

İSTANBUL TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ★ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**İÇME SULARINDAN ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMİ İLE
FLORÜR GİDERİMİ**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ
Ayça TETİK**

Anabilim Dalı : Çevre Mühendisliği

Programı : Çevre Bilimleri ve Mühendisliği

HAZİRAN 2011

İSTANBUL TEKNİK ÜNİVERSİTESİ ★ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**İÇME SULARINDAN ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMİ İLE
FLORÜR GİDERİMİ**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ
Ayça TETİK
(501091733)**

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih : 06 Mayıs 2011

Tezin Savunulduğu Tarih : 06 Haziran 2011

**Tez Danışmanı : Prof. Dr. Işık KABDAŞLI (İTÜ)
Diğer Jüri Üyeleri : Prof. Dr. İsmail TORÖZ (İTÜ)
Doç. Dr. Mehmet KOBYA (GYTE)**

HAZİRAN 2011

Canım Aileme ve Tüm Sevdiklerime,

ÖNSÖZ

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

Çalışmamın her aşamasında görüş ve düşünceleri ile yol gösteren değerli hocam Prof. Dr. Olcay TÜNAY'a teşekkür ederim.

Deneysel çalışmalarım sırasında bana yardımcı olan sevgili hocam Doç. Dr. Tuğba ÖLMEZ HANCI'ya ve Dr. Beyza SAMUK'a ilgileri için çok teşekkür ederim.

Hayatımın her aşamasında olduğu gibi yüksek lisans boyunca da desteklerini benden esirgemeyen annem Selma TETİK, babam Tefik TETİK ve kardeşim Aslı TETİK'e; ayrıca tüm dostlarıma yanımda oldukları için çok teşekkür ederim.

Mayıs 2011

Ayça TETİK
(Çevre Mühendisi)

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖNSÖZ.....	v
İÇİNDEKİLER	vii
KISALTMALAR	ix
ÇİZELGE LİSTESİ.....	xi
ŞEKİL LİSTESİ.....	xvii
ÖZET.....	xix
SUMMARY	xxi
1. GİRİŞ	1
1.1 Çalışmanın Anlam ve Önemi	1
1.2 Amaç ve Kapsam.....	2
2. FLOR.....	3
2.1 Kullanım Alanları.....	3
2.2 Kaynakları	4
2.2.1 Doğal kaynaklar	4
2.2.2 Endüstriyel kaynaklar	4
2.3 Florürün İnsan Sağlığına Etkileri	5
2.4 Türkiye’de Florür İçeren Kaynaklar ile İlgili Yapılan Çalışmalar	6
2.5 Florür İçin İçme Suyu Standartları	7
3. FLORÜR GİDERME YÖNTEMLERİ	9
3.1 Elektrokoagülasyon	13
3.1.1 Elektrokoagülasyon prosesinin kullanım alanları	16
3.1.2 Elektrokoagülasyon yönteminin avantajları ve dezavantajları	16
3.1.3 Elektrokoagülasyon uygulamasında proses verimine etki eden parametreler	17
3.1.4 Elektrokoagülasyon prosesi mekanizmasının incelenmesi	20
3.1.4.1 Elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderim mekanizması incelenmesi.....	21
3.2 Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Florür Giderimi Uygulamaları.....	23
4. DENEYSEL ÇALIŞMA	33
4.1 Deneysel Çalışmanın Planlanması	33
4.2 Deneysel Çalışma Düzeni	35
4.2.1 Deneylerde kullanılan materyal ve metod	35
4.2.1.1 Numune özellikleri.....	35
4.2.1.2 Materyal ve metod	35
4.2.2 Deneylerin yürütülüşü.....	37
4.2.3 Deneysel sonuçlarla ilgili gerekli hesaplamalar.....	38
4.3 Deneysel Çalışma Sonuçları.....	39
4.3.1 Elektrolit konsantrasyonunun etkisi.....	39
4.3.2 Başlangıç florür konsantrasyonunun etkisi	42
4.3.3 Akım yoğunluğunun etkisi.....	48

4.3.4 Başlangıç pH'sının etkisi	54
4.3.5 Suda bulunan diğer iyonların etkisi.....	58
4.3.6 Alkalinitenin etkisi	65
4.3.7 Sülfat iyonlarının etkisi	68
4.3.8 Çıkış suyu kalitesi açısından elektrokoagülasyon prosesinin değerlendirilmesi	70
5. TARTIŞMA VE YORUM	73
KAYNAKLAR.....	77
EKLER.....	81
ÖZGEÇMİŞ	171

KISALTMALAR

APHA	: Standart Yöntemler
E.K.	: Elektrokoagülasyon
FİS	: Florür ilaveli içme suyu
SEC	: Elektrik enerjisi sarfıyatı
SN	: Sentetik Numune
TSE	: Türk Standartları Enstitüsü
WHO	: Dünya Sağlık Teşkilatı

ÇİZELGE LİSTESİ

Sayfa

Çizelge 2.1 : Florun özellikleri.	3
Çizelge 2.2 : Yüzey ve yer altı suları florür miktarları (Giritlioğlu, 1975).	4
Çizelge 2.3 : Bazı endüstriyel atıksularda ölçülen florür konsantrasyonları (Beyhan, 2003).	5
Çizelge 2.4 : Sağlık problemlerine yol açabilecek florür seviyeleri (Dissanayake, 1991).	6
Çizelge 2.5 : İçme suyu standartları, (Türk Standartları Enstitüsü, Dünya Sağlık Teşkilatı).	8
Çizelge 3.1 : Florür giderim verimleri (Meenakshi ve Maheshwari, 2006).	10
Çizelge 3.2 : E.K. prosesi deney koşulları (Mameri ve diğ., 2001).	25
Çizelge 3.3 : E.K. prosesi uygulanan suyun arıtma öncesi ve sonrası kimyasal bileşimi (Mameri ve diğ., 2001).	26
Çizelge 3.4 : Farklı karakterdeki sentetik örneklerdeki florür arıtım verimi (Hu ve diğ.,2003).	27
Çizelge 4.1 : Musluk suyu karakterizasyonu.	35
Çizelge 4.2 : Farklı elektrolit konsantrasyonlarında yürütülen E.K. denemeleri (F_0 : 4 mg/L).	41
Çizelge 4.3 : Farklı başlangıç florür konsantrasyonları içeren içme sularında yürütülen E.K. denemeleri.	47
Çizelge 4.4 : Farklı başlangıç pH'larında 4 mg/L florür ilaveli içme suyu örneklerinde yürütülen E.K. denemeleri	55
Çizelge 4.5 : Sentetik olarak hazırlanmış numunelerin tanımı	58
Çizelge 4.6 : Suda bulunan diğer iyonların etkisi, F_0 : 2 mg/L	61
Çizelge 4.7 : Suda bulunan diğer iyonların etkisi, F_0 : 4 mg/L	64
Çizelge 4.8 : 4 mg/L florür içeren içme suyu ve sentetik örnekler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında Toplam Alkalinitenin etkisi	66
Çizelge 4.9 : 4 mg/L florür içeren içme suyu ve sentetik örnekler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında Sülfat iyonlarının etkisi	69
Çizelge A. 1: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları	85
Çizelge A.2: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları	86
Çizelge A.3: 4 mg/L florür ilaveli sentetik örnek üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları	87
Çizelge A. 4: 4 mg/L florür ilaveli sentetik örnek üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları	88
Çizelge A. 5: 4 mg/L florür ilaveli sentetik örnek üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları	89

Çizelge A. 6: 4 mg/L florür ilaveli sentetik örnek üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları	90
Çizelge B. 1: 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	93
Çizelge B. 2 : 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	94
Çizelge B. 3: 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	95
Çizelge B. 4: 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	96
Çizelge B. 5: : 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	97
Çizelge C. 1: 3 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	101
Çizelge C. 2: 3 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	102
Çizelge C. 3: 3 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	103
Çizelge C. 4: 3 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	104
Çizelge D.1: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	107
Çizelge D. 2: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	108
Çizelge D. 3: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	109
Çizelge D.4: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları	110
Çizelge E. 1: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 36 mg/L, Clo: 34 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 7,6; oluşan çamur: 570 mg AKM/L).	113
Çizelge E. 2: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 34 mg/L, T. Alkalinite: 86 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 8; oluşan çamur: 575 mg AKM/L). ..	114
Çizelge E. 3: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 36 mg/L, Clo: 36 mg/L, T. Alkalinite: 93 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 8,5; oluşan çamur: 575 mg AKM/L).	115
Çizelge E. 4: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 36 mg/L, T. Alkalinite: 100 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 9; oluşan çamur: 590 mg AKM/L). ..	116
Çizelge E. 5: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 36 mg/L, T. Alkalinite: 100 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 9; oluşan çamur: 200 mg AKM/L). ..	117

Çizelge E. 6 : Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 36 mg/L, Clo: 36 mg/L, T. Alkalinite: 105 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J:1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 9,5;oluşan çamur:590 mg AKM/ L).	118
Çizelge E. 7: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 36 mg/L, T. Alkalinite: 105 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J:1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 9,5;oluşan çamur:61 mg AKM/ L).	119
Çizelge F. 1: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 37 mg/L, Clo: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 7,5; oluşan çamur:240 mg AKM/ L).	123
Çizelge F. 2: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 37 mg/L, Cl ₀ : 35 mg/L, T. Alkalinite:100 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 9; oluşan çamur:240 mg AKM/ L).	124
Çizelge F. 3: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 37 mg/L, Cl ₀ : 35 mg/L, T. Alkalinite:76 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 0,70 mA/cm ² , pH ₀ : 7,6; oluşan çamur:402 mg AKM/ L).	125
Çizelge F. 4: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36mg/L, Cl ₀ : 35 mg/L, T. Alkalinite:100 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 0,70 mA/cm ² , pH ₀ : 9; oluşan çamur:450 mg AKM/ L).	126
Çizelge F. 5: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 37 mg/L, Cl ₀ : 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 1,40 mA/cm ² , pH ₀ : 7,4; oluşan çamur:831 mg AKM/L).	127
Çizelge F. 6: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 37 mg/L, Clo: 35 mg/L, T. Alkalinite: 100 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 1,40 mA/cm ² , pH ₀ : 9; oluşan çamur:850 mg AKM/L).	128
Çizelge G. 1: Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 37 mg/L, Clo: 35 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 7; oluşan çamur: 650 mg AKM/L).	131
Çizelge G. 2 : Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 36 mg/L, Clo: 35 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 8; oluşan çamur: 655 mg AKM/L).	132
Çizelge G. 3 : Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 36 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 8,5; oluşan çamur: 680 mg AKM/L).	133
Çizelge G. 4 : Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 35 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 9; oluşan çamur: 680 mg AKM/L).	134

Çizelge G. 5 :	Başlangıç pH ₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 35 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 9; oluşan çamur: 680 mg AKM/L).	135
Çizelge H. 1 :	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 37 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 7,4; oluşan çamur: 205 mg AKM/L).	139
Çizelge H. 2 :	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl ₀ : 35 mg/L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 7; oluşan çamur: 220 mg AKM/L).	140
Çizelge H. 3 :	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl ₀ : 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 7,9; oluşan çamur: 260 mg AKM/L).	141
Çizelge H. 4 :	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 37 mg/L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 7; oluşan çamur: 250 mg AKM/L).	142
Çizelge H. 5 :	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 37 mg/L, T. Alkalinite: 76 mgCaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 7,5; oluşan çamur: 558 mg AKM/L).	143
Çizelge H. 6:	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl ₀ : 35 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 7; oluşan çamur: 470 mg AKM/L).	144
Çizelge H. 7 :	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl ₀ : 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 7,9; oluşan çamur: 510 mg AKM/L).	145
Çizelge H. 8 :	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca ₀ : 36 mg/L, Cl ₀ : 37 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 7; oluşan çamur:530 mg AKM/L).	146
Çizelge H. 9 :	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde E.K. uygulamalar (Ca ₀ :37 mg/L, Cl ₀ : 35 mg/L, T.Alkalinite:76 mg CaCO ₃ /L E.K. koşullarıJ: 0,35 mA/cm ² ,pH ₀ : 7,5; oluşan çamur:240 mg AKM/L).	147
Çizelge H. 10 :	Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl ₀ : 35 mg/L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 7; oluşan çamur: 280 mg AKM/L).	148

Çizelge H. 11 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl_0 : 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg $CaCO_3$ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 7,9; oluşan çamur: 350 mg AKM/L).	149
Çizelge H. 12 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca_0 : 36 mg/L, Cl_0 : 37 mg/L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 7; oluşan çamur: 300 mg AKM/L).	150
Çizelge H. 13 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_0 :37 mg/L, Cl_0 :35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg $CaCO_3$ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 7,6;oluşan çamur:570 mg AKM/L).	151
Çizelge H. 14 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl_0 : 35 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 7; oluşan çamur: 430 mg AKM/L).	152
Çizelge H. 15 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl_0 : 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg $CaCO_3$ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 7,9; oluşan çamur: 460 mg AKM/L).	153
Çizelge H. 16 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca_0 : 36 mg/L, Cl_0 : 37 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² , pH ₀ : 7; oluşan çamur:530 mg AKM/L).	154
Çizelge I. 1: Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_0 :37 mg/L, Cl_0 :35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg $CaCO_3$ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 7,6;oluşan çamur:570 mg AKM/L) (orijinal)...	157
Çizelge I. 2: Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_0 :37 mg/L, Cl_0 :35 mg/L, T. Alkalinite: 86 mg $CaCO_3$ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 8 ;oluşan çamur:570 mg AKM/L)	158
Çizelge I. 3: Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_0 :37 mg/L, Cl_0 :35 mg/L, T. Alkalinite: 150 mg $CaCO_3$ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 8;oluşan çamur: 580 mg AKM/L)	159
Çizelge I. 4: Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_0 :37 mg/L, Cl_0 :35 mg/L, T. Alkalinite: 305mg $CaCO_3$ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 8;oluşan çamur: 600 mg AKM/L)	160
Çizelge I. 5: Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl_0 : 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg $CaCO_3$ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 8; oluşan çamur: 350 mg AKM/L).	161
Çizelge I. 6: Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl_0 : 35 mg/L,	

T. Alkalinite: 76 mg CaCO ₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm ² , pH ₀ : 8; oluşan çamur: 360 mg AKM/L).	162
Çizelge J. 1 : Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca ₀ :40 mg/L, Cl ₀ :38 mg/L, Sülfat 60 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 7,4; oluşan çamur:565 mg AKM/L) (orijinal)	165
Çizelge J. 2 : Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca ₀ :40 mg/L, Cl ₀ :38 mg/L, Sülfat 80 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 7,56; oluşan çamur:580 mg AKM/L).....	166
Çizelge J. 3 :Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca ₀ :40 mg/L, Cl ₀ :38 mg/L, Sülfat 105 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 7,55; oluşan çamur:610 mg AKM/L).....	167
Çizelge J. 4 :Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca ₀ :40 mg/L, Cl ₀ :38 mg/L, Sülfat 165 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 7,6; oluşan çamur:660 mg AKM/L).....	168
Çizelge J. 5 :Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca ₀ :40 mg/L, Cl ₀ :38 mg/L, Sülfat 300 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm ² pH ₀ : 7,55; oluşan çamur:690 mg AKM/L).....	169

ŞEKİL LİSTESİ

Sayfa

Şekil 3.1 : Elektrokoagülasyon ile giderim prosesi (Emamjomeh ve Sivakumar, 2006).	15
Şekil 3.2 : E.K. prosesinde alüminyum elektrotları ile florür giderimi şematik gösterimi,(Zuo ve diğ. 2008).....	23
Şekil 4.1 : Deneysel çalışmada kullanılan elektrokoagülatör ve güç kaynağı.....	37
Şekil 4.2 : Farklı klorür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	40
Şekil 4.3 : Farklı klorür konsantrasyonlarında sentetik numunelerde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	40
Şekil 4.4 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	43
Şekil 4.5 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi	44
Şekil 4.6 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	44
Şekil 4.7 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi.....	45
Şekil 4.8 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	45
Şekil 4.9 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi.....	46
Şekil 4.10 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	47
Şekil 4.11 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi.....	48
Şekil 4.12 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	48
Şekil 4.13 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi	49
Şekil 4.14 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	51
Şekil 4.15 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	52
Şekil 4.16 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	52
Şekil 4.17 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi.....	53
Şekil 4.18 : Farklı başlangıç pH'larında 4 mg/L florür ilaveleri içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi.....	54

Şekil 4.19 : Farklı başlangıç pH'ları ve akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi i.....	56
Şekil 4.20 : Farklı başlangıç pH'larında SN üzerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi	57
Şekil 4.21: 2 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı florür değişimleri J: 0,35 mA/cm ²	59
Şekil 4.22: 2 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı pH değişimleri J: 0,35 mA/cm ²	61
Şekil 4.23: 2 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı florür değişimleri J: 0,70 mA/cm ²	62
Şekil 4.24: 2 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı pH değişimleri J: 0,70 mA/cm ²	62
Şekil 4.25: 4 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı florür değişimleri J: 0,35 mA/cm ²	63
Şekil 4.26: 4 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı pH değişimleri J: 0,35 mA/cm ²	63
Şekil 4.27: 4 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı florür değişimleri J: 0,70 mA/cm ²	63
Şekil 4.28: 4 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı pH değişimleri J: 0,70 mA/cm ²	64
Şekil 4.29: 4 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı florür değişimleri	65
Şekil 4.30: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu ve SN numuneler üzerinde yürütülen zamana bağlı pH değişimleri	67
Şekil 4.31: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalarında zamana bağlı kalsiyum değişimleri	67
Şekil 4.32: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalarında zamana bağlı florür değişimleri	68

İÇME SULARINDAN ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMİ İLE FLORÜR GİDERİMİ

ÖZET

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

Elektrokimyasal yöntemlerden biri olan elektrokoagülasyon prosesi son yıllarda su ve atıksu arıtımında kullanılmaya başlanmış olan uygulanması kolay, çoğu organik ve inorganik kirleticinin gideriminde etkili bir yöntemdir.

Bu çalışmada florür içeren içme suyu numuneleri üzerinde alüminyum elektrotlar kullanılarak elektrokoagülasyon yönteminin uygulandığı florür giderimi ile ilgili deneysel çalışmalar yürütülmüştür. Birinci bölümde çalışmanın anlam ve önemi, amaç ve kapsamı belirtilmiştir.

İkinci bölümde florürün özellikleri, kullanım alanları ve kaynakları açıklanmıştır. Florun insan sağlığı üzerindeki etkisi anlatılmış; Türkiye’de flor içeren sular ile ilgili yapılan çalışmalardan söz edilmiştir. Üçüncü bölümde Türk Standartları Enstitüsü 266 ve Dünya Sağlık Örgütü (WHO)’ya göre içme suyu standartları ile farklı kurumlarca belirlenen florür standartları belirtilmiştir. Sulardan florür arıtma metotlarından bahsedilip literatürdeki uygulamalardan örnekler verilmiş, elektrokoagülasyonun tanımı yapıp bu prosesi etkileyen faktörler üzerinde durulmuştur. Elektrokoagülasyon yöntemi ile florür giderim mekanizması açıklanıp, literatürde sulardan E.K. metodu kullanılarak yapılan florür arıtma uygulamaları anlatılmıştır. Dördüncü bölümde deneysel çalışmanın yürütülüşü verilmiş, içme sularından alüminyum elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon prosesi ile yapılan florür gideriminde optimum işletme koşulları belirlenmiştir. Florürün yanı sıra içme suyun yapısında bulunan diğer iyonların E.K. mekanizması üzerindeki etkileri incelenmiştir. Beşinci bölümde tartışma ve yorum açıklanmıştır.

FLOURIDE REMOVAL FROM DRINKING WATER BY ELECTROCOAGULATION PROCESS

SUMMARY

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

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

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

Methods for the removal of fluoride from water were mentioned and examples from the applications in literature were given. Definition of electrocoagulation, factors affecting this process and mechanism for removal of fluoride with this process were stated, applications about this process found in literature were evaluated. In the forth part, outline of experimental work was given and optimum conditions for the removal of fluoride ion from drinking water by electrocoagulation method using aluminium electrodes were stated. The effects of other ions present in drinking water rather than fluoride on E.C. mechanism were examined. In the last part, discussions and comments were stated.

1. GİRİŞ

1.1 Çalışmanın Anlam ve Önemi

Tüm dünyada hızlı nüfus artışı ve endüstriyel gelişimin bir sonucu olarak su kaynaklarında ciddi bir azalma meydana gelmiştir. Bu sıkıntının giderilebilmesi amacıyla mevcut su kaynaklarının korunması, kaynaktan alınan kalitesiz suları kullanma, içme amaçlı arıtımı ve kirletilmiş suların arıtılarak zararsız hale getirilmesi son yıllarda önem kazanmıştır.

Flor elementi doğada 13. sırada yer alır ve diğer bütün maddelerle reaksiyona girdiğinden dolayı flor ve bileşikleri su, hava ve toprakta oldukça yaygın olarak bulunmaktadır. Flor iyonu insan vücudunda bulunması gereken temel bileşenlerden biridir. Sularda bulunan florür miktarına bağlı olarak insan sağlığı için faydalı veya zararlı olabilmektedir. İçme suyu için Dünya Sağlık Örgütü'nce belirlenen üst limit 1 mg/L'dir. 0.5 mg/L florürün dişler için faydalı olduğu ve diş çürümelerini azalttığı otoritelerce belirtilmektedir. Bunu yanında 2 mg/L florür içeren suyun dişlerde kahverengi lekeler bıraktığını, 4 mg/L florür içeren suyun ise kemik bozukluklarına sebep olduğu söylenmektedir. Bu araştırma sonuçlarına göre bünyesinde 1 mg/L'den daha yüksek konsantrasyonlarda florür bulunduran suların arıtılma ihtiyacı bulunmaktadır. Türkiye'de özellikle volkanik arazideki bölgelerde florür konsantrasyonu yüksek olan sulara rastlanmıştır. Bu da içme sularından florür gideriminin önemini arttırmaktadır. İç Anadolu bölgesinde bazı flor rezervleri ve fabrikalar çevresindeki yüzey sularında insan ve hayvan sağlığına tehdit oluşturabilecek düzeyde florür konsantrasyonun bulunduğu yapılan çalışmalar sonucu belirtilmiştir (Fidancı ve diğ., 1996). Doğal olarak flordan zengin su kaynaklarının bulunduğu, florca zengin topraklarda yetişen yem bitkilerinin hayvanlar tarafından tüketildiği bölgelerde ve endüstriyel etkinliklerle çevrenin, su ve yemlerin kirlendiği yerlerde gerekli tedbirler alınarak nedenler ortadan kaldırılmaya çalışılmalıdır.

