrodes. Industrial & Engineering Chemistry Research, 53: 12911–12919.

SONG, P., YANG, Z., ZENG, G., YANG, X., XU, H., HUANG, J., and WANG, L., 2015. Optimization, kinetics, isotherms, and thermodynamics studies of antimony removal in electrocoagulation process. Water Air Soil Pollution, 226: 380, 1–12.

SUI, M., DONG, Y., WANG, P., ZHANG, Y., TAN, X., and LI, Y., 2020. Highly efficient nitrate reduction driven by an electrocoagulation system: an electrochemical and molecular mechanism. Bioelectrochemistry, 133. https://doi.org/10.1016/j.bioelechem.2019.107454.

THAKUR, L. S., and MONDAL, P., 2017. Simultaneous arsenic and fluoride removal from synthetic and real groundwater by electrocoagulation process: parametric and cost evaluation. Journal of Environmental Management, 190: 102–112.

THAKUR, L. S., GOYAL, H., and MONDAL, P., 2019. Simultaneous removal of arsenic and fluoride from synthetic solution through continuous electrocoagulation: Operating cost and sludge utilization. Journal of Environmental Chemical Engineering, 7(1): 102829.

TS (Turkish Standards Institution), 1997a. Water quality sampling part 2: Guidance on sampling techniques, TS 5090 EN 25667–2, Ankara, Turkey.

TS (Turkish Standards Institution), 1997b. Water quality sampling part 3: Rules for storage and transport of samples, TS 5106 ISO 5667-3, Ankara, Turkey.

TYAGI, S., RAWTANI, D., KHATRI, N., and THARMAVARAM, M., 2018. Strategies for nitrate removal from aqueous environment using nanotechnology: a review. Journal of Water Process Engineering, 21: 84–95. doi: 10.1016/j.jwpe.2017.12.005.

UN, U. T., KOPARAL, A. S., and OGUTVEREN, U. B., 2013. Fluoride removal from water and wastewater with a batch cylindrical electrode using electrocoagulation. Chemical Engineering Journal, 223: 110–115.

UN, U. T., KOPARAL, A. S., OGUTVEREN U. B., and DURUCAN, A., 2010. Electrochemical process for the treatment of drinking water. Fresenius Environmental Bulletin, 19(9): 1906–1910.

VASUDEVAN, S., EPRON, F., LAKSHMI, J., RAVICHANDRAN, S., MOHAN, S., and SOZHAN, G., 2010. Removal of NO3- from drinking water by electrocoagulation-an alternate approach. Clean-Soil Air Water, 38(3): 225–229.

VASUDEVAN, S., LAKSHMI, J., and SOZHAN, G., 2012. Studies on the removal of arsenate from water through electrocoagulation using direct and alternating current. Desalination and Water Treatment, 48: 163–173. https://doi.org/10.1080/19443994.2012.698809.

VASUDEVAN, S., SURESH KANNAN, B., LAKSHMI, J., MOHANRAJ, S., and SOZHAN, G., 2011. Effects of alternating and direct current in

electrocoagulation process on the removal of fluoride from water. Journal of Chemical Technology & Biotechnology, 86: 428–436.
WHO, 1994. Fluorides and Oral Health. Technical Report Series No: 846, World Health Organization, Geneva.
WHO, 1996. Guidelines for Drinking Water Quality, Health Criteria and other Supporting Information, second ed., Geneva.
WHO, 2006. Fluorides in Drinking-Water. WHO Drinking-Water Quality Series, London, UK: IWA Publishing.
WHO, 2011. Guidelines for drinking-water quality. World Health Organization Chronicle, 38: 104–108.
YAZDANBAKHSH, A. R., MASSOUDINEGAD, M. R., ELIASI, S., and SHEIKH MOHAMMADI, A., 2015. The influence of operational parameters on reduction of Azithromyin COD from wastewater using the peroxy-electrocoagulation process. Journal of Water Process Engineering, 6: 51–57. https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2015.03.005.
YAZICI KARABULUT, B., ATASOY, A. D, and YESILNACAR, M. I., 2019. Removal of nitrate from aqueous solutions by batch electrocoagulation process using Al and Fe plate electrodes. Harran University Journal of Engineering, 4: 79–88.
YAZICI KARABULUT, B., ATASOY, A. D., and YESILNACAR, M. I., 2019. Investigation of the effect of montmorillonite clay on aluminum amount and floc form in nitrate removal by electrocoagulation process. International Journal On Mathematics, Engineering & Natural Sciences, 8: 135–142.
YAZICI KARABULUT, B., ATASOY, A. D., and YEŞİLNACAR, M. İ., 2019. Fluoride contamination in groundwater and its removal by adsorption and electrocoagulation processes. Sigma Journal of Engineering and Natural Sciences, 37(4): 1250–1262.
YAZICI KARABULUT, B., ATASOY, A. D., CAN, O. T. and YESILNACAR, M. I., 2021. Electrocoagulation for nitrate removal in groundwater of intensive agricultural region: a case study of Harran plain, Turkey. Environmental Earth Sciences, 80(5): 1–9.
YEHYA, T., CHAF, M., BALLA, W., VIAL, C., ESSADKI, A., and GOURICH, B., 2014. Experimental analysis and modeling of denitrification using electrocoagulation process. Separation and Purification Technology, 132: 644–654. https://doi.org/10.1016/j.seppur.2014.05.022.
YEŞILNACAR, M. I., and GÜLLÜOĞLU, M. S., 2008. Hydrochemical characteristics and the effects of irrigation on groundwater quality in Harran Plain, GAP project. Turkey. Environmental Geology, 54: 183–196.
YESILNACAR, M. I., and YENIGUN, I., 2011. Effect of irrigation on a deep aquifer: A case study from the semi-arid Harran Plain, GAP project, Turkey. Bulletin of Engineering Geology and the Environment, 70(2): 213–221.
YEŞİLNACAR, M. İ., DEMİR-YETİŞ, A., DÜLGERGİL, Ç. T., KUMRAL, M., ATASOY, A.D., RASTGELDİ-DOĞAN, T., TEKINER, S. İ., BAYHAN, İ., and AYDOĞDU, M., 2016. Geomedical assessment of an area having high-fluoride groundwater in southeastern Turkey. Environmental Earth Sciences, 75: 162.
YESILNACAR, M. I., SAHINKAYA, E., NAZ, M., and OZKAYA, B., 2008. Neural network prediction of nitrate in groundwater of Harran Plain, Turkey.

Environmental Geology, 56: 19–25. https://doi.org/10.1007/s00254-007-1136-5.

ZHANG, Z., HAN, Y., XU, C., MA, W., HAN, H., ZHENG, M., ZHU, H., and MA, W., 2018. Microbial nitrate removal in biologically enhanced treated coal gasification wastewater of low COD to nitrate ratio by coupling biological denitrification with iron and carbon microelectrolysis. Bioresource Technology, 262: 65–73. https://doi.org/10.1016/j.biortech.2018.04.059.

ZHAO, H., LIU, H., and QU, J., 2009. Effect of pH on the aluminum salts hydrolysis during coagulation process: formation and decomposition of polymeric aluminum species, Journal of Colloid and Interface Science, 330(1): 105–112.