Su ve atıksulardan florür arıtma metotları son yıllarda farklı yöntemlerin geliştirilmesi ile literatürde sıkça çalışılan konulardan biri olmuştur. Adsorpsiyon, koagülasyon, membran teknikleri, iyon değiştirici ve elektrokimyasal prosesler florür gideriminde kullanılan yöntemlerin başında gelmektedir.

1.2 Amaç ve Kapsam

Sulardan florür gideriminde kimyasal çöktürme ve adsorpsiyon proseslerini bir arada içeren ve son yıllarda gittikçe önem kazanan elektrokimyasal bir yöntem olan elektrokoagülasyon ile florür arıtım çalışmaları literatürde yer almaktadır. Elektrokoagülasyon uygulanan potansiyele bağlı olarak tükenen anodun oksidasyonu ile yerinde koagülan üreten, eşzamanlı olarak da katotta hidrojen gazı oluşumunu mümkün kılarak flotasyon ile kirlilik giderim imkanı sağlayan bir teknolojidir. Elektrokogülasyon metodu ile içme suyundan florür arıtma çalışmaları ile ilgili literatürde yer alan deneysel çalışmalarda, distile suya florür tuzu ilaveli sentetik örnekler kullanılmıştır. Ancak bu numuneler içme suyu bileşenlerini içermemesi bakımından temsil edici olmamakta ve bu durum da giderim mekanizmasının açıklanmasında büyük eksiklikler doğurmaktadır. Bu noktadan hareketle bu çalışma kapsamında; florürün içme sularından giderimini gerçekleştirmek için alüminyum elektrotlar kullanarak elektrokoagülasyon prosesi ile içme suyu numunelerinde arıtılabilirliğinin incelenmesi, bu proseslere etki eden değişkenlerin arıtma performansına etkilerinin belirlenerek uygulanan arıtma yöntemi için optimum işletme koşullarının tanımlanması, giderim mekanizmasında içme suyunun bünyesinde florür ile birlikte bulunan kalsiyum, klorür ve toplam alkalinite gibi parametrelerin etkilerinin belirlenmesi hedeflenmiştir.

2. FLOR

Vücut için gerekli temel elementlerden biri olan flor; toprak, su, hava ile bitkilerde ve hayvansal dokularda değişik miktarlarda bulunan bir halojendir (Avcı ve diğ., 2009). Florür elementi doğada 13. sırada yer alan; diğer elementler içinde en reaktif ve elektronegatif olan korozif, halojenler ve oksihalojenür tuzlarını içeren mineraller halinde bulunmaktadır. Flor, bilinen tüm elementlerle florür bileşiklerini oluşturup; bütün organik ve inorganik maddelerle de reaksiyona girmektedir (Beyhan, 2003). Çizelge 2.1’de flor elementinin özellikleri verilmiştir.

Çizelge 2.1 : Florun özellikleri.

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

2.1 Kullanım Alanları

Flor ve bileşikleri birçok sanayi kolunda ana madde veya yardımcı madde olarak kullanılmaktadır. Flor ve bileşikleri, uranyum başta olmak üzere çok sayıda ticari kimyasalın üretiminde, cama etki eden tek bileşik hidroflorik asit olduğundan cam yüzeylerin aşındırma işlemlerinde, diş sağlığı için gerekli bir madde olduğu için diş macunlarında, yarı iletken özelliğe sahip ürünlerin üretiminde, floroklorohidrokarbon bileşiği olarak buzdolabı, klimalarda ve deodorant üretiminde kullanılmaktadır.

Element halindeki flordan yüksek özgül itici gücü nedeniyle roketlerde itici kuvvet sağlamak amacıyla yararlanılmaktadır (Alkan, 2006).

2.2 Kaynakları

Florür iyonu alıcı ortamlara doğal veya endüstriyel kaynaklardan çevreye yayılan flor ve bileşikleri olmak üzere iki farklı şekilde girebilmektedir.

2.2.1 Doğal kaynaklar

Yeryüzü kabuğunun % 0,032'sinde flor ve bileşiklerine rastlanılmaktadır (Oruc, 2008). Florür iyonu doğada flor birçok bileşikleri içinde yer almaktadır. Minerallerin bileşiminde bulunan florun en önemli kaynağı apatit (CaF_2)'dir. Florun yeryüzündeki diğer elementlerle oluşturduğu başlıca bileşikler; NaF , H_2F_2 , Na_2SiF_6 , H_2SiF_6 , $(\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6$ 'dir. Genellikle florosilikaiyonlarının hidroliziyle florür oluşmaktadır (Cengiz, 1991). Çeşitli minerallerde (florspar, florapatit, kriyolit, mika, topaz, hornblend, turmolin), kemik ve dişlerde, sulara ve çeşitli biyolojik materyalde değişik oranlarda florüre rastlanmaktadır. Yüzey sularının florür içeriği düşük olmasına rağmen jeolojik yapıya bağlı olarak daha yüksek konsantrasyonlara rastlanabilmektedir (Oruç, 2008). İklim koşullarının da yüzey ve yeraltı sularındaki florür konsantrasyonunu etkilediği bilinmektedir. Derin sular, özellikle petrol kuyularındaki tuzlu sulara ve volkanizma geçirmiş arazilerden gelen sular florüriçerebilmektedir (Giritlioğlu, 1975). Çizelge 2.2'de yüzey ve yeraltı sularında bulunan florür konsantrasyonları verilmiştir.

Çizelge 2.2 : Yüzey ve yer altı suları florür miktarları (Giritlioğlu, 1975).

Kaynak	Florür Konsantrasyonu (mg/L)
Deniz suyu	0,4
Nehir suyu	0,2
Kireç ve dolomitli yer altı suyu	8,7
Granitli kayaç yer altı suyu	9,2

2.2.2 Endüstriyel kaynaklar

Florür ve bileşikleri cam ve seramik üretimi, kok kömürü üretimi, elektrokaplama ve elektronik üretimi, çelik ve alüminyum üretimi, ahşap koruyucu üretimi, pestisit ve gübre üretiminde yaygın olarak kullanılmaktadır (Patterson, 1985). Ayrıca demir-çelik, antelmantik ilaç üretimi, çimento fabrikalarında da flordan yardımcı madde olarak yararlanılmaktadır (Ağaoğlu ve diğ., 2007). Çizelge 2.3'de bazı endüstriyel atıksularda ölçülen florür konsantrasyonları verilmiştir (Beyhan, 2003).

Çizelge 2.3 : Bazı endüstriyel atıksularda ölçülen florür konsantrasyonları (Beyhan, 2003).

Kaynak	Aralık (mg/L)	Ortalama (mg/L)
Alüminyum cevheri eritme	10-1400	148
Alüminyum üretimi (Gaz yıkama atıksuyu)	---	<1000
Fosfat cevheri cüruf söndürme fırını	73-270	---
Cam üretimi:	---	---
Televizyon resim tüpü	---	143
Akkor ampul soğutma	---	2800
Preslenmiş ve şişirilmiş cam	194-1980	---
Alüminyum oksidasyonu önleme banyosu	---	2250
Titanyum kireçlenmeyi önleme banyosu	60000-99500	---
Çelik alaşımı kireçlenmeyi önleme banyosu	16000-39600	---

Endüstriyel kaynaklardan oluşan florür konsantrasyonu 10-100,000 mg/L aralığında değişiklik göstermektedir.

2.3 Florürün İnsan Sağlığına Etkileri

Florür iyonu vücutta bulunması gereken temel bileşenlerden biridir. Ancak bu iyonun insan sağlığına hem olumlu hem de olumsuz etkileri vardır (Douiche ve diğ., 2007).

Kemik ve dişlerin gelişimi, diş yüzeylerinde mineral kaybının önlenmesi, hücrel aktivasyon ve bakteriyel enzim azaltması florürün canlı organizmalar için yararlı etkilerindendir (Ağaoğlu ve diğ., 2007). Fazla miktarda florürün vücuda alınması ise kronik veya akut etkisi gösterebilmektedir. Ancak bu akut etkilere nadir rastlanılmaktadır (Meenakshi ve diğ., 2005). İnsanlar florürü içme sularından, bazı sebzelerden, deniz mahsullerinden vücutlarına almaktadırlar (Oruç, 2008). Bununla birlikte yiyeceklerde çok düşük miktarlarda florür bulunduğundan insan için asıl florür kaynağı içme suyu olarak rapor edilmektedir (Işıklı ve diğ., 2000). Özellikle florürün kullanıldığı sanayi bölgelerinin yakınında yaşayanlarda florürün neden olduğu kronik hastalıklara rastlanılmaktadır. Bu hastalıkların başında diş çürümesi, kemiklerde ve dişlerde biriken florun yol açtığı florozis gelmektedir. Florlu suyun uzun vadede kullanımı kemikleri olumsuz etkilemekte ve ağır iskelet problemlerine yol açmaktadır (Browne ve diğ., 2004).

Çeşitli sağlık problemlerine neden olabilecek florür seviyelerini konsantrasyon bazında Çizelge 2.4’de verilmiştir (Dissanayake, 1991).

Çizelge 2.4 : Sağlık problemlerine yol açabilecek florür seviyeleri (Dissanayake, 1991).

Florür (mg/L)	Sağlık problemi
< 0,5	Diş problemleri
0,5 – 1,5	Vücut için gerekli olan miktar
1,5- 4	Diş florozisi
>4	Diş ve iskelet florozisi
>10	Felce uğratan florozis

2.4 Türkiye’de Florür İçeren Kaynaklar ile İlgili Yapılan Çalışmalar

Türkiye’deki bazı bölgeler için suların flor düzeyleri araştırılmış ve florürün söz konusu olduğu yerleşim yerlerindeki insanlara, hayvanlara, bitki örtüsüne olan etkileri ile ilgili çalışmalar yapılmıştır.

Ağaoğlu ve arkadaşları (2007) tarafından Van ilinde yapılan çalışmada Van’ın bazı ilçelerindeki kaynak sularında içme suyu standartının % 3 ile % 10 fazlası florür tespit edilmiştir. Isparta ilinde 55 yıl önce ilk defa insanlarda diş florizisine rastlanılmıştır ve bunun nedenin bölgedeki yüksek konsantrasyonlarda florür içeren sular olduğu saptanılmıştır. Isparta’da yaşayan 100,000 kişinin 1,5 ve 6 mg/L aralığında florür içeren içme suyu tüketimi dolayısıyla olumsuz etkilendikleri belirtilmiştir (Oruç, 2008). Ergun ve arkadaşları (1987) Tendürek yakınındaki volkanik arazi ile temas eden sularda florür konsantrasyonunun 0,99 ile 4,3 mg/L aralığında değiştiğini tespit etmişlerdir. Türkiye’nin doğu bölgelerindeki toprak ve sularında bulunan florür miktarının batı bölgelerindekilere göre daha yüksek olduğunu insan kanında ve koyun idrarlarında yapılan deneysel çalışmalar ile belirlenmiştir (Ergun ve diğ., 1987).

Ülkemizin Doğubeyazıt ve Van bölgesinde toplanan yüzeysel su örneklerinde yapılan ölçümlerde florür konsantrasyonun 2 ve 7,5 mg/L aralığında değiştiği belirlenmiştir (Oruç, 2007). Eskişehir yöresindeki içme sularındaki florür düzeylerinin ise 0,02 ile 3,9 mg/L aralığında değişim gösterdiği rapor edilmiştir (Işıklı ve diğ.,2000) Fidancı ve diğerleri (1998), İç Anadolu bölgesindeki bazı florür rezervleri ve çeşitli fabrikalar çevresinde endüstriyel kaynaklı florizisin hayvan

sağlığı üzerine etkisini araştırmışlardır. Eskişehir ile Kırşehir illerine yakın yerleşim alanlarında su, toprak ve bitki örtüsünde hastalık oluşturabilecek düzeyde florür miktarlarına rastlamışlardır. Konya-Seydişehir yöresinde ise alüminyum fabrikalarının bulunduğu yerlerde, koyun idrar örnekleri ile yapılan ölçümlerin ışığında endüstriyel kaynaklı florizis hastalığının var olduğu tespit edilmiştir.

2.5 Florür İçin İçme Suyu Standartları

İçme sularının renksiz, berrak olması, hastalık yapıcı organizmaları ve zararlı kimyasal maddeleri ihtiva etmemesi gerekmektedir. Sular için bu özellikleri sağlamak ve suda bulunması istenilmeyen maddelerin belirli bir değerin altında tutmak için çeşitli standartlar geliştirilmiştir. Dünya Sağlık Teşkilatı (WHO) tarafından belirlenen içme suyu standartları tüm ülkelerde kabul görmektedir. Türkiye için kabul edilen içme suyu standardı ise TSE 266 olup; burada içme suyu tanımı *“kaynağına bakılmaksızın orijinal haliyle veya arıtıldıktan sonra bu standartta belirtilen özellikleri sağlayan genel olarak içme, yemek yapma, gıda maddelerinin hazırlanması (gıda maddelerinin hazırlanmasında gıda maddesi ile doğrudan temas eden sular) ve benzeri amaçlar için kullanılan sular”* şeklinde yapılmaktadır.

TS 266 standardı kapsamına giren sular kaynak suları ve kaynak dışı insani tüketim amaçlı sular olarak sınıflandırılmaktadır. Kaynak suları 1 tiptir. Kaynak suları dışındaki insani tüketim amaçlı sular, işlem görmüş kaynak (memba) suları (Tip 1) içme ve kullanma suları (Tip 2) olarak gruplandırılmaktadır. Çizelge 2.5’te kimyasal parametrelerin kaynak sular ve insani tüketim amaçlı sular için üst limit değerleri verilmiştir.

İçme sularında bulunan florun sağlık üzerindeki etkileri anlaşıldıkça florür iyonu standartlarında yeni yasal düzenlemeler yapılmıştır. Bazı ülkelerde içme sularında sıcaklığa bağlı olarak florür standartları değişkenlik gösterebilmektedir. Sıcaklık 26 °C ile 32 °C arasında limit değer 0,7 iken; 4 °C ile 12°C arasında bu değer 1,2 mg/L olarak belirtilmektedir (Pickards ve Reynolds, 1996). Ancak dünya genelinde çeşitli kurumlar ortalama hava sıcaklarını göz önünde bulundurarak florür standardını 1,5 mg/L olarak belirlemişlerdir (TSE 266, Dünya Sağlık Teşkilatı, Avrupa Birliği). ABD Çevre Koruma Kurumu (EPA) florür standardını 2 mg/L vermiştir.

Su Kirliliği Kontrol Yönetmeliği (SKKY) kıta içi su kaynaklarının sınıflarına göre florür kalite kriterlerini 1. Sınıf için 1 mg/L, 2. Sınıf için 1,5 mg/L, 3.Sınıf için 2 mg/L ve 4. Sınıf için > 2 mg/ L olarak belirlemiştir.

Çizelge 2.5 : İçme suyu standartları, (Türk Standartları Enstitüsü, Dünya Sağlık Teşkilatı).

Parametre	Birim	TSE 266, 2008		WHO, 2008
		Sınıf 1 ve Sınıf 2 / Tip 1	Sınıf 2 / Tip 2	
Alüminyum	(µg/L)	200	200	200
Amonyum	(mg/L)	0,05	0,5	0,5
Klorür	(mg/L)	30	250	250
İletkenlik	(µs/cm ²)	650	2500	2500
pH	-	6,5 – 9,5	6,5 – 9,5	6,5 – 9,5
Demir	(µg/L)	50	200	50
Florür	(mg/L)	1	1,5	1,5
Mangan	(µg/L)	20	50	50
Sülfat	(mg/L)	25	250	250
Sodyum	(mg/L)	100	200	200
Bulanıklık	(NTU)	5	5	5

3. FLORÜR GİDERME YÖNTEMLERİ

Su ve atıksulardan florür giderim teknikleri; koagülasyon, adsorpsiyon, iyon değiştirici, elektrokimyasal ve membran prosesler olarak gruplandırılmaktadır. Koagülasyon suya çeşitli organik veya inorganik kimyasallar ekleyerek (koagülan) kolloid parçacıkların durağan hallerinin bozulması ve sonuçta tek başına çökmeyen bu parçacıkların bir araya gelerek kolayca çökebilen kümeler haline dönüşmesi uygulamasıdır. Koagülasyon prosesi ile florür giderimi kalsiyum ve magnezyum tuzları, poli alüminyum klorür, alüminyum ve alum, esasına dayanmaktadır.

Son yıllarda çeşitli doğal ve sentetik maddeler kullanılarak su ve atıksulardan florürün adsorpsiyonu gerçekleştirilmektedir. Bir katının veya bir sıvının sınır yüzeyindeki konsantrasyon değişmesi olayına adsorpsiyon denir. Adsorpsiyon olayı maddenin sınır yüzeyinde moleküller arasındaki kuvvetlerin denkleşmemiş olmasından ileri gelmektedir. Adsorpsiyona etki eden faktörler; adsorbatın ve adsorbanın yapısı, pH, sıcaklık, yarışan iyonlarının varlığı ve temas süresinin etkisi olarak sıralanabilmektedir. Sulardan florür gideriminde kullanılan başlıca adsorbanlar şunlardır; kömürleştirilmiş kemik, perlit, aktif karbon, bentonit, zeolit, aktif magnezyum, aktif alumina, granül demir oksit ve ağartma toprakları olarak sıralanabilmektedir.

Elektrokimyasal yöntemler elektrokoagülasyon ve diğer elektrosorpsiyon proseslerini içermektedir. Elektrokoagülasyonda, alüminyum anotundan açığa çıkan Al^{3+} iyonları florür iyonları ile reaksiyona girip elektrot yüzeyine adsorplanarak çözeltiden uzaklaştırılmaktadır. Elektrosorpsiyon, elektrik alan uygulaması ile florür iyonlarının adsorpsiyonuna dayanan bir yöntemdir.

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

İçme sularından ve atıksulardan florür gideriminde kullanılan yöntemler karşılaştırıldığında; bu proseslerin başında aktif alüminyum, kömürleşmiş kemik adsorbanlarının kullanıldığı adsorpsiyon yöntemi gelmektedir.

Adsorpsiyon etkin bir yöntem olmasına karşın kullanılan adsorbanların zor bulunması, pahalı olması ve uygulamadaki güçlükler nedeni ile bu prosesten başka çeşitli metodlar da geliştirilmiştir. Koagülasyon yönteminde kullanılan ekipmanlar kolaydır ve uygun işletme koşullarında florür giderimi fazladır; ancak yüksek florürlü sularda fazla miktarda kirletici olması durumunda örneğin sülfat iyonu gibi prosesin verimi düşüktür. Elektrodializ, ters ozmoz, nanofiltrasyon metodlar florür gideriminde etkilidirler. Ancak florür iyonu dışında birçok iyonu da giderdikleri için işletme maliyetleri yüksektir. Florür arıtımında yüksek giderim verimlerinin elde edildiği bir metot elektrokoagülasyondur (Zuo ve diğ., 2008).

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

Meenakshi ve Maheshwari (2006) florürün asıl kaynağının yer altı suları olduğunu ve konsantrasyonun 1 ile 35 mg/L arasında değiştiğini vurgulamışlardır. Florürün insan sağlığına olumsuz etkilerinden dolayı içme suyundaki üst limit değerini 1 mg/L ve bu değer in sıcaklığa bağlı olarak değişeceğini rapor etmişlerdir. Florür giderimi araştırmalarında bazı prosesleri karşılaştırdıklarında Çizelge 3.1'deki sonuçları elde etmişlerdir. Başlangıç florür konsantrasyonu 4 mg/L ile 9 mg/L ile değişen sentetik numunelerde aktif alümina ile adsorpsiyon ve Nalgonda tekniği (kireç ve alum ile ön çöktürme) ile yapılan deneylerde florür giderimini % 70 civarında bulurken; ters ozmozda bu değerin % 90'lara çıktığını ulaştığını rapor etmişlerdir.

Çizelge 3.1 : Florür giderim verimleri (Meenakshi ve Maheshwari, 2006).

Arıtma öncesi Florür		Arıtma sonrası Florür	
Başlangıç Florür (mg/L)	Aktif Alümina (mg/L)	Nalgando (mg/L)	Ters ozmoz (mg/L)
4,2	1,13	1,42	0,32
7,8	1,96	2,32	0,63
8,6	2,23	2,56	0,78
9,2	2,11	2,42	0,88
8,2	2,17	2,43	0,76
6,2	1,81	2,16	0,56

Sollo ve arkadaşları (1985) koagülasyon yöntemi kullanılarak başlangıç konsantrasyonu 5 mg/L florür olan suda giderim verimini etkileyen en önemli iki parametrenin alum dozunun başlangıç florür iyonu konsantrasyonuna oranı ve pH olduğunu belirtmişlerdir. Optimum pH'ın ise 6 civarında olduğunu vurgulamışlardır. Zhang ve diğerleri (2005) yürütmüş oldukları deneysel çalışmada membran koagülasyon reaktörü kullanarak içme suyunda florür giderimini incelemişlerdir. Jar-Test denemeleri ile florür giderimi için optimum pH aralığını bulmuşlar ve pH 6–6,7 aralığında reaktöre sodyum hidroksit ve alüminyum sülfat ilave edince florür konsantrasyonun 4 mg/L'den 1 mg/L'nin altına düştüğünü belirtmişlerdir.

Srimurali ve arkadaşları (1998) florür iyonu gideriminde düşük maliyetli materyaller üzerinde çalışmışlardır. Çalışmada 2 g/L dozda, başlangıç florür konsantrasyonu 5 mg/L olan bir çözeltide bentonit, kömür tozu, kaolin, linyit materyallerin florür arıtımında denemişler ve bu adsorbanların florür giderim verimlerini sırasıyla % 33, % 19, % 18,2, % 7,9 ve % 5,9 olarak tespit etmişlerdir. pH, adsorban dozu ve temas süresi gibi ortam şartlarının optimize edilmesiyle bentonit ile en yüksek florür giderim verimini % 40 olarak bulmuşlardır.

Raichur ve Basu (2001) nadir toprak elementlerinden oluşan bir materyalle adsorpsiyon yöntemi ile florür arıtma çalışması yapmışlardır. pH, adsorban miktarı, ortamda bulunan diğer iyonların etkisi gibi parametreleri zamanın fonksiyonu olarak çalışmışlardır.

Adsorpsiyonun maksimum olduğu pH değerini 6,5 olarak bulmuşlardır. Deneylerde başlangıç florür iyonu konsantrasyonu 50 mg/L ve pH değeri 6,5 iken 60 dakikalık bir karıştırma işlemi sonucunda % 95-100 giderim verimi sağlamışlardır. Adsorpsiyon kinetiğine göre florür iyonunun adsorplanmasının karıştırma işleminin başlangıcından 5-10 dakika sonra tamamlandığını söylemişlerdir. Adsorpsiyonun Langmuir izotermine uyduğunu belirlemişlerdir.