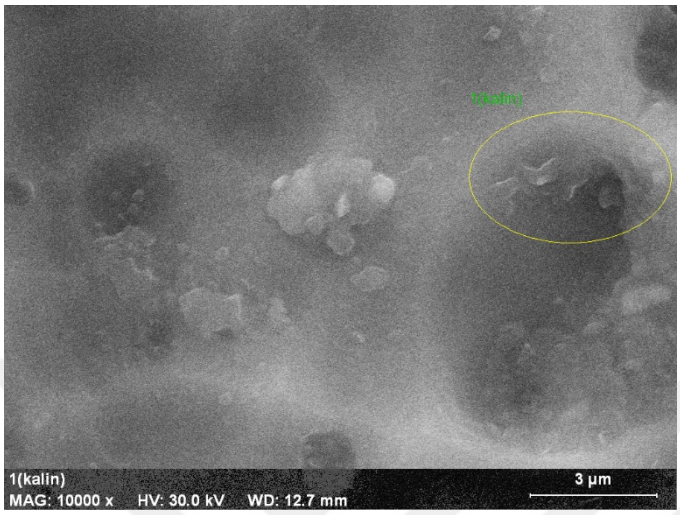
ZHAO, X., ZHANG, B., LIU, H., and QU, J., 2011. Simultaneous removal of arsenic and fluoride via an integrated electro-oxidation and electrocoagulation process. Chemosphere, 83: 726–729.

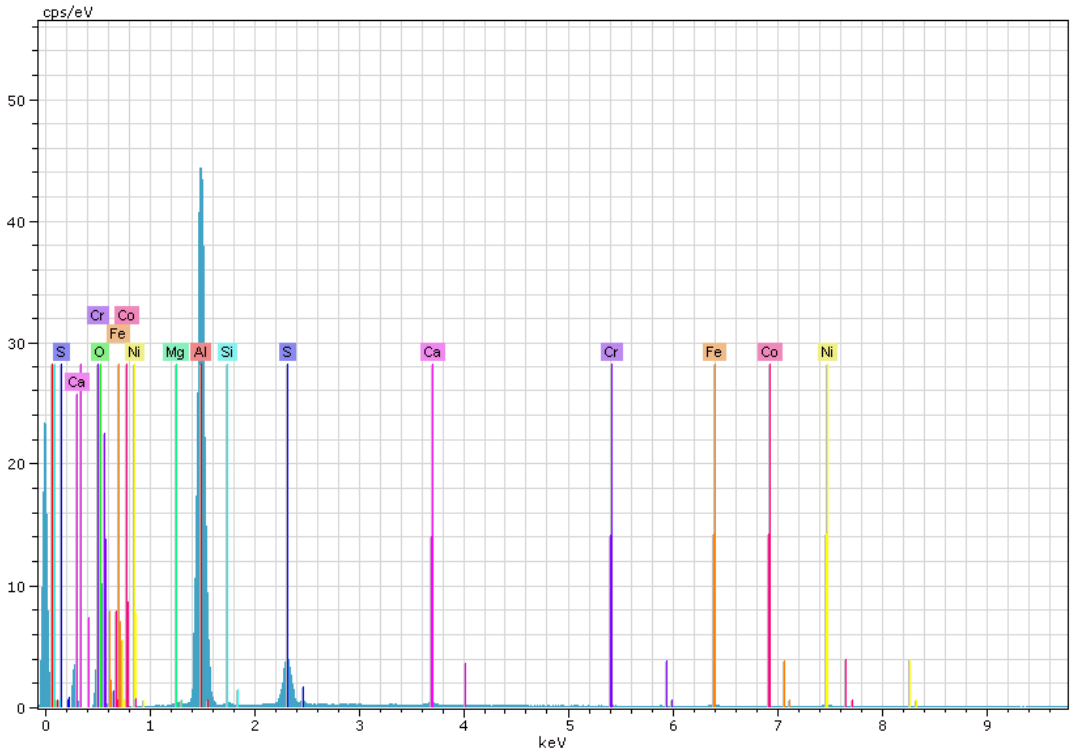
ZHU, J., ZHAO, H., and NI, J., 2007. Fluoride distribution in electrocoagulation defluoridation process. Separation and Purification Technology, 56: 184–191.

ZUO, Q., CHEN, X., LI, W., and CHEN, G., 2008. Combined electrocoagulation and electroflotation for removal of fluoride from drinking water. Journal of Hazardous Materials, 159: 452–457.

EKLER

EK 1 Alüminyum (Al) Elektrota Ait İçerik Analizi



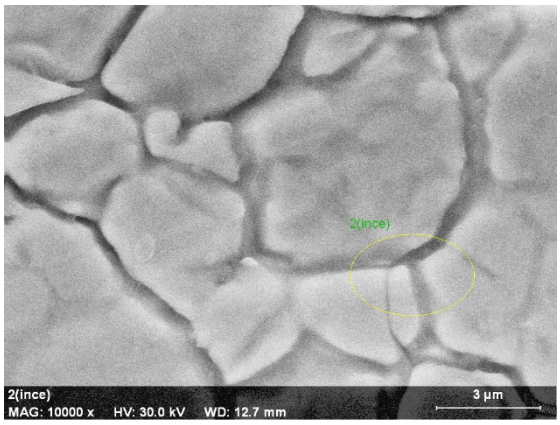


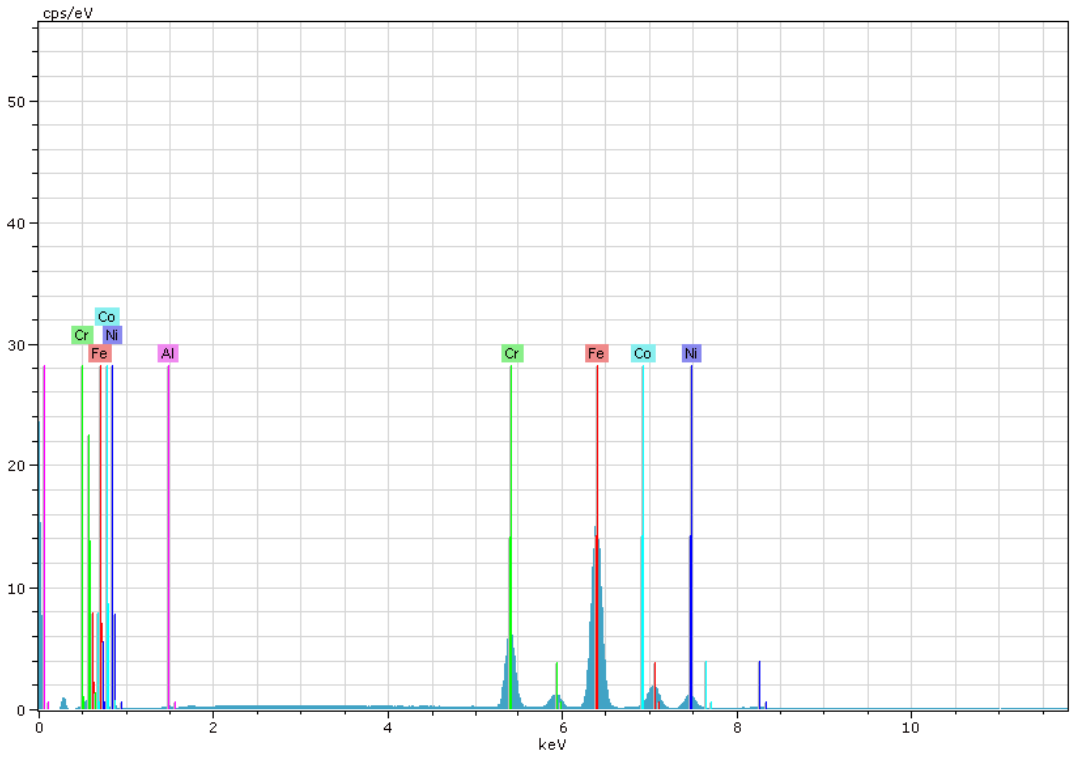
Spectrum: Al plaka

El	AN	Series	unn. C [wt.-%]	norm. C [wt.-%]	Atom. C [at.-%]	Error [%]