Mahramanlıoğlu ve arkadaşları (2002) asit ile muamele edilmiş gıda endüstrisi atık ağartma toprağı ile yaptıkları florür arıtım çalışmasında giderme veriminin; temas süresi, pH, ve adsorban dozuna bağlı olduğunu göstermişlerdir. Florürün adsorpsiyon mekanizmasını da materyal yüzeyine tutulma ve partiküller arası difüzyonla açıklamışlardır. Ortamda bulunan anyonlardan florür iyonu giderimi üzerinde olumsuz etki gösteren iyonları sırasıyla fosfat > sülfat > nitrat olarak tespit etmişlerdir. Maksimum florür giderimini pH 3,5 'ta sağlamışlardır.

Ku ve Chiou (2002) yaptıkları birçok araştırma sonucunda sulu çözeltilerden florür arıtımında adsorban yüzeyinde Al^{3+} , La^{3+} ve Y^{3+} iyonlarının bulunmasının florürün seçiciliğini ve giderimini arttırdığını tespit etmişlerdir.

Islam ve Patel (2006) yürüttükleri deneysel bir çalışmada aktif sönmemiş kireç (CaO) kullanarak sulu ortamdan adsorpsiyon ile florür giderimi etkinliğini araştırmışlardır. Çalışmada kullanılan CaO'yu, dolamitin $[CaMg(CO_3)_2]$ parça boyutu $150\ \mu m$ 'den küçük olacak şekilde öğütülmesi ve $450^\circ C$ 'de 4 saat bekleterek aktifleştirilmesi yöntemiyle elde etmişlerdir. Çalışma sonucunda 50 mg/L florür içeren sulu çözeltilere 5 g/L termal olarak aktifleştirilmiş CaO eklemişler ve % 80,5 oranında florür adsorpsiyonunu sağlamışlardır. Ancak düşük florür içeren sularda (10 mg/L) giderim % 27,5 ile sınırlı kalmıştır. Çalışmada florür giderimi için optimum pH 12,7'1, optimum temas süresini ise 75 dakika olarak rapor edilmiştir.

Sujana ve diğerleri (2009) amorf yapıdaki Fe/Al hidroksitin florür giderimindeki etkisini araştırmışlardır. Fe ve Al tuzlarını pH 7,5'da farklı oranlarda karıştırıp ön çöktürme yaparak hazırlamışlar; florür arıtımına pH, sıcaklık, başlangıç florür konsantrasyonunun etkisini incelenmişlerdir.

Başlangıç florür konsantrasyonu 20 mg/L, $30^\circ C$ sıcaklıkta, adsorban dozu 0,5 g/L ve pH 4'de gerçekleşen deneylerde 2 saat sonunda en yüksek florür giderimin Fe: Al oranı 1 olduğunda gerçekleştiğini belirtmişlerdir.

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

Gao ve diğerleri (2009) sulu çözeltide sentetik olarak hazırlanan hidroksiapatit (HAP) ile florür giderimini araştırmışlardır. Deneysel çalışmaları $25^\circ C$ sıcaklıkta yürütmüşlerdir. Florür giderim kinetiği pseudo-ikinci derece ile gerçekleşmiş olup Freundlich izotermine uyumluluk gösterdiği tespit edilmiştir.

Bu çalışmada; en iyi giderim performansının düşük partikül çapında gerçekleştiği vurgulanmış ve florür konsantrasyonu ve pH azaldıkça florür giderim veriminin arttığı belirlenmiştir. Maksimum proses verimine pH 5, 0.5 g/25 mL adsorban dozunda ve 120 dakikada ulaşmışlardır. Bu işletme koşullarında başlangıç 5 mg/L florür konsantrasyonu için yaklaşık % 99'luk bir giderim verimi elde etmişlerdir.

Hichour ve diğerleri (1999) DSV, AFX, AFN, AMX, ACS anyon değiştirici membranlarını kullanarak NaF çözeltilerinden florür iyonu giderimini araştırmışlardır. Bu membranlar için iyon değişim kapasitesi, su tutma kapasitesi, seçicilik katsayısı, difüzyon katsayısını belirlemişlerdir. DSV membran için bu parametrelerin diğer membranlardan yüksek olduğunu tespit etmişlerdir. Yürüttükleri Donnan dializ sonuçları DSV membranın florür iyonu gideriminde en etkili membran olduğunu göstermiş, florür iyonun da incelendiği bu çalışmada SO_4^{2-} iyonlarının florür gideriminde en az etkiye sahip olduğu tespit edilmiştir.

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

3.1 Elektrokoagülasyon

Elektrokimyasal yöntemler, son yıllarda su ve atıksu arıtma proseslerinde yaygın olarak kullanılmaya başlanmıştır. Elektrokimyasal arıtım prosesleri elektrodpozisyon, elektrokoagülasyon, elektroflotasyon, elektrooksidasyon üzere dört grupta ele alınmaktadır (Naumczyk ve diğ., 1996). Elektroflotasyon suyun elektrolizi ile oluşturulan hidrojen ve oksijen gazlarının kabarcıkları ile kirleticileri su yüzeyine taşıyan bir prosestir (Chen, 2004). Elektrooksidasyon uygulamasında anodik olarak oluşturulan klor ve hipoklorit kirleticilerin oksidasyonunda kullanılmaktadır (İlhan ve diğ. 2007).

Elektrokoagülasyon (E.K.) prosesi son yıllarda su ve atıksu arıtımında kullanılmaya başlanmış olan uygulanması kolay ve çoğu organik ve inorganik kirleticinin gideriminde etkili bir yöntemdir (Mollah ve diğ., 2001).

Elektrokoagülasyon atıksu geri kazanımı için gereken kimyasalların miktarını azaltmak ya da tamamen yok etmek amacıyla geliştirilmiştir. Kimyasal koagülasyon, süspanse maddeleri destabilize etmek ve çözünabilir partikülleri ve diğer inorganik türleri çöktürmek amacıyla yıllardır kullanılmaktadır. Bu uygulamada alum, kireç ve/veya polimerlerden kaogülan ve koagülasyon yardımcısı olarak yararlanılmaktadır. Koagülasyon prosesi, yüksek su içeriği ve bu nedenle de filtrasyonu yavaş ve susuzlaştırması zor olan yüksek miktarlarda çamur oluşturmaktadır. Bu arıtma prosesleri aynı zamanda çıkış suyundaki toplam çözünmüş katı madde içeriğini arttırma eğilimindedir. Çözünmüş madde içeriğindeki artış arıtılmış suların endüstriyel uygulamalarda tekrar kullanımını olanaksızlaştırmaktadır. Kimyasal koagülasyondan farklı olarak elektrokoagülasyon prosesinde koagülan, uygun anot materyalinden elektrolitik olarak yerinde üretilmektedir. Elektrokoagülasyon prosesinde yüklü iyon türleri ile anottan çözünmüş olan metal iyonları metal hidroksit floklarını oluşturmaktadır (Lema ve diğ., 1998). Bu proses iyon ve partikül yüklerini nötralize ederek kirleticilerin çökmesini, kimyasal koagülasyonla mümkün olan konsantrasyonun altına düşmesini ve pahalı kimyasal maddelerin (partikül tuzları, polimerler) kullanımının azaltılmasını ve/veya kullanılmamasını sağlamaktadır. Elektrokoagülasyon prosesi sulu ortamdaki kirleticilerin koagülasyonunu arttıran katyonların elektrolitik oksidasyonla alüminyum veya demir anotlar tarafından üretimine dayanmaktadır.

Elektrokoagülasyon proses; fiziksel ve kimyasal prosesleri bir arada içermektedir (Vardar, 2006). Su ve atıksu arıtımında elektrokoagülasyon yöntemi uygulandığında elektrokimya, adsorpsiyon, flotasyon ve koagülasyon proseslerinin birbiri ile etkileşimde olduğu rapor edilmektedir (Holt ve diğ. 2005).

Elektrokoagülasyon prosesi uygulanan potansiyele bağlı olarak tükenen anodun oksidasyonu ile yerinde koagülan üreten, eşzamanlı olarak da katotta hidrojen gazı oluşumunu mümkün kılarak flotasyon ile kirlilik giderim imkanı sağlayan bir teknolojidir.

Elektrokoagülasyon prosesinde kirleticiler;

- elektrotların yüzeyinde oluşan elektrolitik reaksiyonlar;
- sıvı fazda koagülanların (metalik iyonların) oluşumu;

3.1.1 Elektrokoagülasyon prosesinin kullanım alanları

Elektrokoagülasyon prosesi, birçok avantajından dolayı farklı endüstriyel atıksuların arıtılmasında etkili bir yöntem olarak kullanılmaktadır. Elektrokoagülasyon yöntemi ile atıksulardaki ağır partiküller, süspanse ve kolloid maddeler, yağ ve gres, kompleks yapıcı maddeler, bakteri ve virüslerin giderimi yüksek verimlerde gerçekleştirilmektedir (Water Treatment Handbook, 1991; Veressina ve diğ. 2001; Mollah ve diğ. 2001). E.K. prosesi elektrokaplama atıksular, içme suları, karasu (Hanafi ve diğ., 2010), kentsel atıksular (Pouet ve Grasmick, 1995), ağır metal içeren atıksular (Kabdaşlı ve diğ., 2009), tekstil endüstrisi atıksuları (Kobyta ve diğ., 2003), çöp sızıntı suları (Labanowski ve diğ., 2010), restoran atıksuları (Chen ve diğ., 2000), florürür (Khatibikamal ve diğ., 2010) ve arsenik (Balasubramanian ve diğ., 2009) içeren atıksular, çamaşırhane atıksuları (Wang ve diğ., 2009), yüzey aktif maddeler içeren atıksular (Martins ve diğ., 2006), tarım sanayi atıksuları (Drogui ve diğ., 2008), mandıra atıksuları (Tchamango ve diğ., 2010) gibi spesifik inorganik/organik kirleticiler içeren atıksuların arıtımında kullanılmaktadır.

3.1.2 Elektrokoagülasyon yönteminin avantajları ve dezavantajları

Koagülasyon-flokülasyon yöntemi ile karşılaştırıldığında; yerinde üretilen metal hidroksitlerin mineral yüzeyine adsorplanma eğiliminin kimyasal olarak eklenen metal tuzlarına göre çok daha yüksek olması nedeniyle elektrokoagülasyon etkin bir arıtma teknolojisi olarak son yıllarda uygulanmaya başlanmıştır (Mollah ve diğ.,2001). Elektrokoagülasyon uygulamasının gerçekleştirildiği ekipmanlar (reaktörler) basit olup istenilen boyutta dizayn edilebilmektedir. Söz konusu reaktörlerin işletimi kolaydır. Başlangıç maliyeti ve işletme maliyetleri düşüktür. Uygulamada kimyasal ilavesi yapılmamaktadır. Düşük akım gerektirmekte ve küçük koloidal partikülleri etkin bir şekilde destabilize edebilmektedir. Minimum seviyede çamur oluşmaktadır. Oluşan çamur temel olarak metal oksitleri /hidroksitleri içermesi nedeni ile kolay çökebilir ve susuzlaştırılabilir bir yapı sergilemektedir. Elektroliz sırasında üretilen gaz kabarcıkları flotasyonu hızlandırmaktadır. Elektrokoagülasyon uygulamasında en küçük yüklü partiküller bunların hareket etmesine neden olan elektrik alan sayesinde koagüle olma eğilimi gösterdiğinden bu arıtma yöntemi kolloidal partiküllerin etkin bir şekilde giderimini mümkün kılmaktadır.

Elektrokoagülasyon ile oluşturulan floklar kimyasal koagülasyonda oluşturulan floklara benzemekle birlikte daha az su ihtiva eden, daha kararlı ve büyük yapıya sahiptir. Bu nedenle arıtılmış sudan filtrasyon ile hızlı bir şekilde ayrılabilir. Ayrıca elektrokoagülasyon metodu ile arıtılan atıksular daha az toplam çözünmüş madde katı içeriğine sahiptir. Eğer suyun yeniden kullanımı söz konusu ise bu düşük toplam çözünmüş katı içeriği daha düşük su geri kazanım maliyeti getirecektir. Elektrokoagülasyon pilindeki elektrolitik prosesler elektriksel olarak kontrol edilmekte bu yüzden daha az bakım gerekmektedir (Mollah ve diğ., 2001).

Elektrokoagülasyon prosesinin avantajları yanında dezavantajları da vardır. Kurban elektrotlar oksidasyonun bir sonucu olarak atıksu içerisinde çözülür. Bu yüzden periyodik olarak değiştirilmelidir. Katotta elektrokoagülasyon pilinin performansını olumsuz yönde etkileyebilecek bir geçirimsiz oksit tabakası oluşabilmektedir. Ayrıca elektrik maliyetinin yüksek olduğu yerlerde işletme maliyeti de yüksek olacaktır (Mollah ve diğ., 2001).

3.1.3 Elektrokoagülasyon uygulamasında proses verimine etki eden parametreler

Elektrokoagülasyon ünitesinin geliştirilmesi ve optimizasyonu için pH gibi atıksuya ait karakteristikler, akım yoğunluğu ve uygulama süresi gibi proses değişkenleri, elektrot materyalinin tipi ile bağlantı şekli gibi proses konfigürasyonlarının ayrıntılı bir şekilde göz önüne alınması gerekmektedir (Eyvaz ve diğ., 2007).

Elektrokoagülasyonda sonucu etkileyen en önemli parametrelerden biri elektrot tipidir. Elektrot tipi artırılması istenen kirletici maddeye uygun olarak seçilmelidir. Elektrokoagülasyon yöntemi için demir ve alüminyum elektrotlar yaygın şekilde kullanılmaktadır. Elektrokoagülasyon alüminyum ya da demir elektrotlardan, alüminyum ya da demir iyonlarının elektriksel olarak çözülmesi ile koagülanların üretilmesi sağlanmaktadır (Bektaş ve diğ., 2004). Elektrokoagülasyonda kullanılan elektrot malzemeleri genellikle alüminyum, çelik, demir ve hurdadır. Demir elektrot, halojen organik bileşikler oksitlemede test edilmiş bir yeteneğe sahiptir. Alüminyum elektrotların atıksu arıtımında Al^{3+} iyonunun yüksek koagülasyon verimi nedeniyle tek başına veya demir elektrotlarla kombinasyon halinde uygulama alanı bulmaktadır. Suda önemli miktarda Ca^{2+} ve Mg^{2+} iyonları bulunuyor ise katot malzemesi olarak paslanmaz çelik kullanılması tavsiye edilmektedir. Elektrokoagülasyonda alüminyum elektrot kullanıldığında akım veriminin

başlangıçta sıcaklık ile arttığı, 60°C’de maksimum akım verimine ulaşılması ile artışın durduğu belirtilmiştir. 60°C’den sonraki sıcaklık artışları akım veriminde düşüşe neden olmaktadır. Sıcaklık ile akım veriminin artması elektrot yüzeyi üzerindeki alüminyum oksit tabakasının parçalanması sonucu aktivitenin artması nedeniyle gerçekleşmektedir. Sıcaklık çok yüksek iken elektrot yüzeyinde birikme eğilimi fazla olan flokların meydana gelmesi ile sonuçlanan gözenekli $Al(OH)_3$ oluşumu gerçekleşmektedir (Chen, 2004).

Elektrotların reaktör içerisinde yerleşimi büyük önem taşımaktadır. Monopolar ve bipolar elektrotlar kullanılarak seri ya da paralel şekilde bağlanmak suretiyle farklı giderim verimleri sağlanabilmektedir. Tek kutuplu elektrotların seri bağlanması durumunda içteki çözünen anot elektrotların en dıştaki monopolar anot veya katot ile bir bağlantısı bulunmamaktadır. Seri bağlı elektrotların kullanıldığı sistemlerde ortama verilecek akımın geçmesi için daha yüksek bir potansiyel fark uygulamak gerekmektedir; çünkü seri bağlı elektrokoagülasyon reaktörlerinde direnç daha yüksektir. Bu yüzden reaktör içinde her yerde akım aynı değerdedir (Mollah ve diğ. 2004).

Elektrotların paralel çift kutuplu bağlanması durumunda bir güç kaynağına bağlı monopolar anot ve katot elektrot arasına birbiri ile bağlantısı olmayan çözünen anot elektrotlar yerleştirilmektedir.

Reaktördeki sıvı çözeltiye elektrik akımı uygulandığında ortamdaki çözünen bağımsız anot elektrotların bir yüzü anot diğer yüzü katot gibi davranmaktadır. Bu reaktör düzeni basit olup kullanım sırasındaki bakımı kolaydır.

Elektrotlar arası mesafe, E.K. üzerinde önemli bir etkiye sahip olmamakla birlikte elektrotlar arası mesafe arttığı zaman proses verimi de az miktarda artmaktadır. Bu değişim muhtemelen elektrostatik etkilerin elektrotlar arası mesafeye bağlı olması nedeniyle meydana gelmektedir. Bu mesafe arttığı zaman üretilen iyonların hareketi yavaşlamakta ve flock oluşturma ihtimalleri artmaktadır (Daneshvar ve diğ., 2004).

Elektrokimyasal arıtımda önemli işletme şartlarından biri de akım yoğunluğudur. Akım yoğunluğunun optimizasyonu elektrokimyasal arıtım yöntemi için çok önemlidir. Gerekenden fazla akım yoğunluğu uygulandığında maliyet artabilir bunun yanı sıra çamur oluşumunda da artış gözlenecektir. Ayrıca arıtma prosesinde akım

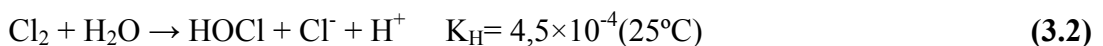
yoğunluğu ile temas süresi yakından ilişkilidir. Yüksek akım yoğunluğu uygulandığında ise daha kısa süreli bir arıtma gerçekleşmektedir (Mollah, 2001).

Su ve atıksu arıtımında E.K. uygulamasının gerçekleştirildiği pH değeri sistem verimi üzerinde önemli bir rol oynamaktadır. pH, elektrokoagülasyon sırasında ortamda oluşan elektrolitik reaksiyonları doğrudan etkilediği için büyük öneme sahiptir; metal hidroksitlerin oluşumunda birinci dereceden etkilidir. Belli pH değerleri dışında koagülanlar oluşmayacağı gibi hidroksil radikallerinin oluşum yüzdesi de büyük oranda azalacaktır. Çok asidik ve bazik pH değerlerinde metal hidroksit çözünürlüklerinde belirgin artışlar meydana geleceğinden buna paralel olarak koagülasyona dayanan uygulamalarda flok oluşumunda ciddi azalmalar gözlenecektir. Flokların az oluşması sistem veriminde belirgin düşüslere neden olabilmektedir. Elektrokoagülasyon ile arıtım sonrası çıkış suyunun pH'ı asidik atıksular için artma, alkali atıksular için azalma eğiliminde olması E.K. prosesinin avantajlarından bir tanesi sayılabilmektedir. Asidik koşullarda pH'daki bu artışın nedeninin katotlarda oluşan hidrojen olduğu tespit edilmiştir (Cassialas ve diğ., 2007). Alüminyum elektrotların akım verimlerinin asidik veya alkali koşullarda nötr koşullara göre daha yüksek olduğu bilinmektedir.

Temas süresi tüm arıtım proseslerinde olduğu gibi elektrokimyasal arıtım uygulamalarında da önemlidir. Arıtma çalışmalarda arıtım süresinin optimizasyonu gerekmektedir.

Aksi takdirde gerekenden az bir temas süresi uygulandığında ihtiyaç duyulan verim sağlanamayabileceği gibi uzun süreli arıtmalar ise gerek maliyet açısından gerekse çamur ve köpük oluşumu bakımından uygun değildir. Her tip atıksuyun temas süresi birbirinden farklıdır (Antropov ve diğ., 1997).

Elektrokimyasal prosesler için çözeltinin iletkenliği önemli bir faktördür. Sentetik olarak hazırlanan çözeltilerin iletkenliği elektrolit çözeltisinin tipine ve konsantrasyonuna bağlıdır. Elektrokoagülasyonda elektrolit kaynağı olarak oldukça yüksek iletkenlik ve yüksek çözünürlüğe sahip, düşük maliyetli ve aktif klorün güçlü oksitleme özellikleri nedeniyle genellikle NaCl kullanılmaktadır (Kim ve diğ. 2002). Ortamda elektrolit olarak NaCl bulunması durumunda;





reaksiyonları meydana gelmektedir (Chen, 2004). Bu reaksiyonlar uyarınca asidik pH'lar daha kuvvetli oksidan olan HOCl oluşumuna imkan tanıyacaktır. Nötr veya hafif alkali pH'larda ise OCl⁻ hakim tür olacaktır. Buna karşın çok yüksek pH'larda (pH>11) OCl₃⁻ ve OCl₄⁻ oluşumları nedeniyle oksidasyon gücünde önemli düşüşler meydana gelecektir.

3.1.4 Elektrokoagülasyon prosesi mekanizmasının incelenmesi

Elektrokoagülasyon yöntemini açıklayabilmek için bu proses sırasında meydana gelen kimyasal reaksiyonların tam anlaşılması önemlidir; bu kimyasal reaksiyonların iyi tanımlanabilmesi için galvanik ve elektrolit pil arasındaki fark bilinmelidir. Elektrolit pil elektrik enerjisini kullanan elektrolite batırılmış elektrotların elektrik akımı ürettiği bir sistem iken; galvanik pil ise kimyasal reaksiyonlar sonucu elektrik akımı oluşturan elektrokimyasal pildir (Hernandez, 2002). Elektrokimyasal pil oluşumu elektrokoagülasyon yönteminin temelini oluşturmaktadır. Bu sistemde elektrolit içine daldırılmış bir anot ve katot yer almaktadır. Dışarıdan elektirik enerjisi verilerek akım uygulandığında; katotta indirgenme oluşurken anotta yükseltgenme meydana gelmektedir (Mollah, 2004).

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

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

Anotta:



Katotta:



şeklinde özetlenebilmektedir (Mollah ve diğ., 2004). Elektrik akımının hareketi sonucu suyun hidroliz gerçekleşmektedir. Katotta gerçekleşen redüksiyon reaksiyonlarının sonucunda ise hidrojen gazı oluşmaktadır. Oluşan hidrojen gazı suyun hidrolizi reaksiyonlarının bir ürünüdür. Elektrokoagülasyon prosesinde NaCl yaygın olarak kullanılan bir elektrolittir. NaCl sulu çözeltide sodyum ve klorür iyonlarına dönüşmektedir.