Al 13 K-series	42.67	47.33	36.44	2.2
S 16 K-series	5.27	5.85	3.79	0.2
Si 14 K-series	0.37	0.41	0.30	0.0
Ca 20 K-series	0.34	0.37	0.19	0.0
Ni 28 K-series	0.24	0.26	0.09	0.0
Fe 26 K-series	0.16	0.18	0.07	0.0
Mg 12 K-series	0.07	0.08	0.07	0.0
Cr 24 K-series	0.02	0.02	0.01	0.0
Co 27 K-series	0.02	0.02	0.01	0.0
O 8 K-series	40.99	45.48	59.03	5.1
Total:	90.14	100.00	100.00	

EK 2 Demir (Fe) Elektrota Ait İçerik Analizi





Spectrum: Fe plaka

El	AN	Series	unn. C [wt.-%]	norm. C [wt.-%]	Atom. C [at.-%]	Error [%]
Fe	26	K-series	72.13	72.04	71.05	1.9
Cr	24	K-series	18.81	18.79	19.90	0.5

Ni 28 K-series	7.88	7.87	7.38	0.2
Co 27 K-series	0.91	0.91	0.85	0.1
Al 13 K-series	0.40	0.40	0.81	0.1
Total:	100.13	100.00	100.00	

EK 3 Laboratuvar Çalışmalarında Kullanılan Materyaller



Güç kaynağı



Manyetik karıştırıcı

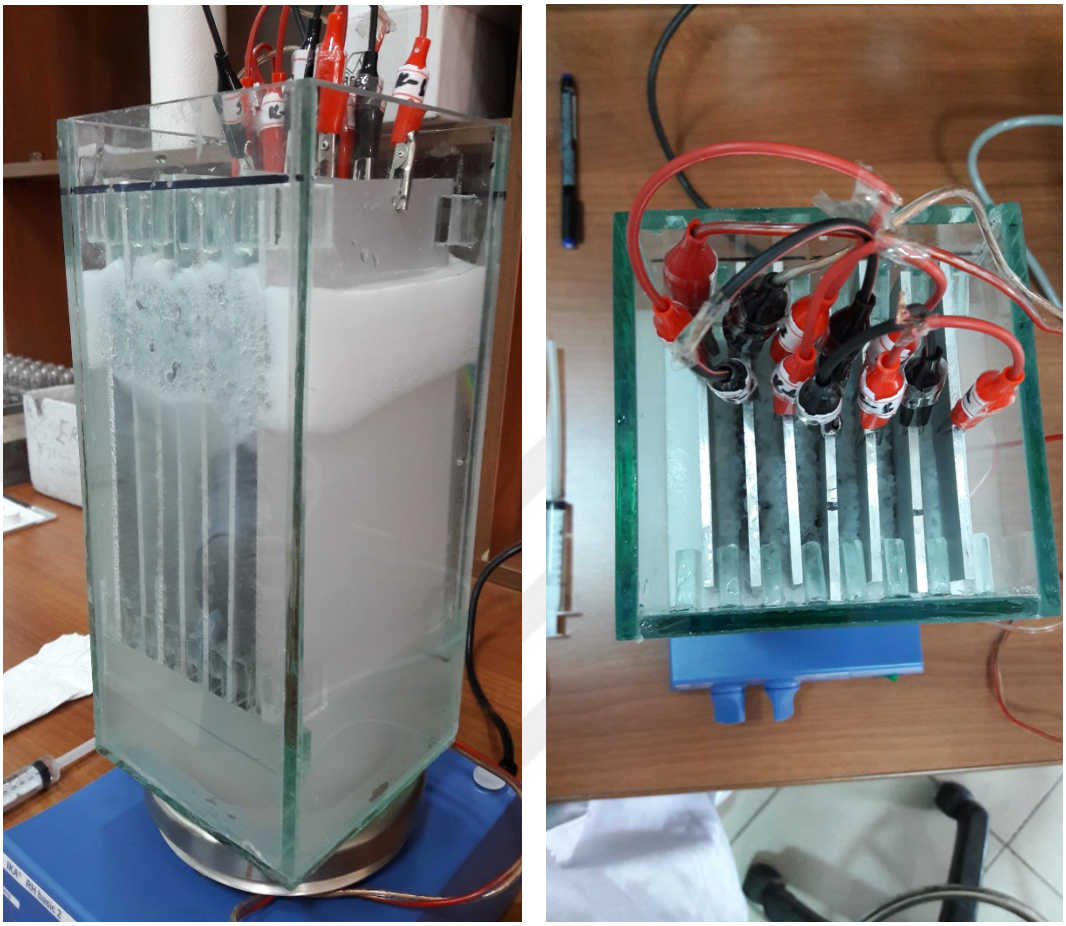


pH metre

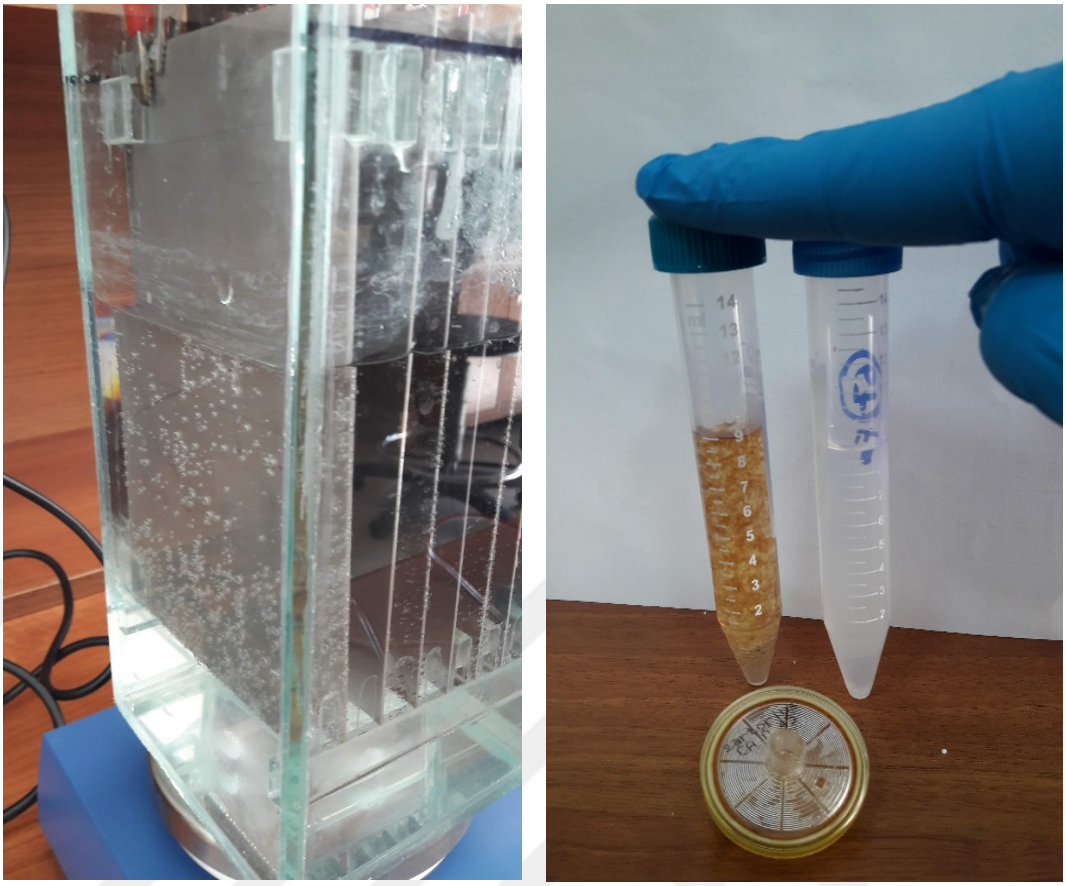


EC metre

EK 4 Laboratuvar Çalışmalarına Ait Resimler



Şekil 1. Alüminyum elektrot ile giderim çalışmaları



Şekil 2. Demir elektrot ile giderim çalışmaları

EK 5 Arazi Çalışmalarına Ait Resimler