3.1.4.1 Elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderim mekanizması incelenmesi

E.K. prosesinde alüminyum elektrotları kullanılması ile Al anotta çözünmekte ve katotta da hidrojen gazı açığa çıkmaktadır. Alüminyumun çözünmesi sırasında anotta farklı Al türleri üretilmektedir. Al türleri, büyük boyutta floklar oluşturmak için koagülan olarak kirleticilerle birleşmektedir. Alüminyum doğada sadece +3 değerlikte bulunan bir elementtir.

Al elektrodu kullanılması durumunda; E.K. hücresinde meydana gelen prosesler alüminyum anotlarının oksidasyonu ile suda elektrolitik şeklinde çözünerek Al^{3+} türleri oluşturmaktadır (Emamjomeh ve Sivakumar, 2006).

pH>5,5’da alüminyum, gibbsite ($\text{Al}(\text{OH})_3$) veya alüminosilikatlar gibi çözünmeyen bileşikler halindedir (UNEP, ILO, WHO, 1997). pH 7’nin üzerinde ise $\text{Al}(\text{OH})_3$ alüminat iyonu olan $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ şekline dönüşmektedir. Çok düşük pH değerlerinde ise (pH< 4) alüminyum genel olarak 3 değerlikli katyon şeklinde bulunur. pH 4,5-6,5 aralığında ana türler; $\text{Al}(\text{OH})_3^+$, $\text{Al}(\text{OH})_2^-$ ve $\text{Al}(\text{OH})_3$ tür. pH > 6,5 olduğu zaman ana tür $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ dir. Alüminyumun çözünürlüğü pH 5,5-6 aralığında en düşük seviyededir (Moore, 1991).

Alüminyum metali ile anot ve katottaki elektrokimyasal reaksiyonlar;

Anotta;



Katotta;



şeklindedir.

Hidroliz sırasında oluşan H_2 gazı su yüzeyine doğru yüzer ve bundan dolayı da flotasyon prosesini hızlandırır. Al^{3+} iyonlarının katı $Al(OH)_3$ presipitatu oluşum reaksiyonu denklem 4.14, 4.15 'de görülmektedir (Ghosh, 2008).



Al elektrotların kullanıldığı E.K. prosesinde koagülan üretim mekanizması kimyasal koagülasyondaki mekanizmaya benzemektedir. Her iki proseste de Al^{3+} 'ün hidrolizi ve bunun sonunda çeşitli alüminyum hidroksit polimer kompleks ve çökeltileri meydana gelmektedir (Mollah, 2001). Elektrokoagülasyonda ana etkileşim prosesinin adsorpsiyon ardında da çökelme olduğu belirtilmiştir.

Meydana gelen monomer türler $Al(OH)^{2+}$, $Al(OH)_2^+$, $Al_2(OH)_2^{4+}$, $Al(OH)_4^-$; polimer türler ise $Al_6(OH)_{15}^{3+}$, $Al_7(OH)_{17}^{4+}$, $Al_8(OH)_{20}^{5+}$, $Al_{13}O_4(OH)_{24}^{7+}$, $Al_{13}(OH)_{35}^{5+}$ olarak literatürde yer almaktadır.

pH<5.5'de alüminyumun molar konsantrasyonu çoğu zaman florür konsantrasyonundan fazladır ve düşük ligand sayılı kompleksler meydana getirmektedir.

Bu şartlar altında Al-F komplekslerinin konsantrasyonu florür iyonlarının toplam konsantrasyonu ile sınırlıdır. pH>7 olduğu zaman Al-OH kompleksleri suda baskın hale geçer ve ortamda çözünmüş organik madde ve silikatlar azalmaktadır .Sujana ve arkadaşları (1998) yüksek pH değerlerinde ortamdaki OH^- iyonlarının F^- iyonları ile rekabet ettiğini ve bundan dolayı florür gideriminin azalmasına neden olduğunu; ancak düşük pH değerlerinde florürün iyon olarak ortamda kalmayı tercih ettiğini ifade etmişlerdir.

Kompleks çökelme kinetiğine göre en çok ve çabuk oluşan tür $Al(OH)_{3(s)}$ 'dir (Moudhen ve diğ., 2008). Bunun yanı sıra $Al(OH)_3$ kompleksinin en yüksek florür adsorplama kapasitesine sahip olduğuna inanılmaktadır (Hu ve diğ., 2003).

Literatürde elektrokoagülasyon ile florür giderim mekanizması ile ilgili ikinci bir hipotez de yer almaktadır. Buna göre; yüksek florür konsantrasyonunda Al^{3+} iyonları anot yakınında AlF_6^{3-} bileşiğini oluşturup sodyum iyonu ile birleşerek Na_3AlF_6 çözünmeyen tuzu oluşturarak çökmektedir. Reaksiyonlar denklemleri (3.16-3.23)'deki gibidir (Mameri ve diğ., 1997).



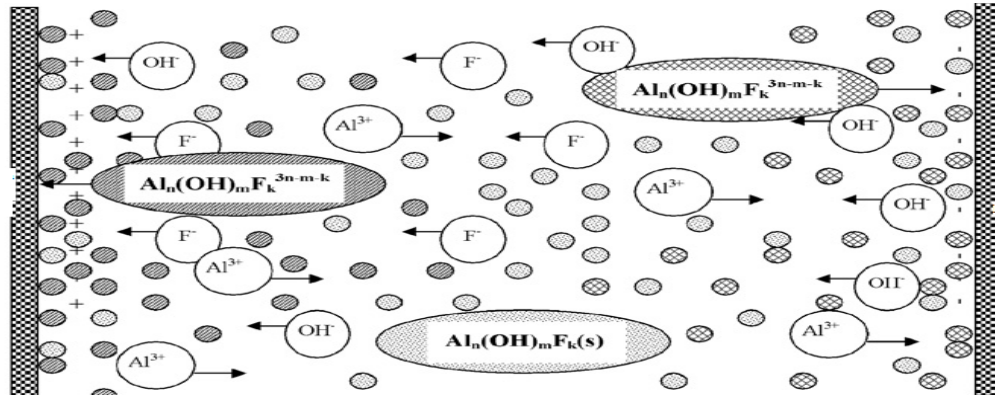
Anotta;



Katotda;



Son yıllarda ortaya atılan başka bir teoriye göre; florür arıtımının E.K. yönteminde 3 bölümde gerçekleştiğidir. Elektrokoagülasyon sonunda florür iyonlarının bir kısmı suda kalmakta, bir kısmı floklara adsorplanmakta, kalanlar ise elektroliz reaksiyonları sonucunda elektrot yüzeyinde oluşan jelatinimsi tabakaya tutunmaktadırlar. Şekil 3.2 'de şematik olarak gösterilmiştir (Zuo ve diğ., 2008).



Şekil 3.2 : E.K. prosesinde alüminyum elektrotları ile florür giderimi şematik gösterimi,(Zuo ve diğ. 2008).

3.2 Elektrokoagülasyon Yöntemi ile Florür Giderimi Uygulamaları

Drouiche ve arkadaşları (2005) florür içeren sentetik numunelerde alüminyum elektrotları kullanarak E.K. prosesinin florür arıtım verimini incelemişlerdir. Elektrokoagülasyonda uygulanan potansiyelin temas süresinin ve yardımcı elektrolitin etkin parametreler olduğunu vurgulamışlardır. Fotovoltik endüstrisi atıksuyu karakterizasyonu yapılmış buna uygun sentetik numuneler hazırlanarak

kasiyum çöktürmesi yapıldıktan sonra NaF çözeltisinden istenilen konsantrasyonlarda florür içeren numuneleri E.K. prosesi uygulaması için hazır hale getirmişlerdir. Florür ölçümleri için iyon seçici elektrot kullanmışlar; Al ve Ca gibi iyon girişimlerini önlemek amacı ile pH 5,4'de TISAB çözeltisini florür tayini yapılacak örneklerle ilave etmişlerdir. Deneyleri 25 °C'de dışarıdan bir güç kaynağına bağlı bir bölmesinde 170 cm² yüzey alanına sahip 3 alüminyum elektrodu bulunan 1 L hacmindeki reaktörde yürütmüşlerdir.

Başlangıç florür konsantrasyonu 20 mg/L, pH 6'da uygulanan potansiyel aralığı ise 10 V ile 30 V aralığında olduğunu belirtmişlerdir. Yapılan çalışmalar sonucunda uygulanan potansiyelin ve elektrokoagülasyon süresinin koagülan dozu hızını belirlediğini anlamışlardır. Uygulanan potansiyel arttıkça daha fazla Al³⁺ suya geçerek Al(OH)₃'ün oluşum hızının arttığını; böylece florür giderimin daha etkili olduğunu gözlemlemişlerdir.

Yardımcı elektrot olarak NaCl seçmişler; en yüksek giderimin 100 mg/L tuz kullanıldığı zaman ortaya çıktığını belirtmişlerdir. 20 mg/L florür konsantrasyonun 60 dakika sonunda 30 V uygulandığında 100 mg/L NaCl varlığında 13 mg/L' ye düştüğünü bulmuşlardır.

Rao ve diğerleri (2003) alüminyum bipolar elektrotlarını kullanarak E.K. yöntemi ile sulardan florür giderim mekanizmasını inceledikleri çalışmada sentetik numunelerle yaptıkları deneylerde elektrot arası uzaklık, başlangıç florür konsantrasyonu, sıcaklık ve pH'ın florür arıtımına etkisinin olduğu belirlemişlerdir. Prosesin temel prensibi şu şekilde açıklamışlardır; anottaki alüminyum suda çözünerek alüminyum hidroksit olarak çökerek florürün bu bileşik üzerine adsorplanarak sudan uzaklaşmasıdır. 5-10 mg/L F⁻ içeren sularda elektrokoagülasyon prosesi 1000 L başına 0,3 ile 0,6 kwh elektrik harcadığını söylemişlerdir. Anot sürekli olarak tükendiği için deneysel çalışmalar sırasında alüminyum elektrotları yenilemişlerdir. Proses sonucunda oluşan çamur 1000 L için 80 ile 100 mg arasında olduğunu tespit etmişlerdir.

Elektrokoagülasyon ve elektroflotasyon yöntemleri bir arada kullanılarak içme sularından florür giderimi üzerindeki etkisi Zuo ve diğerleri (2008) tarafından araştırılmıştır. Başlangıç pH'ının florür giderim prosesi üzerindeki etkisinin belirgin olduğunu vurgulamışlardır. Optimum başlangıç pH'ının 6 ile 7 aralığında olduğunu söylemişlerdir. Suda bulunan diğer iyonların florür giderimine etkisini incelediklerinde sülfat iyonlarının prosesi olumsuz yönde etkilediğini

gözlemlemişlerdir. Bunun sebebinin sülfat iyonlarının alüminyum elektrotlarında bölgesel olarak korozyona neden olduğunu belirtmişlerdir. Cl^- iyon etkisinin florür arıtımında çok büyük bir girişiminin olmadığını; ancak elektrotlar ile çözelti arasındaki iletkenliğin sağlanıp alüminyum türlerinin oluşabilmesi için klorür iyonlarına ihtiyaç duyulduğunu söylemişlerdir. Ca^{2+} varlığında ise çıkış florür konsantrasyonun beklenilenden daha yüksek mertebede olduğunu gözlemlemişlerdir. Kalsiyum iyonu florür ile reaksiyona girdiğinde CaF_2 'nin çöktüğünü belirtmişlerdir. CaF_2 25°C 'deki çözünürlük çarpımı $1,7 \times 10^{-10}$ olduğundan, $\text{Ca}^{2+} < 150 \text{ mg/L}$ olan içme sularında uygulanan düşük akımlarda CaF_2 çökeltisinin bulunmadığını anlamışlardır.

E.K. akımı 3 Faraday/m³, E.F. akımı 1,5 Faraday/m³ ve enerji tüketiminin 1.2 kws/m³ olduğu koşullarda florür konsantrasyonun 10 dakika sonunda 4 mg/L'den 0,87 mg/L'ye düştüğünü gözlemlemişlerdir.

Mameri ve diğerleri (2001) alüminyum bipolar elektrotlarının kullanıldığı E.K. prosesine dayanan etkili ve düşük maliyetli florür giderim mekanizması üzerinde çalışmışlardır.

Çizelge 3.2 : E.K. prosesi deney koşulları (Mameri ve diğ., 2001).

Özellik	Değer
Sıcaklık	20°C
pH	5-7,6
Akım yoğunluğu	75 A/m ²
Elektrot alan/hacim oranı	25 m ² /m ³
İç elektrot uzaklığı	2 cm
Akış hızı	6,6 L/sa
Süre	12 dk
Reaktör hacmi	2,4 L

Florür ölçümlerini spesifik iyon seçici elektrot metodu ile gerçekleştirmişlerdir. Elektrokoagülasyon sonucunda suda bulunan iyonların arıtma öncesi ve sonrası iyonların miktarları ile bulanıklık ve iletkenlik değerleri çizelge 4.2’de gösterilmiştir. 12 dakika sonunda florürün yaklaşık % 90 civarında giderildiğini; kalsiyum, magnezyum, potasyum, sülfat ve klorür konsantrasyonlarında önemli bir değişikliğe rastlamadıklarını belirtmişlerdir. Sudaki bikarbonat miktarı % 40 civarında azalırken iletkenlikte bir düşüş olduğunu bulmuşlardır. Ayrıca proses sonu suyun bulanıklığının arttığını vurgulamışlardır.

Çizelge 3.3 : E.K. prosesi uygulanan suyun arıtma öncesi ve sonrası kimyasal bileşimi (Mameri ve diğ., 2001).

	Arıtma öncesi	Arıtma sonrası
F ⁻ (mg/L)	3	0,8
Ca ²⁺ (mg/L)	245	238
Mg ²⁺ (mg/L)	120	115
K ⁺ (mg/L)	40	39
Na ⁺ (mg/L)	450	424
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	570	550
Cl ⁻ (mg/L)	1100	1064
HCO ₃ ⁻ (mg/L)	80	52
Al ³⁺ (mg/L)	<0,05	<0,05
İletkenlik (µs/cm ²)	4,07	3,1
Bulanıklık (NTU)	11	135

Emamjomeh ve Sivakumar (2009) elektrokoagülasyon prosesi ile sürekli sistemde başlangıç pH değeri 4-7, başlangıç florür konsantrasyonu 5-25 mg/L, akım yoğunluğu 1,25-5 mA/cm² ve akış hızı 150-400 mL/dk gibi farklı işletme parametrelerin proses verimi üzerinde etkilerini araştırdıkları çalışmada monopolar alüminyum elektrotları ile florür giderimini incelemişlerdir. Deneysel çalışma kapsamında, 950×200×3 mm boyutunda 2 alüminyum elektrodu kullanmışlardır. Sentetik numune NaF ve NaCl ile hazırlamış iletkenliği 0,005 M NaCl ile yükseltmişlerdir. E.K. prosesinde akım yoğunluğunun ve koagülan dozunun giderim hızını etkileyen önemli parametreler olduğunu söylemişlerdir. Toplam alüminyum miktarının artan akım ile arttığını ve bu çalışmada maksimum alüminyum konsantrasyonu olan 355

mg/L'ye 5 mA/cm² akım yoğunluğu ve 150 mL/dk hızında ulaştığını tespit etmişlerdir. 150 mL/dk hızında ve giriş florür konsantrasyonu 10 mg/L aldıklarında, akım 1,25 mA/cm²'den 5 mA/cm²'ye çıkarılması durumunda çıkış florür konsantrasyonu sırasıyla 1,37 mg/L ve 0.12 mg/L olurken, giriş F⁻ konsantrasyonu 25 mg/L'ye yükseltildiğinde ise bu değerler 8,8 mg/L ve 2,5 mg/L olarak elde etmişlerdir. Florür giderimi için optimum pH değerinin de 6-8 arasında olduğunu bulmuş, giriş florür konsantrasyonu 10 mg/L ve pH 6 olduğunda çıkış florür konsantrasyonu 0,74 mg/L olur iken, başlangıç pH değeri 8'e yükseltildiğinde florür konsantrasyonun da 1,04 mg/L'ye yükseldiğini gözlemişlerdir.

Hu ve diğerleri (2003) florür gideriminin elektrotlardan suya geçen alüminyum miktarına, pH'a, ve suda bulunan diğer iyonların varlığına bağlı olduğunu vurgulamışlardır. 3 farklı karakterizasyonda sentetik atıksu numunesi hazırlayarak aynı şartlarda E.K. prosesi uygulamışlardır. Deneyleri dış güç kaynağına bağlı paralel 7 bipolar alüminyum elektrotun bulunduğu 1 L hacmindeki kesikli reaktörde yürütmüşlerdir. Başlangıç florür konsantrasyonunu 25 mg/L, akım yoğunluğunu 8,16x10⁻³ A/cm² seçmişlerdir. Deney sonuçları çizelge 4.3'de belirtildiği gibidir. Bu deneyler sonucunda farklı konsantrasyon ve türlerdeki iyonların varlığının E.K. florür giderim prosesi üzerinde etkin olduğunu kanıtlamışlardır. En büyük problemin sudaki yabancı iyonlar varlığında alüminyum elektrotların aşınmaya uğraması olduğunu belirtmişlerdir; bunun da kinetiği olumsuz yönde etkilediğini savunmuşlardır. En büyük girişim yapan iyonun sülfat olduğunu belirlemişler, elektrokoagülasyon sonunda pH'ın yükseldiğini belirtmişlerdir.

Çizelge 3.4 : Farklı karakterdeki sentetik örneklerdeki florür arıtım verimi (Hu ve diğ.,2003).

Sistem 1				
	Konsantrasyon (M)	Florür giderim yüzdesi (%)	Başlangıç pH	Son pH
Cl ⁻	5	87	5,23	8,98
NO ₃ ⁻	5	85	5,78	9,16
SO ₄ ²⁻	5	32,6	5,39	8,72
Sistem 2				
Cl ⁻	10	86,5	5,31	9,03
NO ₃ ⁻	10	80,1	5,4	9,02
SO ₄ ²⁻	10	21,3	5,39	8,66
Sistem 3 (SO ₄ =10M)				
Cl ⁻	10	64,7	5,59	9,03
NO ₃ ⁻	10	39,4	5,72	8,99

Elektrokoagülasyon ile florür gideriminin incelendiğini bir başka çalışmada elektrolit olarak NaCl çözeltisinin bulunduğu ortamda elektrokimyasal reaktöre paralel olarak yerleştirilmiş alüminyum elektrotlarının anodik çözülmesiyle oluşan Al-absorbanları ile florür arıtımı Yang ve Dluhy (2002) tarafından gerçekleştirilmiştir. Deneysel çalışmada pH, akım yoğunluğu, NaCl miktarı, reaksiyon süresi ve voltaj gibi işletme parametrelerinin florür giderimi üzerine etkisi incelemişlerdir. 5 alüminyum elektrotunun paralel olarak yerleştirildiği reaktörde elektrotlar arası mesafeyi 4 mm olarak ayarlamışlar ve reaktör hacmi 560 cm³ olarak seçmişlerdir. Düşük iletkenlikte 0,75 mA/cm² akım yoğunluğu oluşturmak için 14 V'a ihtiyaç duyarken işletme sırasında bu akımı koruyabilmek için 27 V'a kadar çıkmak gerektiği saptamışlar, bu şartlar altında pH 6,2'de ve 12 dakika sonunda Al absorbanlarının (8mL/L) oluştuğunu tespit etmişlerdir. Fakat akım yoğunluğunun artması ile anot yüzeyinin oksit film tabakası ile kaplanarak pasivize olduğunu gözlemlemişlerdir. Bu sebeple iletkenliğin artırılması yönünde deneylere devam etmişler ve 50 mg/L NaCl çözeltisi ile 0,75 mA/cm² akım yoğunluğu sağlanması için 7,2 V ihtiyaç duyulduğunu belirleyerek hem enerji tüketiminin azalmasını hem de absorban oluşumunun artmasını sağlamışlardır. 1,5 mA/cm² akım yoğunluğunun olduğu reaktör içerisinde 150 mg/L NaCl çözeltisi ile 12 dakika sonunda 80 mL/L Al absorbanı oluşturmuşlar ve bu taze oluşturulan absorbanlar ayrı bir kap içerisine alarak florür giderimi uygulamasında kullanmışlardır.

17 mg/L'lik florür konsantrasyonunun 2 dakika sonunda pH 8'de 2 mg/L'ye kadar düştüğünü gözlemişler; çözeltinin pH değeri HCl ile 6,3'e getirildiğinde florür konsantrasyonunun 0,1 mg/L'ye kadar da indiğini deneysel çalışmalar sonucunda belirlemişlerdir.

Su ve atıksulardan florür giderim prosesinde genellikle akım yoğunluğu, iletkenlik, pH, iç elektrot uzaklığı parametrelerinin arıtım verimliliği üzerinde durulmuştur. Yapılan başka bir çalışmada bu parametrelerin yanında elektrotların bağlanma türlerinin de etkisi incelenmiştir. Ghosh ve diğerleri (2003) içme sularından florür giderimi ile ilgili yürüttükleri deneysel çalışmada; başlangıç florür konsantrasyon aralığının 2- 10 mg/L olarak değiştiği, monopolar ve bipolar bağlı bağlantılı 2 elektrot çeşidinde en uygun akım aralığında proses performansını belirlemişlerdir. Bipolar bağlı elektrotların kullanıldığı sistemlerde 2 elektrot çiftinin bir arada bulunduğunu sadece sondaki elektrotların güç kaynağında bulunan anot ve katoda bağlı olduğunu söylemişlerdir.

Monopolar elektrotlara göre bipolar bağda 2 elektrokimyasal hücre birlikte çalıştığından daha yüksek yüzey alanına sahiptirler; dolayısıyla iki elektrota da aynı akım uygulandığında bipolardaki akım şiddeti daha yüksek böylece florür giderimin daha fazla olduğu sonucuna varmışlardır. Bipolar alüminyum elektrotlarla yürüttükleri deney sonucunda çıkış suyunda 1 mg/L F⁻ konsantrasyonunu 625 A/m² akım yoğunluğunda 30 dakika sonucu elde etmişlerdir.

Hu ve diğerleri (2007) E.K. prosesini bipolar elektrotların yer aldığı 1 L hacmindeki reaktörde gerçekleştirmişlerdir. 5 mM klorür konsantrasyonu içeren örnek için giriş florür konsantrasyonlarını 25, 20, 15 mg/L seçmişlerdir. Uyguladıkları akımlar 4, 3, 2, 1, 0,5, 0.25 A'dır. Langmuir denkleminde türetmiş oldukları VOK (variable order kinetic) değişken derece kinetik modelini elektrokoagülasyon ile florür giderim kinetiğine uygulamışlardır. Bu kapsamda alüminyum elektrotlarının kullanıldığı E.K. proses kinetiğinde başlangıç florür konsantrasyonu, akım ve başlangıç asiditesinin etkilerini incelemişlerdir. E.K. prosesinde giderim hızı kinetiği birinci dereceden denkleme uygulandığında;

$$[F^-]_{(t)} = [F^-]_0 \exp (-k_1.t) \quad (3.24)$$

denklemini elde etmişlerdir. k_1 birinci dereceden hız sabitini t ise reaksiyon süresini göstermektedir. Başlangıç florür konsantrasyonun florür giderim kinetiğine olan etkisi incelediklerinde k_1 'in konsantrasyon arttıkça azalmış olduğunu bulmuşlardır. Böylece hız kinetiğinin pseudo birinci dereceden hız kinetiğine uygun olduğunu kabul etmişlerdir.

Florür giderim mekanizması ile ilgili yapılan başka bir çalışmada çözeltinin pH'ı, alüminyum dozunun miktarı ve başlangıç florür konsantrasyonun birbiri ile etkileşimde olduğu denklemlerle Hu ve arkadaşları (2005) tarafından belirtilmiştir. Buna göre; $\gamma_{OH} = OH^- / Al(III)$ hidroksil /alüminyum mol oranını, $\gamma_{OH+F} = OH^- + F^- / Al(III)$ hidroksil + florür/ alüminyum mol oranını, $\gamma_F = F^- / Al(III)$ florür/ alüminyum mol oranını göstermektedir. $[OH^-]_0$ başlangıç hidroksil iyonunu, $[OH^-]_{EK}$ elektrokoagülasyon sonunda açığa çıkan hidroksil iyonunu, $[H^+]_0$ başlangıç hidrojen iyonunu, $[F^-]_0$ başlangıç florür ve $[Al^{3+}]_T$ toplam alüminyum konsantrasyonunu temsil etmek üzere aşağıdaki eşitlikleri elde etmişlerdir:

$$\gamma_{OH} = [OH^-] / [Al^{3+}]_T = ([OH^-]_0 - [OH^-]_{EK} - [H^+]_0) / [Al^{3+}]_T \quad (3.25)$$

$$\gamma_F = [F^-]_0 / [Al^{3+}]_T \quad (3.26)$$

$$\gamma_{OH+F} = ([OH^-]_0 - [OH^-]_{EK} - [H^+]_0 + [F^-]_0) / [Al^{3+}]_T \quad (3.27)$$

Çözeltideki pH değerini kontrol etmektense γ_{OH+F} değerinin kontrol edilmesinin E.K. prosesi veriminin üzerinde daha etkili olduğunu söylemişlerdir. En yüksek florür giderimini γ_{OH+F} değeri 3 olduğu zaman elde etmişlerdir. Bu mekanizmaya göre; Zhang ve arkadaşları (2009)'da içme sularından birleştirilmiş E.K. prosesi ile florür arıtımında alkalinite, alüminyum ve florürün birbirleri ile olan ilişkisini incelemişlerdir. Deneyleri 2 çeşit örnekle yürütmüşlerdir. Bunlardan birincisi deiyonize suya 2 mM NaCl, belirli miktarda NaF ve NaHCO₃ ekleyerek uygun alkalinite ve florür konsantrasyonun elde ettikleri sentetik numunelerdir. E.K. deneyleri için kullandıkları diğer örnekleri ise pH 7,8 ile 7,95 aralığında yer altı suyuna istenilen florür konsantrasyona göre NaF ekleyerek getirmişlerdir. Elektrokoagülasyon sonunda açığa çıkan hidroksil iyonlarını toplam alüminyum konsantrasyonuna ve hidroksil florür aktivite katsayısına bağlı olarak;

$$\gamma_{OH+F} = ([OH^-]_0 - [OH^-]_{EK} - [H^+]_0 + [F^-]_0) / [Al^{3+}]_T \quad (3.28)$$

eşitliğini kullanarak hesaplamışlardır. OH⁻ iyonlarının Al(III) konsantrasyonuna olan mol oranı 3:1 olduğundan; E.K. sırasında açığa çıkan alüminyum miktarını;

$$[Al^{3+}]_{EK} = 1/3 * [OH^-] \quad (3.29)$$

eşitliği ile bulmuşlardır.

$[Al^{3+}]$ 'ün akım yoğunluğuna bağlı olduğunu;

$$I = (Z.F.V. [Al^{3+}]_{EK}) / (\epsilon_c.T) \quad (3.30)$$

denklemini ile belirtmişlerdir. Akım arttıkça diğer parametreler sabit kalırken alüminyum konsantrasyonun da arttığını söylemişlerdir. I akım yoğunluğunu, z alüminyum valans değerini (3), F Faraday sabitini, V reaktör hacmini, T süreyi, ϵ_c akım verimi temsil etmektedir. Yürüttükleri deneylerde ϵ_c 1,11'dir. E.K. prosesinde 90x60 mm boyutundaki elektrot arası mesafe 10 mm olan %99,9 saflıktaki alüminyum elektrotları kullanmışlardır. Örnek hacmini 300 mL temas süresini 10 dakika seçmişlerdir. Örnekleri 10 dakika sonunda 0,22 µm membran filtreden süzdükten sonra florür ölçümlerini yapmışlardır. Florür içeren sular başlangıç alkalinitesi yokken E.K. prosesine tabii tutulduğunda florür giderim yüzdesinin farklı $[Al^{3+}]$ konsantrasyonlarında γ_{OH} parametresine bağlı olduğunu bulmuşlardır.

1,5 mM Al(III) dozajında giderim veriminin % 90 civarında olduğunu bikarbonat alkalinitesi suya eklendiğinde en yüksek florür gideriminin;

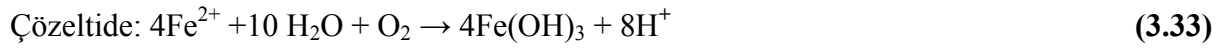
$$\gamma_{\text{Alkalinite}+\text{F}} = ([\text{HCO}_3^-]_0 - [\text{OH}^-]_{\text{EK}} - [\text{H}^+]_0 + [\text{F}^-]_0) / [\text{Al}^{3+}]_{\text{T}} \quad (3.31)$$

eşitliği 3'e eşit olduğu zaman sağlandığını belirtmişlerdir.

Mameri ve arkadaşları (1997) içme sularından florür giderimi yaptıkları deneysel bir çalışmada NaF çözeltisi kullanarak 1 ile 10 mg/L aralığında başlangıç florür konsantrasyonları içeren sentetik numuneler elde etmişlerdir. 10,2 A/m² akım yoğunluğunda 10 dakika sonunda florür konsantrasyonunda başlangıç miktarına bağlı olmaksızın bir düşüş gözlemlenmiştir. 40 dakika sonunda giderim veriminin % 70'den % 90'a çıktığını bulmuşlardır. 20°C 'de 10,2 A/m² akım yoğunluğunda başlangıç florür konsantrasyonu 5 mg/L iken çıkış konsantrasyonu 0.19 mg/L'ye düşmüş; ancak sıcaklık yükseldikçe florüalüminyum komplekslerinin yapısının bozulduğunu böylece florür gideriminin azaldığını görmüşlerdir. Florür gideriminde pH etkisini incelemek için; sentetik örnekleri farklı pH'lara HCl ve NaOH ile ayarlayarak getirmişlerdir. pH 5 ile 7,6 arasında florür arıtımının maksimum olduğunu bunun sebebinin de bu pH aralığında AlF₃, Al(OH)₃⁻ ve Al(OH)₂F₂⁻ komplekslerinin yüksek oranda oluşmasına bağlamışlardır. Optimum işletme koşullarını belirledikten sonra pH'ı 7,6 başlangıç florür konsantrasyonu 2,5 mg/L olan yüzeysel suda alüminyum elektrotları kullanarak yaptıkları deneylerde 20 °C'de uygulanan tüm akımlarda florürün azaldığını tespit etmişlerdir. Süre ve akım arttıkça florür giderim kinetiği birinci dereceden hız kinetiğine uygunluk göstermiştir.

200 A/m²'den büyük değerlerde sürenin akım yoğunluğundan bağımsız olduğunu ve buna bağlı olarak florokompleks oluşumunun yavaşladığını görmüşlerdir. Sudaki Ca²⁺, Cl⁻, SO₄²⁻ iyonlarının da E.K. prosesi ile azaldığını belirlemişlerdir. Teorik olarak Al/F kütle oranı 11,5-12 aralığındadır. Deneyler sonucunda A/V= 13,8 m²/m³ olduğunda alüminyumun çözüldüğünü ve oranın 16-17,5 çıktığını bulmuşlardır. Klorür iyonlarının alüminyum anodunu korozyona uğrattığı sonucuna varmışlardır.

Literatürde çoğunlukla elektrokoagülasyon yönteminde alüminyum elektrotları kullanılarak su ve atıksulardan florür giderimi üzerine yapılan çalışmalar yer almaktadır. Bunun yanı sıra yapılan bir araştırmada florür arıtımında demir elektrot kullanarak E.K. prosesi denenmiştir. Ün ve arkadaşları (2009) yaptıkları çalışmada demir elektrotta meydana gelen reaksiyonları aşağıdaki denklemlerle belirtmişlerdir.



Deneylerde NaF tuzu içeren sentetik numune ile çalışmışlardır. 0.5-3 mA/cm² akım yoğunluğunda, başlangıç pH'ı 5-9 aralığında ve yardımcı elektrolit olarak (Na₂SO₄) dozu 0,005-0,03M seçilerek yaptıkları deneylerde pH 6'da 3 mA/cm² akım yoğunluğunda en yüksek florür gideriminin olduğu sonucuna varmışlardır. Florür giderimini %85,7 olarak belirlemişlerdir.

4. DENEYSEL ÇALIŞMA

4.1 Deneysel Çalışmanın Planlanması

Literatürde çeşitli endüstriyel atıksulardan farklı elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon yöntemi ile florür arıtma uygulamalarına rastlanılmaktadır. Ancak içme sularından elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderme konusunda yeterli bilgi birikimi söz konusu değildir. Bölüm 3'te verilen literatür değerlendirmesi ışığında da literatürde yer alan çoğu çalışmanın distile suya çeşitli florür tuzlarının ilavesi ile sentetik olarak hazırlanan numuneler üzerinde yürütüldüğü söylenebilmektedir.

Sentetik olarak hazırlanmış bu numuneler bir su örneğinde rastlanabilecek diğer anyon ve katyonları bünyesinde bulundurmadiğı için temsil edici örnekler olarak ele alınamamaktadır. Bu tip numuneler kullanılarak yürütülen çalışmalar ilgilenilen prosesin uygulanabilirliği hakkında kabaca fikir verebilmekte ancak gerçek koşulları yeterince iyi yansıtamayabilmektedir. Bir içme suyu kaynağından alınan numune ele alındığında incelenen örneğin bünyesinde sadece florür iyonu değil aynı zamanda alkalinite bileşenleri olan inorganik karbon türlerinin, sülfatın, klorürün ve benzeri diğer katyon ve anyonların bulunması söz konusudur. Yapılan literatür araştırması bir su numunesi bünyesinde bulundurabilecek bu tür anyon ve katyonların elektrokoagülasyon ile florür giderme prosesinde giderme verimi üzerine etkilerinin yeterli düzeyde araştırılmadığına ve bu konudaki bilgi birikimi eksiklerini ortaya koymuştur. Bu noktadan hareketle florür dışında içme sularının bünyesinde bulunabilecek diğer iyonların elektrokoagülasyonla florür giderim verimi üzerine etkilerini araştırılma ihtiyacını gündeme getirmektedir.

Yapılan literatür değerlendirmesinde Bölüm 3'te sözü edildiğı üzere alüminyum elektrotlar ile yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarının florür gideriminde oldukça başarılı olduğu tespit edilmiştir. Bu noktadan hareketle bu çalışmanın da gerçekleştirilen alüminyum elektrotların kullanılmasına karar verilmiştir.

Su örneklerinde florür dışında bulunabilecek diğer iyonların etkilerini belirlemek amacı ile deneysel çalışmada kullanılan gerçek numunelerde bulunan iyonların münferit ve birlikte etkilerini belirlemek amacı ile distile su içerisine ilgili iyonu içeren tuz ilaveleri ile numuneler hazırlanmıştır. Sentetik olarak hazırlanan bu numunelerde konsantrasyon seçimi gerçek numunelerdeki iyon miktarları dikkate alınarak yapılmıştır.

Deneysel çalışma, gerek sentetik olarak hazırlanmış numuneler gerekse gerçek örnekler üzerinde iki aşamada yürütülmüştür. Deneysel çalışmanın ilk aşamasında E.K. uygulamalarında proses verimi üzerinde önemli rol oynayan işletme koşullarının etkilerinin belirlenmesi hedeflenmiştir. Bu işletme koşulları;

- elektrolit (NaCl) konsantrasyonu
- başlangıç florür konsantrasyonu (F_o)
- akım yoğunluğu (J)
- başlangıç pH'sı (pH_o)

olarak sıralanabilmektedir.

Deneysel çalışmanın ikinci aşamasında suda florür dışında bulunan sülfat, karbonat, kalsiyum gibi diğer yabancı iyonların elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderimi üzerine etkilerinin belirlenmesi amaçlanmıştır.

Bölüm 3'te de belirtildiği üzere Türkiye'deki su kaynaklarında florür konsantrasyonun 2 ila 6 mg/L arasında değişim gösterebildiği rapor edilmiştir. Bununla birlikte sözü edilen bölgelerden florür içeren su numunesi sağlanamamıştır. Bu nedenle florür içeren su örneklerini temsil etmek üzere musluk suyuna bilinen miktarlarda florür ilaveleri yapılmıştır.

Bu şekilde hazırlanan numuneler hem diğer iyonlarının etkilerinin araştırılmasına imkan tanımış hem de florür dışındaki iyonların kompozisyonunda değişim söz konusu olmayacağı için karşılaştırma yapılma olanağı sağlamıştır. Söz konusu numunelere Türkiye'de rastlanan konsantrasyonları temsil etmek üzere; florür ilaveleri 2, 3, 4 mg/L olacak şekilde yapılmıştır.

4.2 Deneysel Çalışma Düzeni

4.2.1 Deneylerde kullanılan materyal ve metod

4.2.1.1 Numune özellikleri

Deneysel çalışmada, Alibeyköy İçme Suyu Havzasından şebekelere dağıtım sonrası musluktan akan su örnekleri kullanılmıştır.

Çizelge 4.1’ de bu su örnekleri üzerinde yürütülen karakterizasyon çalışma sonuçları verilmiştir.

Çizelge 4.1 : Musluk suyu karakterizasyonu.

Parametre	Birim	Numune 1	Numune 2	Numune 3
Toplam çözünmüş madde	mg/ L	250	255	250
İletkenlik	$\mu\text{s}/\text{cm}^2$	519	518	520
Bulanıklık	NTU	0,45	0,45	0,45
Sülfat	mg/ L	50	60	67
Toplam Alkalinite	mg CaCO_3 / L	8	77	77
Klorür	mg/ L	35	36	38
Toplam Sertlik	mg CaCO_3 / L	180	180	160
Kalsiyum	mg/ L	36	35	40
Magnezyum	mg/ L	21	20	22
pH	-	7,5	7,4	7,6

4.2.1.2 Materyal ve metod

Elektrokoagülasyon deneylerinde Şekil 4.1’de gösterilen 10 L’lik bir elektrokoagülatör kullanılmıştır. Elektrokoagülasyon uygulamalarında 4 tanesi anot ve 4 tanesi ise katot olarak çalışan monopolar olarak bağlı silindirik alüminyum elektrot kullanılmıştır.

Her bir elektrotun yüzey alanı $33,59 \text{ cm}^2$ ’dir. Elektrotlar arası açıklık 3 mm olarak seçilmiştir. Güç kaynağı olarak maksimum 60 volt ve 20 A akımda çalışan XFR 60-20 1200 Watt serisi kullanılmıştır.

Alüminyum elektrotların elektrokoagülatöre monte edilmesi sırasında su geçirgenliğini önlemek amacıyla sıvı conta kullanılmıştır. Elektrokoagülasyon deneyi sırasında iletkenliği sağlamak amacı ile içme suyu örneklerine kimyasal madde ilave edilmezken; sentetik numuneler üzerinde yürütülen uygulamalarda elektrolit olarak NaCl kullanılmıştır. İstenilen başlangıç florür konsantrasyonun sağlanması için NaF içme suyu ve sentetik olarak hazırlanmış numunelere ilave edilmiştir.

Sentetik olarak hazırlanan numunelerde CO₂ sıyırma işlemine tabi tutulmuş distile su kullanılmıştır. CO₂ sıyırma işlemi taze üretilmiş distile suyun kaynatılmasıyla gerçekleştirilmiştir. Kaynatma işlemine tabi tutulan distile su hemen ağzı sıkıca kapalı şişelere aktarılmış ve soğumaya bırakılmıştır. Soğuma adımını takiben bekletilmeden numune hazırlanmasında kullanılmıştır. Bu distile sulara kalsiyum ve karbonat/bikarbonat iyonlarının proses verimi üzerine etkisinin belirlenmesi amacı ile Ca(NO₃).4H₂O ve NaHCO₃ kimyasalları ilaveleri yapılarak numuneler hazırlanmıştır.

Tüm numunelerde başlangıç pH'ının istenilen değere getirilmesi için NaOH ve HNO₃ çözeltileri kullanılmıştır. E.K. sırasında zamana bağlı olarak alınan örneklerle TISAB II ilave edilerek florür ölçümleri Orion 720A+ marka iyon seçici elektrot ile yapılmıştır. Deneylerde Orion Plus marka hazır TISAB II çözeltisi kullanılmıştır. pH ölçümleri 0,001 duyarlıklı Orion 720A+ marka pH metre ile yapılmıştır. E.K. uygulamaları sonunda ulaşılan pH değerlerinin yüksek olması durumunda çıkış numunelerinin nötralizasyonu HCl asit kullanılarak yapılmıştır.

Alüminyum ölçümleri için Jena marka Contra AA 700 C10 NTR AA 700 model atomik absorpsiyon spektrofotometrisi kullanılmış, okumalar flame modunda 306 nm'de gerçekleştirilmiştir.

Belirli zamanlarda alınan numuneler florür, kalsiyum, klorür ve alüminyum ölçümleri için 0,45 µm'lik Sartorius AG marka selüloz asetat filtre kağıtları kullanılarak filtre edilmiştir.

Elektrokoagülasyon prosesi sonunda oluşan çamur miktarı AKM tayini yapılarak belirlenmiştir. Askıda katı madde tayini için AP40 Millipore marka cam elyafı kullanılmıştır. Tüm ölçümler Standart Metotlara (APHA, 2005) uygun olarak yapılmıştır.

Cam yüzey aşındırma işlemlerinde HF kullanılmasından dolayı; pH'a bağlı olarak uzun süre cam kaplar içinde saklanan numunelere florür geçişi olabilmektedir. Bu girişimin önlenmesi için florür içeren örneklerin plastik şişelerde saklanması gerekmektedir. Elektrokoagülasyon deneyleri sırasında zamana bağlı olarak alınan numuneler polipropilen kaplarda saklanmıştır.

Deneylerde kullanılan tüm kimyasal maddeler analitik saflıktadır.



Şekil 4.1 : Deneysel çalışmada kullanılan elektrokoagülatör ve güç kaynağı.

4.2.2 Deneylerin yürütülüşü

Elektrokoagülasyon denemelerinde 3 L lik örneklere tanımlı miktarda florür ilaveleri yapıldıktan sonra numunelerin gerekli olduğu hallerde pH ayarlanmıştır. Elektrokoagülatöre aktarılan numuneden 50 mL lik başlangıç ($t=0$) alınmış ve güç kaynağı üzerinde istenen akım ayarlaması (0,1-0,6 A) yapıldıktan elektrokoagülasyon. uygulaması başlatılmıştır. E.K. uygulamaları esnasında reaktör bir manyetik karıştırıcı vasıtasıyla homojenliği sağlanmak amacıyla 250 rpm karıştırma hızında karıştırılmıştır.

Reaksiyon süresi boyunca belirlenen aralıklar boyunca voltaj okumaları yapılmış ve 75 mL hacminde numuneler alınmıştır. Alınan bu numuneler pH okumalarını takiben 0,45 µm'lik Millipore selüloz asetat filtre'den süzülüp florür, kalsiyum, alüminyum ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Aksi belirtilmediği takdirde E.K. uygulamaları 180 dakika yürütülmüştür. E.K. uygulamasının sonunda reaktör tamamen boşaltılmış üretilen çamuru da içeren çıkış numunelerinde çamur miktarını belirlemek amacıyla AKM deneyleri yürütülmüştür. Elektrokoagülatörün temizliği için yıkama asidi ve bol distile su kullanılmıştır.

4.2.3 Deneyel sonuçlarla ilgili gerekli hesaplamalar

Elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderimin elektrik enerjisi sarfıyatı SEC hesaplanarak belirlenmiştir. 4.1 eşitliği 1 g florürün giderilmesi için gereken enerji sarfıyatını göstermektedir.

$$SEC = \frac{U \times I \times t}{(F_o - F_t) \times V} \quad (4.1)$$

SEC: Enerji tüketimi (kw saat/ g F_{giderilen})

U: Uygulanan voltaj (V)

I: Akım şiddeti (A)

t: Zaman (saat)

F_o: Başlangıç Florür konsantrasyonu (mg/L)

F_t: Arıttımdan sonraki Florür konsantrasyonu (mg/L)

V: Hacim (L)

Tüm deney sonuçlarından elde edilen giderim değerleri görünür birinci dereceden reaksiyon kinetiğine uymaktadır.

$$-\frac{dC}{dt} = k \times C \quad (4.2)$$

k: Görünür 1. Dereceden Reaksiyon Hız Sabiti (dk⁻¹)

C: Florür Konsantrasyonu (mg/L)

t: Reaksiyon Süresi (dk)

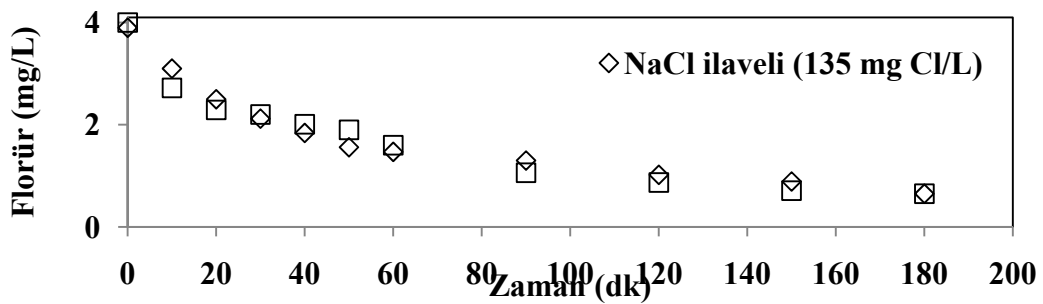
4.3 Deneysel Çalışma Sonuçları

Deneysel çalışmanın ilk aşamasında alüminyum elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulamalarında elektrolit konsantrasyonu, başlangıç florür konsantrasyonu, akım yoğunluğu ve başlangıç pH'sı olmak üzere önemli rol oynayan işletme parametrelerinin proses verimi üzerine etkilerinin belirlenmesi hedeflenmiştir. Bu amaç doğrultusunda planlanan deneysel çalışmadan elde edilen sonuçlar aşağıda verilmiştir.

4.3.1 Elektrolit konsantrasyonunun etkisi

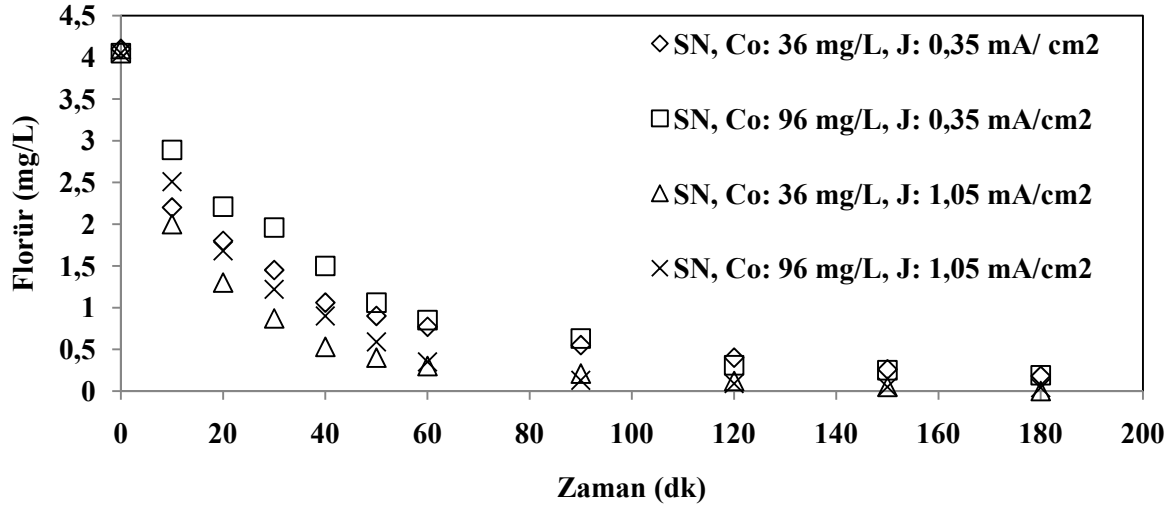
Alüminyum elektrotlar kullanılarak gerçekleştirilen elektrokoagülasyon uygulamalarında önemli bir işletme parametresi olan elektrolit konsantrasyonunun proses verimi üzerine etkisini belirlemek amacı ile florür ilaveleri içme suyu örnekleri (FİS) ve sentetik olarak hazırlanmış numuneler (SN) üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında bir seri deney yürütülmüştür. $0,35 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda orijinal klorür konsantrasyonunda (35 mg Cl/L) ve 135 mg Cl/L 'ye eşdeğer NaCl ilaveli içme suyu örnekleri (4 mg F/L) üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulaması deney sonuçları sırasıyla EK A.1 ve EK A.2'de topluca verilmiştir. $0,35$ ve $1,05 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluklarında 4 mg/L florür ve 37 mg/L kalsiyum içecek şekilde hazırlanan SN numuneleri üzerinde 34 ve 96 mg Cl/L eşdeğer NaCl konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarından elde edilen sonuçlar EK A.3- EK A.6'da verilmiştir.

Florür katkılı içme suyu örnekleri üzerinde numunenin orijinal ve 135 mg/L klorür konsantrasyonlarında yürütülen elektrkoagülasyon uygulamalarında zamana bağlı ölçülen florür konsantrasyonları Şekil 4.2 'de verilmiştir.



Şekil 4.2 : Farklı klorür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (F_0 : 4 mg/L E.K. koşulları pH_0 : 7,5 J: $0,35 \text{ mA/cm}^2$).

36 ve 96 mg Cl/L elektrolit konsantrasyonunda 0,35 ve 1,05 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen SN denemelerinde zamana bağlı olarak ölçülen florür konsantrasyonları Şekil 4.3’ de görülmektedir.



Şekil 4.3 : Farklı klorür konsantrasyonlarında sentetik numunelerde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (F_0 : 4 mg/L, Ca_0 : 36 mg/L, pH_0 : 7).

Şekil 4.2 ve Şekil 4.3 birlikte değerlendirildiğinde elektrolit konsantrasyonundaki artışın çalışılan reaksiyon koşullarında elektrokoagülasyon prosesi ile florür giderimi üzerinde önemli bir rol oynamadığı sonucuna varılabilmektedir.

180 dakikalık elektrokoagülasyon uygulamaları sonucunda ulaşılan florür konsantrasyonları bu görüşü desteklemektedir. Örneğin gerek orijinal gerekse klorür ilaveleri ile içme suyu örnekleri üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinden her ikisinin de 180 dakika reaksiyon süresi sonucu florür konsantrasyonu 0,65 mg/L’ ye düşmüştür. Bununla birlikte ilk 30 dakikalık reaksiyon süresinde ölçülen florür konsantrasyonları karşılaştırıldığında (EK A.1-EK A.2’de) içme suyu örneğinin orijinal klorür konsantrasyonunda yürütülen elektrokoagülasyon denemesinde daha yüksek klorür konsantrasyonu ile yürütülene göre daha düşük florür konsantrasyonları ölçülmüştür.

Buna karşılık 30 ile 150 dakikalık reaksiyon süresinde ise yüksek elektrolit konsantrasyonunda yürütülen deneylerde daha yüksek florür giderim verimleri elde edilmiştir. Reaksiyonun sürdürüldüğü zaman dilimlerindeki farklılıklar 180 dakika sonunda ortadan kalktığı ölçülen florür konsantrasyonları ile doğrulanmıştır.

Elektrokoagülasyon uygulamasındaki elektrolit konsantrasyonuna bağlı olarak ölçülen florür konsantrasyonları kullanılarak reaksiyonun ilk 60 dakikasında elde edilen verilerin kinetik açıdan analizi yapıldığında görünür birinci derece reaksiyon kinetiğine uyum sağladığı tespit edilmiştir. Bu veri analizinden elde edilen sonuçlar Çizelge 4. 2’de topluca verilmiştir.

Bu çizelge aynı zamanda 180 dakikalık reaksiyon sonucunda çözeltide ulaşılan pH değerlerini (pH_{son}) ve oluşan çamur miktarlarını da kapsamaktadır.

Çizelge 4.2 : Farklı elektrolit konsantrasyonlarında yürütülen E.K. denemeleri (F_0 : 4 mg/L).

Numune	Akım yoğunluğu (mA/cm ²)	Klorür		pH_{son}^{**}	$\ln (C/Co)^*$	R^2
		(mg/L)	Oluşan çamur (mgAKM/L)			
İçme suyu	0,35	35	240	8,32	$= -0,0101 \times t - 0,397$	0,98
İçme suyu	0,35	135	243	8,65	$= -0,0101 \times t - 0,296$	0,98
SN	0,35	36	290	8,83	$= -0,0218 \times t - 0,409$	0,98
SN	0,35	96	300	8,86	$= -0,0245 \times t - 0,068$	0,98
SN	1,05	36	460	9,2	$= -0,0382 \times t - 0,076$	0,99
SN	1,05	96	650	9,19	$= -0,0386 \times t - 0,382$	0,99

*60 dakikalık zaman dilimi ** 180 dk E.K. sonunda

Çizelge 4.2’den görüldüğü üzere 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda florür ilaveleri içme suyu numuneleri üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon denemeleri için hesaplanan hız sabitlerinin birbirine ($k= 0,0101$) eşittir. Bu noktadan hareketle elektrolit konsantrasyonunda 100 mg Cl/L’lik bir artışın florür giderme hızı üzerinde bir etkisinin olmadığı sonucuna varılabilmektedir. Benzer sonuçlar tüm akım yoğunlukları için sentetik olarak hazırlanmış numuneler üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde de elde edilmiştir. Yapılan bu kinetik değerlendirme ışığında aynı akım yoğunluklarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde elektrolit konsantrasyonundaki artışın proses verimi üzerinde rol oynamadığı sonucuna varılmaktadır.

Bu noktadan hareketle deneysel çalışmanın daha sonraki aşamalarında elektrokoagülasyon uygulamalarının elektrolit ilavesi yapılmadan yürütülmesine karar verilmiştir. Zira elektrolit ilavesi yapılmamasının birkaç açıdan da avantajlı bir uygulama olarak görülmektedir.

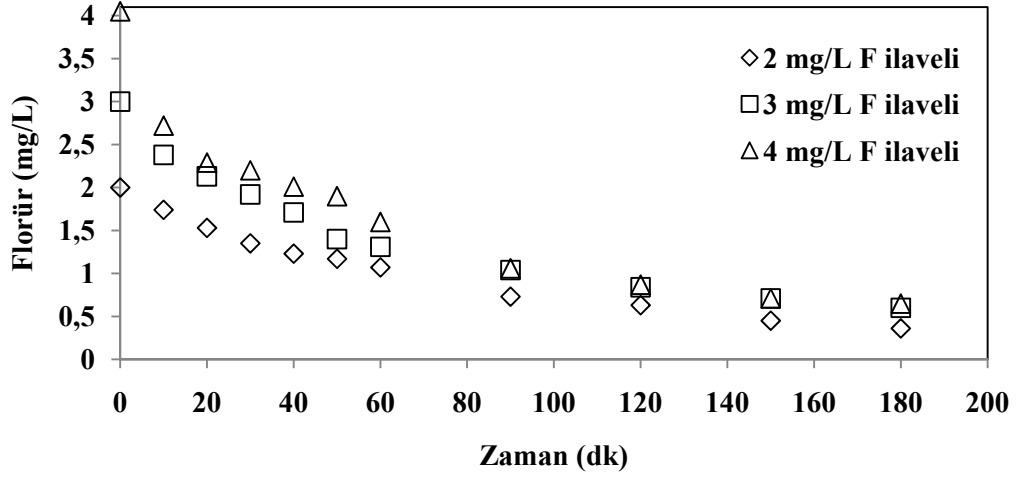
Bu avantajlar dışarıdan bir kimyasal madde ilavesi olmayacağı için bu avantajlardan en önemlileri (i) içme suyunun çözünmüş madde muhtevasında bir artış olmaması (ii) gerek klorür gerekse sodyum konsantrasyonun standartlara göre belirlenen değerlerin altında kalması (iii) işletme maliyetinin artmaması şeklinde sıralanabilmektedir. Bir diğer avantaj ise çamur miktarında artış olmaması ve çamur uzaklaştırma maliyetinin düşük olmasıdır. Bu avantaj özellikle yüksek akım yoğunluklarında yürütülen elektrokoagülasyon uygulamaları için daha da önem taşımaktadır.

0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda bu avantaj tam olarak görülmemekle birlikte 1,05 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde belirgin olarak gözlenmektedir. Örneğin elektrolit konsantrasyonun 36 mg Cl/L'den 96 mg Cl/L'ye artırılmasında 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda pratik olarak birbirine eşit çamur (250-300 mg AKM/L) oluşumu gözlenirken, akım yoğunluğunu 1,05 mA/cm²'ye artırılması durumunda elektrolit konsantrasyonundaki 60 mg/L'lik artışın çamur miktarını 460 mg AKM/L 650 mg AKM/L'ye arttırdığı Çizelge 4.2' den de görülmektedir. 1,05 mA/cm² akım yoğunluğunda elektrokoagülasyon uygulamaları sonunda ulaşılan pH değerlerinin pratik olarak birbirine eşit olduğu (9,19 - 9,2) dikkate alındığında çamur miktarındaki bu 1,5 katlık artışın elektrolit konsantrasyonundaki artıştan ileri geldiği sonucuna varılmaktadır

4.3.2 Başlangıç florür konsantrasyonunun etkisi

Alüminyum elektrotlarla yürütülen elektrokoagülasyon uygulamasında başlangıç florür konsantrasyonunun proses verimi üzerine etkisini belirlemek amacı ile numunenin orijinal pH'sında (pHo: 7,5) ve elektrolit ilavesi yapılmadan 0,35 – 2,10 mA/cm² akım yoğunluğunda gerçekleştirilen deneysel çalışma sonuçları 2, 3, 4 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu için sırasıyla EK B, EK C ve EK D' de kapsamlı olarak verilmiştir.

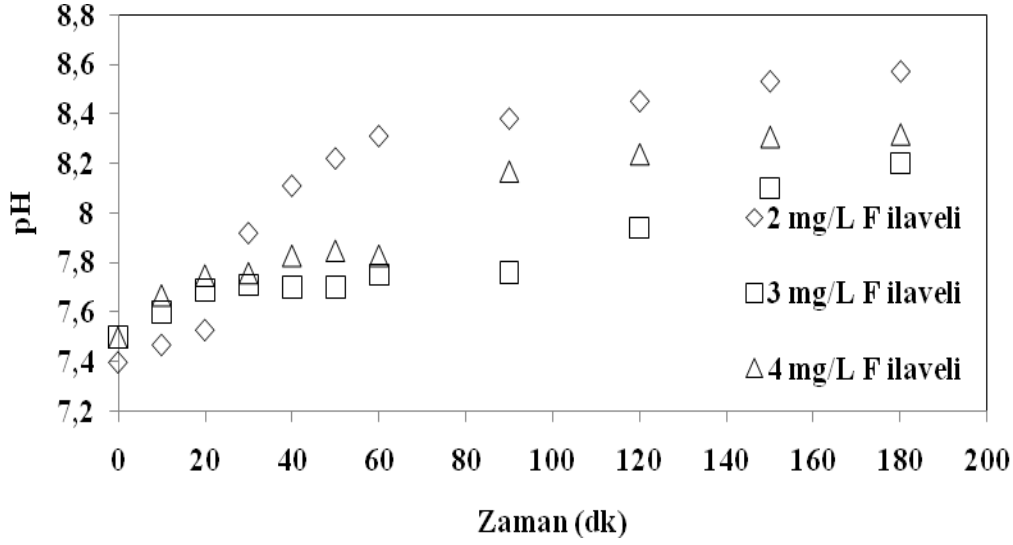
0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda orijinal pH değerlerinde farklı başlangıç florür konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı olarak ölçülen florür konsantrasyonları Şekil 4.4' de verilmiştir.



Şekil 4.4 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 J: 0,35 mA/cm²).

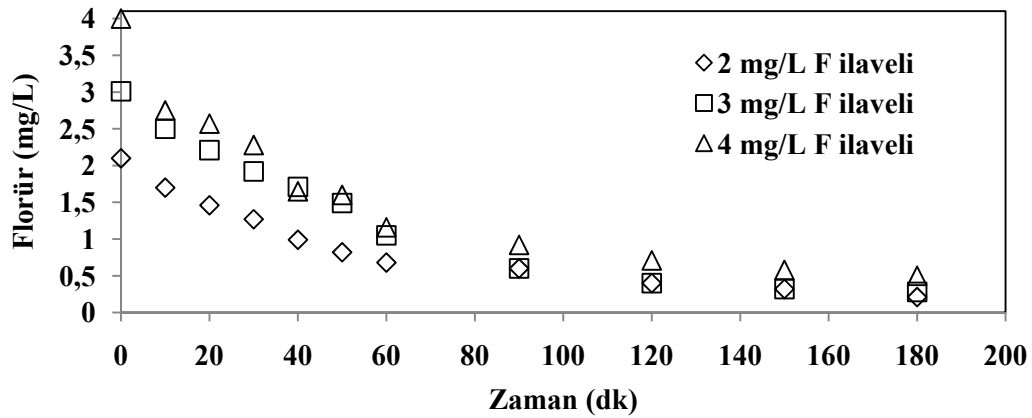
Şekil 4.4 incelendiğinde ilk 60 dakikalık zaman diliminde artan reaksiyon sürelerinde florür konsantrasyonlarında azalmalar meydana gelmiştir. Bunu takip eden reaksiyon sürelerinde başlangıç florür konsantrasyonundan bağımsız olarak birbirine yakın florür konsantrasyonları ölçülmüştür. Elektrokoagülasyon uygulamasının ilk 60 dakikalık reaksiyon süresi için görünür birinci dereceden reaksiyon kinetiği kullanılarak gerçekleştirilen veri analizinde (Çizelge 4.3) 0,35 mA/cm² akım yoğunluğu için florür konsantrasyonundan birbirine çok yakın reaksiyon sabitleri elde edilmiştir. Bu uygulamalarda oluşan çamur miktarları ve çıkış suyu pH'ları pratik olarak birbirine çok yakın çıkmıştır. Bu sonuçlar da dikkate alındığında 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde başlangıç florür konsantrasyonundaki artışın florür giderim hızı üzerinde önemli bir rol oynamadığı söylenebilmektedir.

Buna karşılık bu denemelerin aynı işletme koşullarında yürütüldüğü tek farkın başlangıç florür konsantrasyonlarındaki değişiklikler dikkate alındığında zamana bağlı olarak ölçülen pH değişimlerindeki (Şekil 4.5) farklar izah edilememektedir.



Şekil 4.5 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 J: 0,35 mA/cm²).

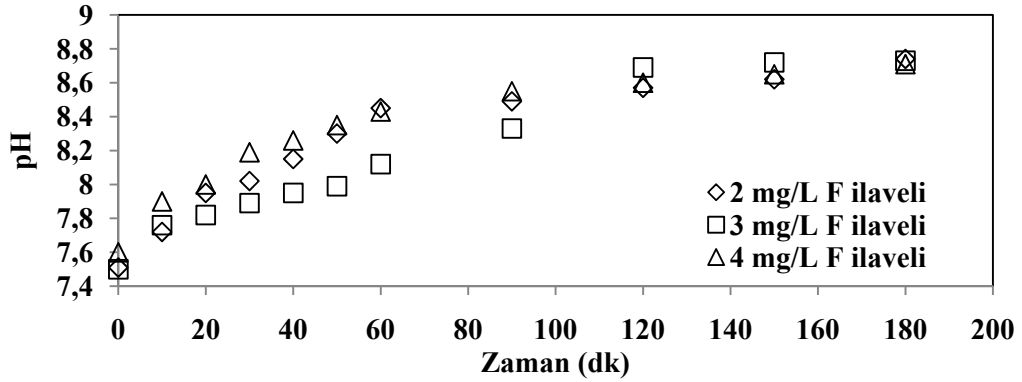
0,70 mA/cm² akım yoğunluğunda numunenin orijinal pH'ı ve elektrolit konsantrasyonunda farklı pH başlangıç florür konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı ölçülen florür konsantrasyonları Şekil 4.6'da verilmiştir.



Şekil 4.6 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 J: 0,70 mA/cm²).

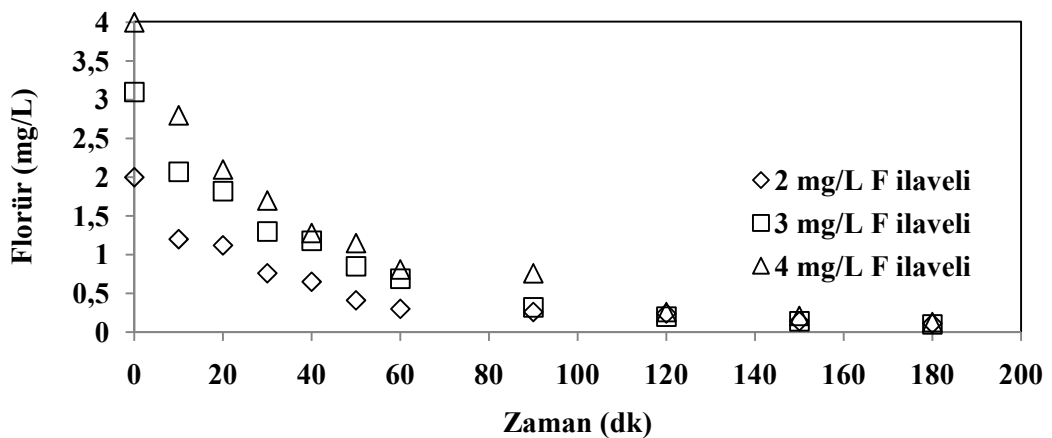
Şekil 4.6'dan da görüldüğü üzere elektrokoagülasyon uygulamasının ilk 60 dakikasında zamana bağlı olarak ölçülen florür konsantrasyonlarında belirgin düşüşler meydana gelmiştir. Bunu takip eden reaksiyon süresinde belirgin bir yavaşlama gözlenmektedir. İlk 60 dakikalık süresi için ölçülen florür konsantrasyonları dikkate alındığında kinetik açıdan değerlendirme yapıldığında;

(bkz Çizelge 4.3) florür giderim hızlarının pratik olarak birbirine yakın olduğunu göstermiştir. Farklı başlangıç florür konsantrasyonlarında $0,70 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı olarak ölçülen pH değerleri Şekil 4.7’de verilmiştir.



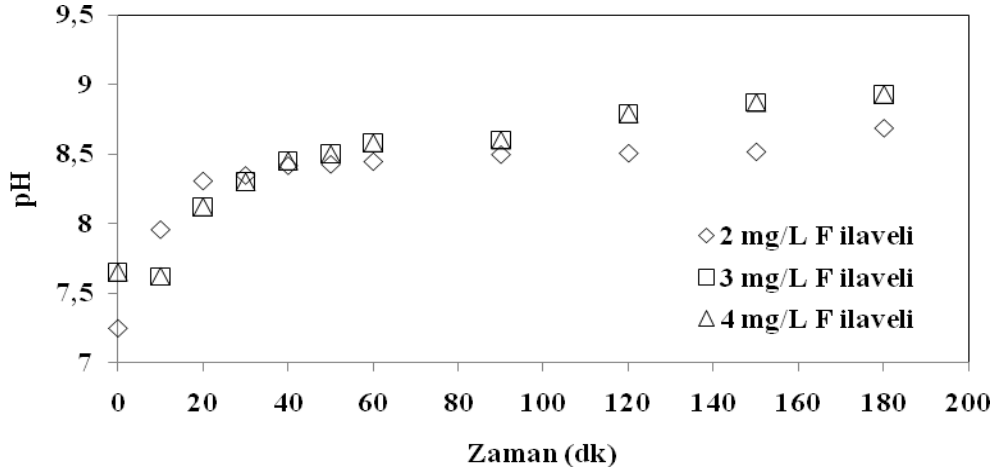
Şekil 4.7 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (E.K. koşulları pH_0 : 7,5 J: $0,70 \text{ mA/cm}^2$).

Şekil 4.7’den de görüldüğü üzere hidrojen gazı oluşumu nedeni ile pH’da zamana bağlı olarak artış meydana gelmiştir. 120 dakikalık reaksiyon süresi başlangıç florür konsantrasyonundan bağımsız olarak aynı pH değerlere ulaşılmıştır. Başlangıç florür konsantrasyonu elektrokoagülasyon uygulamasında proses verimi üzerinde etkisini belirlemek üzere $1,05 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda içme suyunun orijinal pH’sında ve elektrolit konsantrasyonunda yürütülen denemelerde zamana bağlı olarak ölçülen florür konsantrasyonları Şekil 4.8’de verilmiştir.



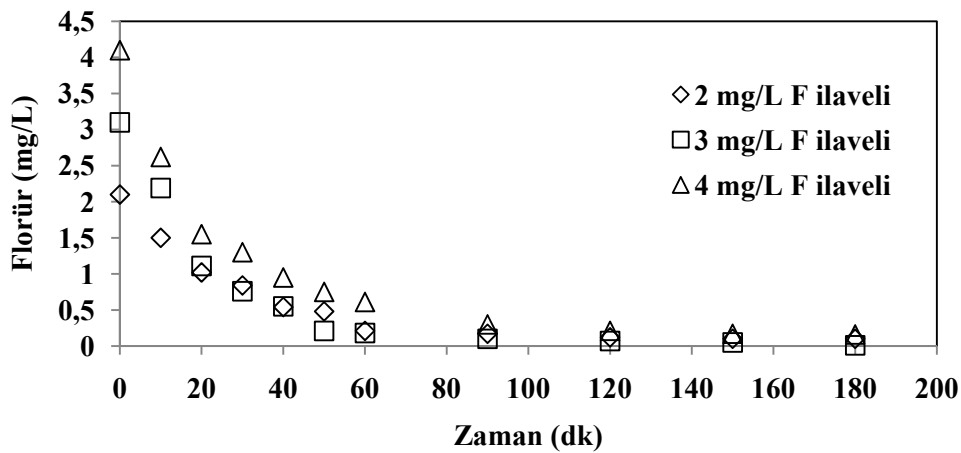
Şekil 4.8 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (E.K. koşulları pH_0 : 7,5 J: $1,05 \text{ mA/cm}^2$).

Şekil 4.8’den de görüleceği üzere $1,05 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde $0,70 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda yürütülen deneylerle benzer sonuçlar elde edilmiştir. Ancak bu denemelerde Şekil 4.9’dan da görüleceği gibi başlangıç florür konsantrasyonundan bağımsız olarak ölçülen pH değerleri birbirine çok yakın bulunmuştur.



Şekil 4.9 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (E.K. koşulları pH_0 : 7,5 J: $1,05 \text{ mA/cm}^2$).

$1,40 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda içme suyunun orijinal pH’sında ve elektrolit konsantrasyonunda farklı başlangıç florür konsantrasyonları için yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinde zamana bağlı ölçülen florür konsantrasyonları Şekil 4.10’da verilmiştir.



Şekil 4.10 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (E.K. koşulları pH_0 : 7,5 J: $1,40 \text{ mA/cm}^2$).

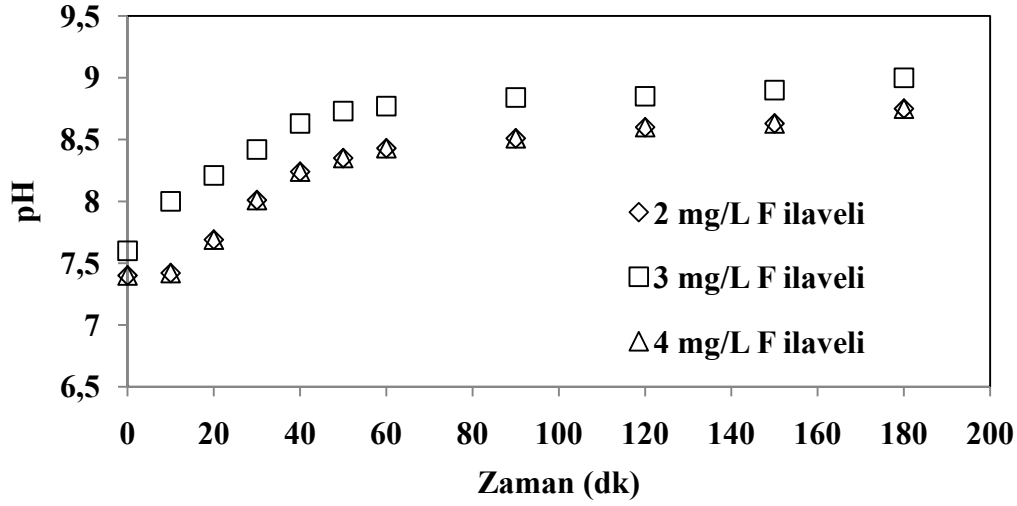
Bu denemelerde çalışılan diğer akım yoğunluklarında elde edilenlere benzer florür giderimleri vardır. 1,40 mA/cm² akım yoğunluğunda farklı başlangıç florür konsantrasyonunda yürütülen ilk 60 dakikalık zaman diliminde (Çizelge 4.3) kinetik değerlendirmede 2 ve 3 mg/L başlangıç florür konsantrasyonları için yürütülen denemelerde, florür giderim hızlarının birbirine çok yakın olduğunu buna karşılık 4 mg/L başlangıç florür konsantrasyonu ile yürütülen denemede giderim hızının yavaşladığını göstermiştir.

Çizelge 4.3 : Farklı başlangıç florür konsantrasyonları içeren içme sularında yürütülen E.K. denemeleri.

J (mA/cm ²)	Florür (mg/L)	Oluşan çamur (mg AKM/L)	pH _{son}	ln (C/Co)	R ²
0,35	2	205	8,77	= -0,0095 × t - 0,0751	0,98
0,35	3	200	8,22	= -0,011 × t - 0,1271	0,99
0,35	4	240	8,32	= -0,0101 × t + 0,2967	0,98
0,70	2	380	8,74	= -0,0187 × t + 0,0065	0,98
0,70	3	340	8,73	= -0,0129 × t - 0,0511	0,98
0,70	4	402	8,71	= - 0,0181 × t - 0,1463	0,99
1,05	2	558	8,69	= - 0,0293 × t - 0,111	0,99
1,05	3	550	8,92	= -0,0225 × t - 0,1406	0,97
1,05	4	570	8,93	= -0,0237 × t - 0,1441	0,99
1,40	2	773	8,75	= - 0,0308 × t + 0,1148	0,99
1,40	3	800	8,93	= -0,0478 × t + 0,585	0,97
1,40	4	831	8,75	= -0,0237 × t + 0,006	0,98
2,10	2	860	9,30	= -0,0564 × t - 0,889	0,98

*60 dakikalık zaman dilimi ** 180 dk E.K. sonunda

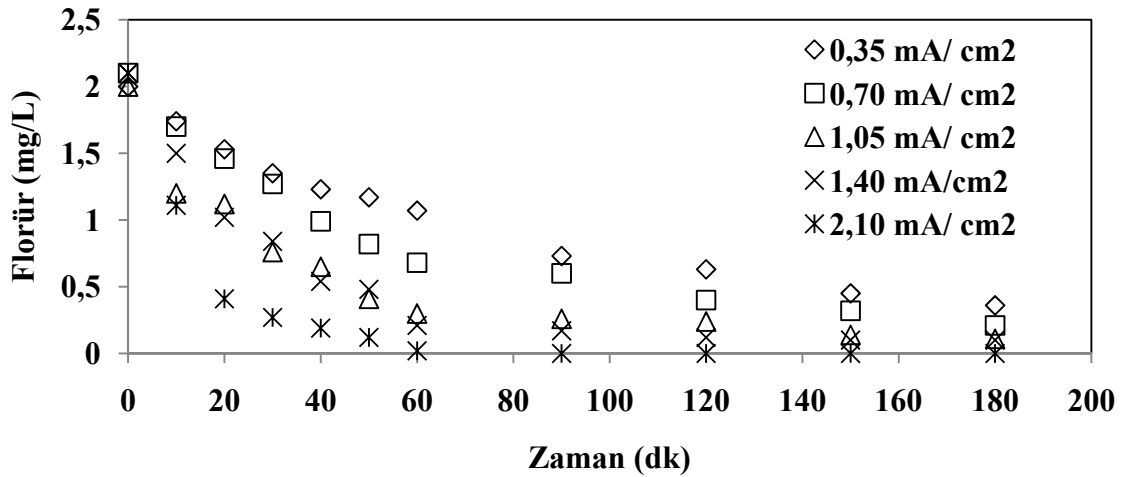
Şekil 4.11’de 2, 3, 4 mg/L florür başlangıç konsantrasyonlarında 1,40 mA/cm²’de akım yoğunluğunda zamana bağlı pH değişimleri verilmiştir. Tüm konsantrasyonlarda pH bir birine benzer oranda artış göstermiştir.



Şekil 4.11 : Farklı florür konsantrasyonlarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 J: 1,40 mA/cm²).

4.3.3 Akım yoğunluğun etkisi

Akım yoğunluğunun elektrokoagülasyon uygulamasında proses verimi üzerine etkisini belirlemek üzere 0,35 ile 2,10 mA /cm² değişen akım yoğunluklarında 2 mg/L florür ilaveli, orijinal pH'da ve elektrolit ilavesi yapılmayan içme suyu numunesi üzerinde yürütülen deneysel çalışma sonuçları kapsamlı olarak EK B' de verilmiştir. Şekil 4.12'de bu denemelerde zamana bağlı olarak ölçülen florür konsantrasyonları görülmektedir.

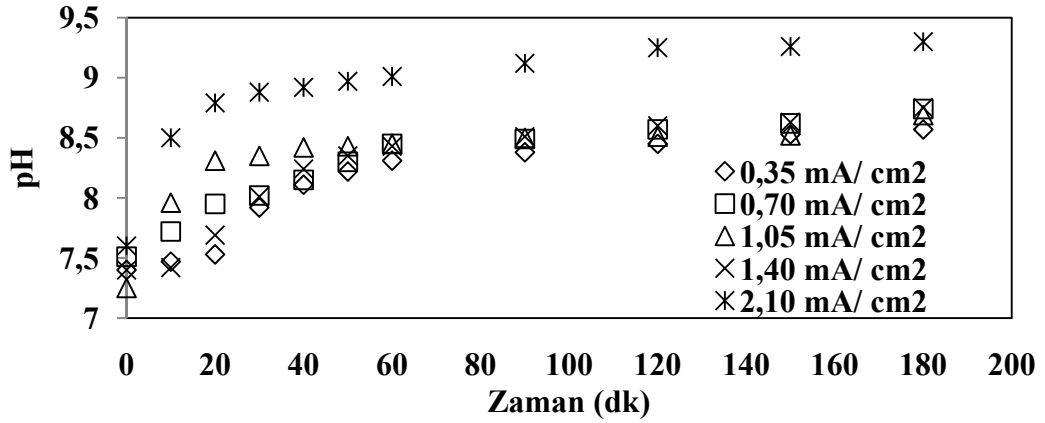


Şekil 4.12 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 F₀: 2 mg/L).

Şekil 4.12 incelendiğinde denemelerin yürütüldüğü tüm akım yoğunluklarında reaksiyonun ilk 60 dakikalık zaman diliminde florür gideriminde hızlı bir artış olduğu; ilerleyen reaksiyon sürelerinde artan süre ile florür gideriminde belirgin bir iyileşmenin söz konusu olmadığı söylenebilmektedir. 60 dakikalık zaman dilimi içine düşen sabit bir reaksiyon süresinde artan akım yoğunluklarında daha yüksek florür giderme verimleri elde edildiği şekil 4.12 ‘den de görülmektedir.

Elektrokoagülasyon uygulamasının sonunda ulaşılan florür konsantrasyonları incelendiğinde $1,40 \text{ mA/cm}^2$ ye kadar artan akım yoğunluklarında 180 dakika reaksiyon süresi sonunda florürün tamamının giderilemediği söylenebilmektedir. Buna karşın akım yoğunluğu $2,10 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluğuna çıkarıldığında 1 saatlik reaksiyon esnasında florürün tamamının gidermek mümkün olabilmektedir. Bununla birlikte içme suyu standardı $1,5 \text{ mg/L}$ olan florür konsantrasyonuna inebilmek için $0,35$ ve $0,70 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluklarında 20 dakikalık, $1,05 \text{ mA/cm}^2$ ve daha üzerindeki akım yoğunluklarında ise 10 dakikalık bir reaksiyon süresi yeterli olabilmektedir.

Bu husus özellikle oluşacak çamur miktarını minimize etmek ve enerji sarfiyatının bu deneysel çalışma esnasında yürütülen elektrokagülasyon uygulamaları sırasında zamana bağlı olarak ölçülen pH değerleri Şekil 4.13’te verilmektedir.



Şekil 4.13 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 F₀: 2 mg/L).

Şekil 4.13’ten de görüldüğü üzere sabit bir akım yoğunluğunda zamana bağlı olarak pH’ da artışlar meydana gelmiştir. Artan akım yoğunluklarında pH’daki bu artış reaksiyonun ilk 60 dakikasında daha belirgin olarak gözlenmektedir.

Bu çalışmada denen ilk en yüksek akım yoğunluğu olan 2,10 mA/cm² dışındaki diğer akım yoğunluklarında 80 dakikadan itibaren elektrokagülasyon uygulamasının sonuna kadar pratik olarak birbirine çok yakın pH değerleri ölçülmüştür. Örneğin 150 dakikalık reaksiyon süresinde 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda pH 8,53, 0,70 mA/cm² akım yoğunluğunda ise pH 8,62, 1,05 mA/cm² akım yoğunluğunda da pH 8,52 ve 1,40 mA/cm² akım yoğunluğunda ise 8,63 olarak ölçülmüştür. Buna karşılık 2,10 mA/cm² yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon uygulamasında daha yüksek bir pH değerine (9,26) ulaşılmıştır. pH'daki bu artış çok daha kısa sürede florürün tamamının giderimine olanak tanımıştır.

2 mg/L'lik florür ilaveli içme suyu numunesinde başlangıç kalsiyum konsantrasyonu 35 mg/L olarak ölçülmüştür. 0,35 ile 2,10 mA/cm² değişen akım yoğunlukları ile yürütülen elektrokoagülasyon sonunda artan akım yoğunluklarına bağlı olarak ölçülen kalsiyum konsantrasyonlarında belirgin bir düşüş tespit edilmiştir.

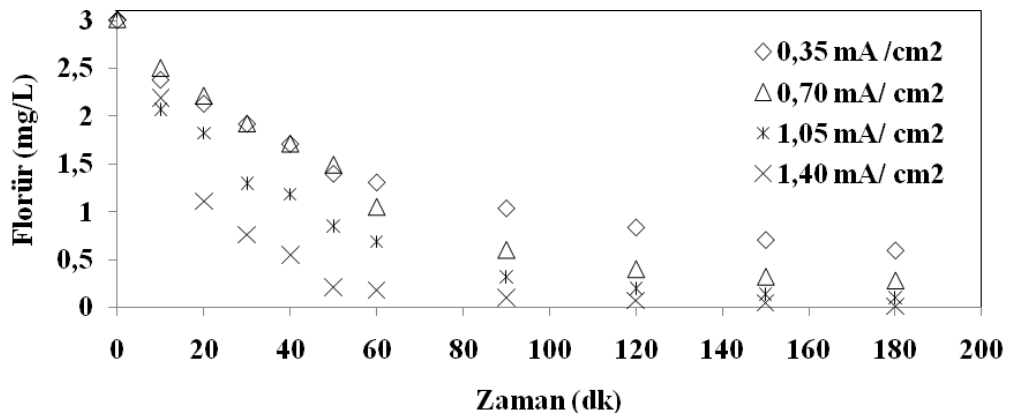
Örneğin 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda 180 dakika süresi sonunda kalsiyum 32 mg/L olarak ölçülürken 2,10 mA/cm² akım yoğunluğunda 26 mg/L'lik bir kalsiyum giderimi söz konusu olmuştur. Elde edilen bu sonuçlar yüksek akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında florür yanında kalsiyumun da çöktürme veya adsorpsiyon mekanizması ile giderildiğini de işaret etmektedir. İçme suyu kompozisyonu dikkate alınarak çökebilecek kalsiyum fazları bir değerlendirme yapıldığında CaF₂ ve CaCO₃ katı fazlarının çökelmiş olabilme ihtimali ortaya çıkmaktadır.

2,10 mA/cm² akım yoğunluğunda giderilen kalsiyum miktarları dikkate alınarak bir hesaplama yapıldığında giderilen kalsiyum miktarı olan 0,65 mM (26 mg Ca/L) kalsiyum eşdeğer çökebilecek florür miktarı 1,3 mM (24,7 mg Ca/L) olarak elde edilmektedir. Bu elektrokoagülasyon uygulaması sonunda numunede mevcut olan florür konsantrasyonuna karşı gelen 2 mg/L'lik bir giderimin söz konusu olduğu düşünüldüğünde kalsiyumun CaF₂ katı fazı olarak çökmüş olabileceği ortadan kalkmaktadır. Bu durumda çökme ihtimali söz konusu olan CaCO₃ katı fazının oluşumu gündeme gelmektedir. Özellikle en fazla kalsiyum gidermenin söz konusu olduğu 2,10 mA/cm² akım yoğunluğunda ulaşılan pH değerinin 9,3 olduğu dikkate alındığında CaCO₃ katı fazının çökelmiş olma ihtimali daha da kuvvet kazanmaktadır.

0,35 ile 0,70 mA/cm² akım yoğunluklarında yürütülen elektrokoagülasyon uygulaması sonunda düşen çamur miktarları hakkında bir değerlendirme yapıldığında artan akım miktarına bağlı olarak oluşan çamur miktarında artış olduğu söylenebilmektedir.

Çözeltide ulaşılan pH'ın pratik olarak birbirine eşit olduğu ve alüminyum hidroksit katı fazının çözünürlüğünde pH'ın en önemli faktör olduğu düşünüldüğünde 0,7 ve 1,05 mA/cm² akım yoğunluklarında sırasıyla 390 ve 775 mg AKM/L çamur oluşumunun söz konusu olması da bu görüşü desteklemektedir.

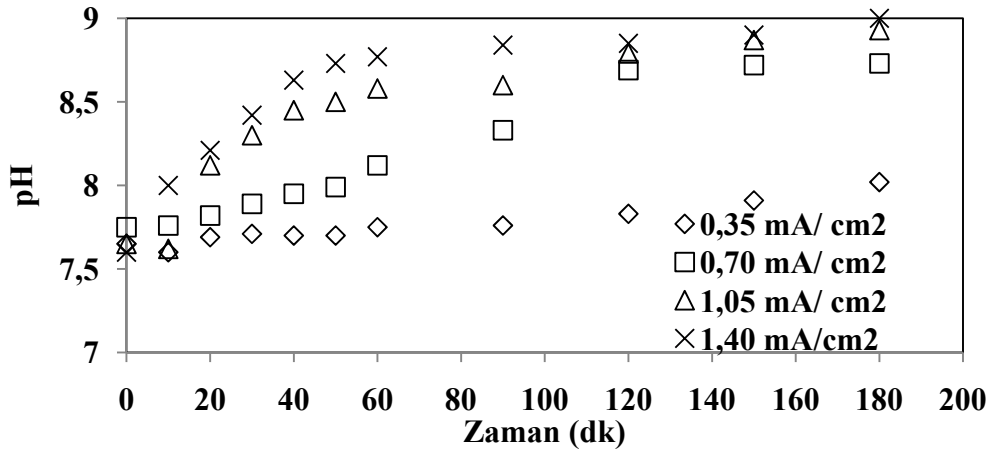
EK C, akım yoğunluğun elektrokoagülasyon uygulamasında prosesin verimi üzerine etkisinin belirlenmesi amacı ile 3 mg/L florür ilaveli içme suyu numuneleri üzerinde numunenin orijinal pH'sı ve elektrolit konsantrasyonunda 0,35 ve 1,40 mA/cm² arasında değişen akım yoğunluklarında yürütülen denemelerden elde edilen sonuçları kapsamaktadır. Bu denemelerde zamana bağlı olarak ölçülen florür konsantrasyonları Şekil 4.14'te verilmiştir.



Şekil 4.14 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 F₀: 3 mg/L).

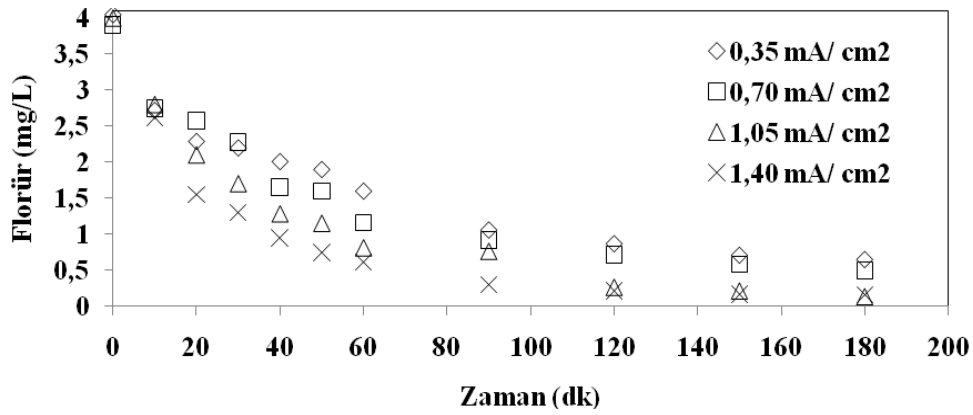
3 mg/L florür ilaveli içme suyu örnekleri üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında 2 mg/L florür ilaveli içme suyu örnekleri üzerinde elde edilenlere benzer gerçekleştirilen deneylerden bulunmuştur. Bu uygulamalarda da artan akım yoğunluğu ile florür giderme verimlerinde belirgin iyileşmeler tespit edilmiştir. Şekil 4.15'te görüleceği üzere akım yoğunluğundaki artış reaksiyon çözeltilerinin pH'sında da belirgin artışlara neden olmuştur. 3 mg/L florür ilaveli içme suyu örneklerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında da artan akım yoğunluklarında kalsiyum konsantrasyonunda belirgin düşüşler meydana gelmiştir.

Buna ilave olarak oluşan çamur miktarları 2 mg/L florür ilaveli içme suları ile aynı seviyededir.



Şekil 4.15 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 F₀: 3 mg/L).

Akım yoğunluğunun elektrokoagülasyon verimi üzerine etkisini belirlemek amacı ile 4 mg/L florür ilaveli içme suyu örnekleri üzerinde numunenin orijinal pH'sında ve elektrolit konsantrasyonunda 0,35 ve 1,40 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen denemelerden elde sonuçlar EK D'de kapsamlı olarak verilmiştir. Şekil 4.16 bu denemelerde zaman bağlı olarak florür konsantrasyonları içermektedir.

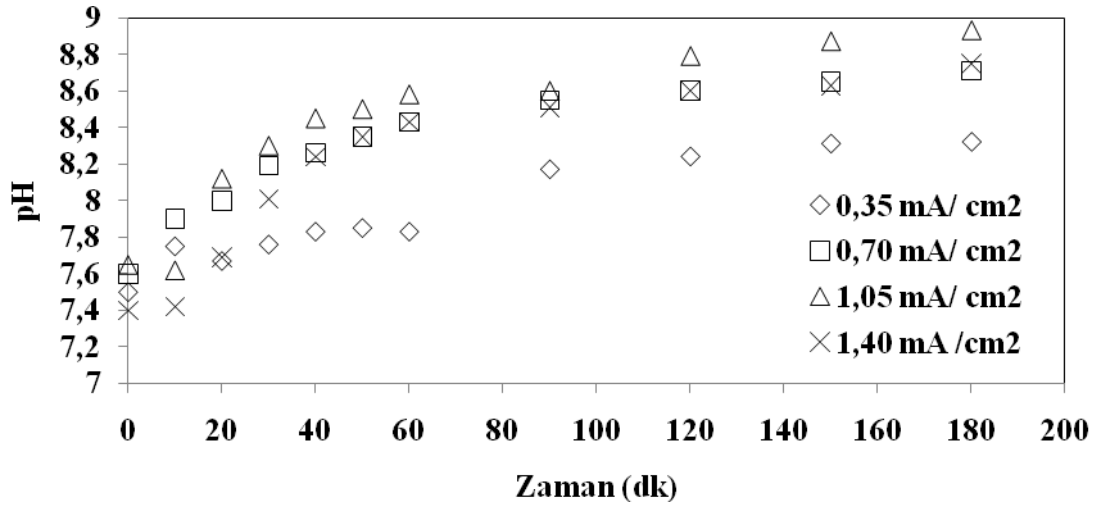


Şekil 4.16 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 F₀: 4 mg/L).

Şekil 4.12, 4.14 ve 4.16 karşılaştırıldığında akım yoğunluğunun etkisini belirlemek üzere 4 mg/L florür ilaveli içme suları üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon

uygulamalarında daha düşük florür konsantrasyonlarında yürütülen diğer denemelere benzer elde edildiği söylenebilmektedir.

Benzer durum elektrokoagülasyon uygulaması esnasında bu set deneylerde pH değişimleri için de söz konusudur (bkz Şekil 4.17) .



Şekil 4.17 : Farklı akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı pH değişimi (E.K. koşulları pH₀: 7,5 F₀: 4 mg/L).

4 mg/L florür ilaveli içme suyu örnekleri üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarının sonunda kalsiyum konsantrasyonlarında akım yoğunluğuna bağlı olarak belirgin düşüşler tespit edilmiştir. Ancak bu düşüşler sabit bir akım yoğunluğunda farklı başlangıç florür konsantrasyonlarındaki numuneler üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon denemelerinin hepsinde aynı düzeydedir. Bu durum ise numune içinde bulunan kalsiyumun hep aynı mekanizma ile giderildiğini işaret etmektedir.

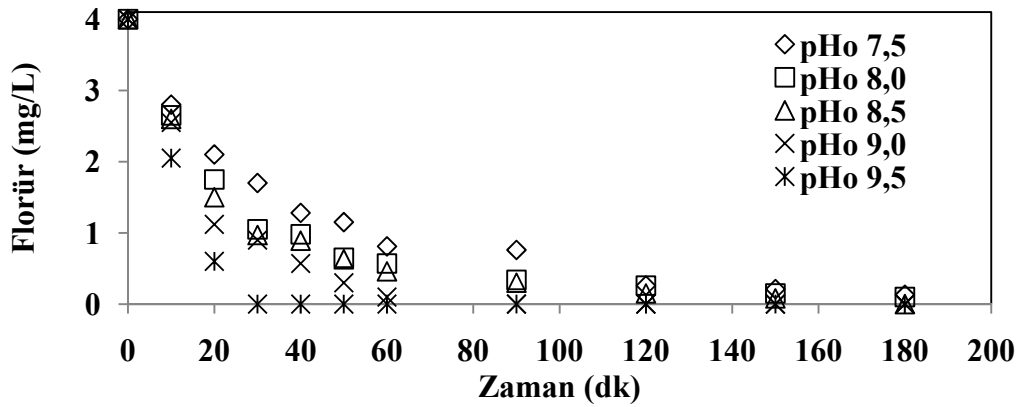
Akım yoğunluğunun elektrokoagülasyon prosesi üzerine etkisini belirlemek üzere yürütülen bu deney setinde de artan akım yoğunluklarında da çamur miktarlarında da artışlar meydana gelmiştir. Çizelge 4.3'te daha önce florür için verilmiş olan görünür birinci dereceden hız sabitlerinin değişimi sabit bir florür konsantrasyonu için akım yoğunluğu bazında değerlendirildiğinde reaksiyonun ilk 60 dakikasında artan akım yoğunluğu ile florür giderim hızı sabitinin büyüdüğü söylenebilmektedir.

Bu noktadan hareketle elektrokoagülasyon uygulamasının ilk 60 dakikasında artan akım yoğunluğu ile daha hızlı florür giderimlerinin gerçekleştiği sonucuna varılmaktadır.

4.3.4 Başlangıç pH'sının etkisi

Başlangıç pH'sının elektrokoagülasyon uygulaması prosesi verimini üzerine etkisini belirlemek amacı ile 4 mg/L florür ilaveli içme suyu örnekleri üzerinde numunenin orijinal elektrolit konsantrasyonunda (Cl_0 : 36 mg/L) ve $1,05 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda 7,5 ile 9,5 arasında değişen başlangıç pH'larında yürütülen deneylerden elde edilen sonuçlar kapsamlı olarak EK E'de verilmiştir. Bu denemelerde zamana bağlı olarak ölçülen florür konsantrasyonunu (Şekil 4.18) içermektedir.

Başlangıç pH'sının elektrokoagülasyon uygulamasında proses verimine etkisini belirlemek üzere yürütülen deney sonuçları değerlendirildiğinde, çözeltinin başlangıç pH'sının yükseltilmesinin florür giderimi üzerinde hızlandırıcı yönde rol oynadığı söylenebilmektedir.



Şekil 4.18 : Farklı başlangıç pH'larında 4 mg/L florür ilaveleri içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi; Cl_0 : 36 mg/L J: $1,05 \text{ mA/cm}^2$.

Şekil 4.18'den de görüldüğü üzere çözelti pH'sının yükseltilmesi reaksiyonun elektrokoagülasyon prosesinde florür giderimini çok daha kısa sürelerde gerçekleşmesini mümkün kılmaktadır. Bu görüş Çizelge 4.4'te verilen görünür birinci derece hız sabitlerinin karşılaştırılması ile de doğrulanmaktadır. Örneğin $1,05 \text{ mA/cm}^2$ akım yoğunluğunda pH 7,5'da başlatılan elektrokoagülasyon uygulamasının ilk 60 dakikalık reaksiyon süresi için elde edilen florür giderim hız sabiti $0,0227 \text{ dk}^{-1}$ 'dir. Buna karşılık pH 9,5'da başlatılan uygulamada hız sabiti $0,0949 \text{ dk}^{-1}$ olarak hesaplanmıştır. Bu iki hız sabiti değeri karşılaştırıldığında pH 9,5'da başlatılan deneyin pH 7,5'da başlatılan deneye nazaran yaklaşık 4 kat daha hızlı gerçekleştiği söylenebilmektedir.

pH 7,5’da başlatılan elektrokoagülasyon uygulamasının 180 dakikası sonunda florür konsantrasyonu 4 mg/L’den ancak 0,2 mg/L’ye düşürülmüştür. Buna karşılık pH 9’da başlatılan elektrokoagülasyon uygulamasında 70 dakikalık reaksiyon süresi sonunda (EK E5) pH 9,5’da başlatılarda ise 28. dakikada florürün tamamı giderilmiştir.

Çizelge 4.4 : Farklı başlangıç pH’larında 4 mg/L florür ilaveli içme suyu örneklerinde yürütülen E.K. denemeleri.

J (mA/cm ²)	pH _o	Süre	Oluşan çamur (mg AKM/L)	pH _{son}	ln (C/Co)	R ²	Cl (mg/L)
0,35	7,5	180	240	8,32	= -0,0101 × t - 0,3971	0,98	39
0,35	9,0	180	290	9,17	= -0,0211 × t - 0,0862	0,99	
0,70	7,5	180	402	8,71	= -0,0207 × t + 0,0196	0,98	
0,70	9,0	180	450	9,27	= -0,0315 × t - 0,1643	0,98	
1,05	7,5	180	570	8,93	= -0,0227 × t - 0,1661	0,98	
1,05	8,0	180	575	9,10	= - 0,0339 × t - 0,0983	0,99	45
1,05	8,5	180	578	9,17	= - 0,0336 × t - 0,1836	0,99	47
1,05	9,0	180	590	9,22	= -0,0527 × t + 0,0816	0,97	53
1,05	9,0	70	200	9,24	= -0,0531 × t + 0,1292	0,99	51
1,05	9,5	180	610	10,0	= - 0,0949 × t + 1,0492	0,99	57
1,40	7,5	180	831	8,75	= -0,0294 × t - 0,2396	0,97	
1,40	9,0	180	850	9,60	= -0,0626 × t + 0,006	0,98	

Yukarıdaki bilgiler ışığında elektrokoagülasyon uygulamasının başlangıç alkali pH’lara çekilmesi ile yürütülmesi florür giderimi açısından çok daha kısa reaksiyon sürelerinde florürün tamamını gidermek için daha avantajlı bir uygulama olarak görülmektedir. Bu uygulamanın diğer avantajları da florürün tamamının çok kısa sürelerde giderilmesi ve buna paralel olarak tam çamur miktarının minimize edilmesi ve enerji sarfiyatının ciddi oranda azalması olarak sıralanabilmektedir. Ancak bu avantajlarının yanı sıra başlangıç pH’sının yükseltilmesinin bazı dezavantajları da söz konusudur.

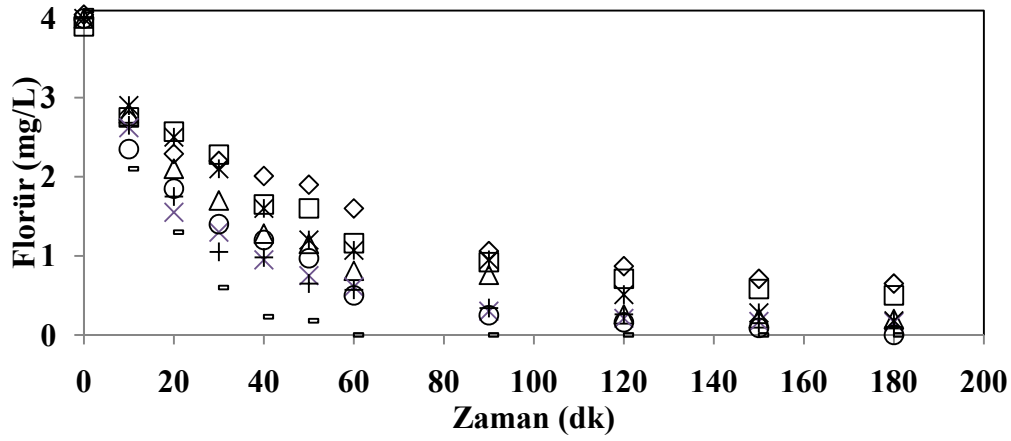
Zira elektrokoagülasyon uygulamasının alkali pH’larda başlatılması reaksiyon süresince hidrojen gazı oluşumu nedeni ile çok daha alkali çıkış akımlarının elde edilmesine neden olacak ve çıkış akımlarında nötralizasyon yapma ihtiyacını gündeme getirecektir.

Nötralizasyon yapılma ihtiyacı ise hem ek kimyasal madde maliyeti getirecek hem de numunenin toplam çözünmüş madde miktarında artışlara neden olacaktır. Çıkış akımlarının HCl ile nötrale edilmesi sonucu ulaşılan klorür konsantrasyonları Çizelge 4.4'te verilmiştir.

Çizelgede 4.4'de görüldüğü üzere pH 9 ve 9,5'da başlatılan elektrokoagülasyon uygulamalar sonrasında (pH=7) işleminin gerçekleştirilmesi durumunda klorür konsantrasyonunda yaklaşık 15 mg/L 'lık bir artış meydana gelmektedir. Ulaşılan klorür konsantrasyonu içme suyu standartlarını sağlamaktadır. Ancak bu noktada dikkat edilmesi gereken bir diğer husus da çıkış akımlardaki alüminyum elektrotların çözünmesi sonucu çözeltiliye geçen alüminyum miktarıdır. Zira alüminyum hidroksit katı fazının çözünürlüğünü etkileyen en önemli etken çözeltide ulaşılan pH değeridir. Özellikle alkali pH'larda elektrokoagülasyon prosesinin başlatılması çok daha alkali çıkış akımlarının oluşmasına sebep olacağı için $Al(OH)_4^-$ hidroksit kompleksinin hakim olması daha yüksek alüminyum konsantrasyonlarına ulaşılmasına neden olacaktır.

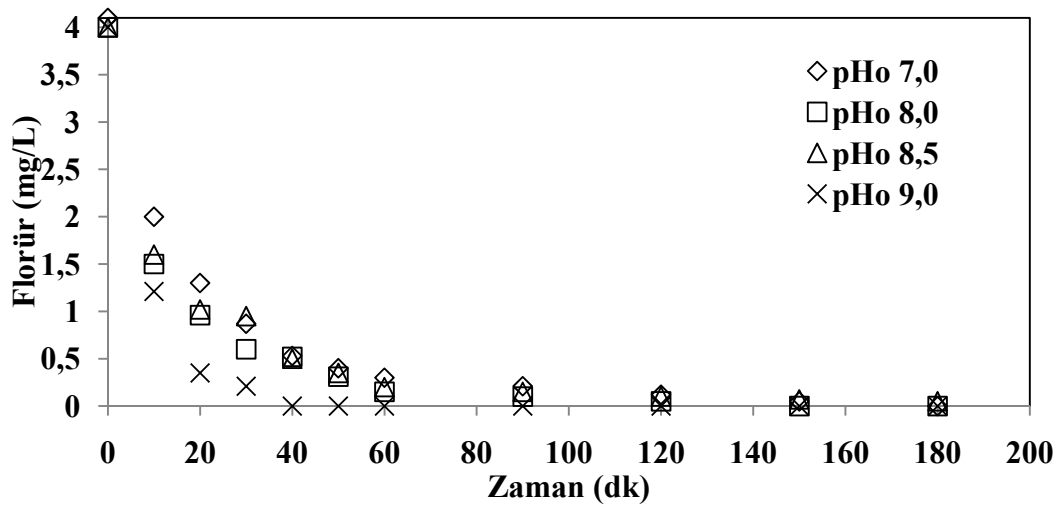
İçme suyu standartlarında alüminyum konsantrasyonun 0,2 mg/L ile sınırlandırıldığı düşünüldüğünde bu husus daha da önem kazanmaktadır. Bu nedenle elektrokoagülasyon prosesinin ekonomik olarak işletiminin yanı sıra alüminyum deşarj standartlarının sağlanacağı işletme koşullarında yürütülmesi zorunluluğu bulunmaktadır.

Alüminyum standardın aşılamayacağı en uygun işletme koşullarını belirlemek amacı ile pH_o 9'da 0,35 mA/cm² ile 1,40 mA/cm² akım yoğunluğunda numunenin orijinal elektrolit konsantrasyonunda 4 mg /L florür içeren içme suyu örnekleri üzerinde bir seri elektrokoagülasyon uygulaması gerçekleştirilmiş; elde edilen sonuçlar kapsamlı olarak EK F'de Çizelge 4.4'te verilmiştir. Bu denemelerden zamana bağlı ölçülen florür konsantrasyonu numunenin orijinal pH'sında hiç değişiklik yapılmadan elde edilenlerle karşılaştırılmalı olarak Şekil 4.19'da görülmektedir.



Şekil 4.19 : Farklı başlangıç pH'ları ve akım yoğunluklarında içme suyu örneklerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (E.K. koşulları F_0 : 4 mg/L pH_0 7,5: $\diamond$ 0,35 mA /cm²; $\square$ 0,70 mA /cm²; Δ 1,05 mA /cm²; $\times$ 1,40 mA/cm²; pH_0 9: $\boxtimes$ 0,35 mA /cm²; $\circ$ 0,70 mA /cm²; $+$ 1,05 mA /cm²; $-$ 1,40 mA /cm²).

Şekil 4.20'de başlangıç pH'sı 7, 8, 8,5 ve 9 olarak ayarlanmış sentetik numuneler üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon denemelerindeki florür giderimleri verilmiştir.



Şekil 4.20 : Farklı başlangıç pH'larında SN üzerinde yürütülen denemelerde zamana bağlı florür değişimi (E.K. koşulları F_0 : 4 mg/L, J : 1,05 mA /cm², Cl_0 : 36 mg/L, Ca_0 : 36 mg/L).

Şekil 4.20 incelendiğinde çalışılan tüm akım yoğunluklarında pH 9'la başlatılan denemelerde daha hızlı florür giderimlerinin elde edildiği söylenebilmektedir. Bu görüş Çizelge 4.4'te de verilen hız sabitlerinin karşılaştırılması ile doğrulanmaktadır. Başlangıç pH'sı 1,5 birim arttırıldığında reaksiyonun ilk 60 dakikasında florür giderimi yaklaşık 2 kat hızlanmaktadır.

Bu durumda da yine EK G'den de görüldüğü üzere alüminyumun deşarj standartlarının sağlanamadığı görülmektedir. Aynı işletme koşullarında sadece başlangıç pH'ının yükseltilmesi durumunda elektrokoagülasyon aynı reaksiyon süresinde daha yüksek miktarda arıtma çamurları oluşabilmektedir (Çizelge 4.4). Ancak pH'daki 1,5 birimlik artış çamur miktarında yaklaşık 50 mg/L mertebesinde bir artışa neden olmaktadır. Ancak yüksek pH'larda yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında çok daha kısa sürelerde florür giderimi mümkün olacağı ve buna bağlı olarak çamur oluşumu azalacağı için bu bir dezavantaj olarak görülmemektedir.

4.3.5 Suda bulunan diğer iyonların etkisi

İçme sularında florür dışında bulunabilecek diğer iyonların etkisini belirlemek amacı ile yürütülen deneysel çalışmalarda Bölüm 4.1'de belirtilen iyonları içeren sentetik numuneler (SN) kullanılmıştır. Bu numunelerin tanımları ve numuneler üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarının gerçekleştirildiği deneysel koşullar Çizelge 4.5'te verilmiştir.

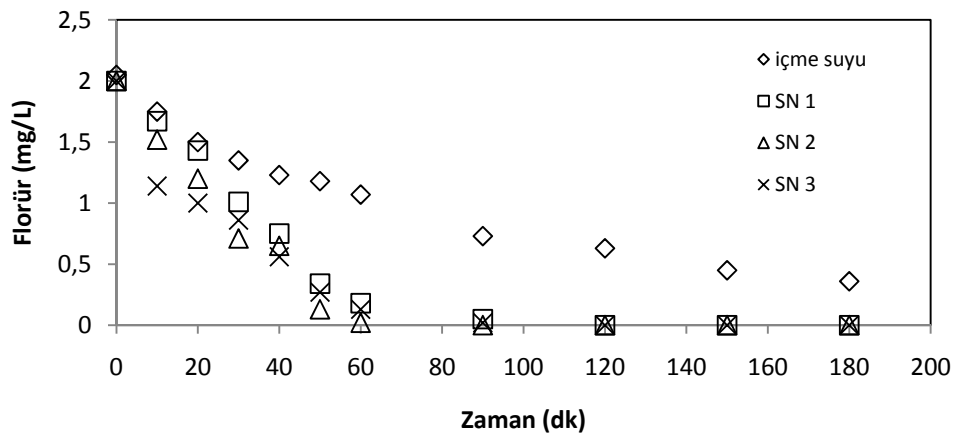
Çizelge 4.5 : Suda bulunan diğer iyonların etkisinin belirlenmesi amacıyla kullanılan sentetik numunelerin tanımları ve elektrokoagülasyon çalışmaları deneysel koşulları.

Numune	Akım yoğunluğu (mA/cm ²)	F _o	Cl ⁻ (mg/L)	Ca ²⁺ (mg/L)	Toplam Alkalinite (mg CaCO ₃ / L)
SN 1	0,35	2	35	-	-
SN 2	0,35	2	35	-	76
SN 3	0,35	2	35	36	-
SN 4	1,04	2	35	-	-
SN 5	1,04	2	35	-	76
SN 6	1,04	2	35	36	-
SN 7	0,35	4	35	-	-
SN 8	0,35	4	35	-	76
SN 9	0,35	4	35	36	-
SN 10	1,04	4	35	-	-
SN 11	1,04	4	35	-	76
SN 12	1,04	4	35	36	-

Çizelge 4.5'te özellikleri görülen SN 1, SN 4, SN 7 ve SN 10 sentetik numuneleri ortamda diğer iyonların bulunmadığı durumu temsil etmek üzere, şahit deneylerin yürütülmesi amacı ile NaF tuzunun distile su içinde çözülmesiyle hazırlanmıştır. Söz konusu numunelerin hazırlanmasındaki amaç, literatürde çoğunlukla distile su içine NaF tuzu ilave edilerek yürütülen araştırmaların gerçek koşulları ne kadar yansıtıp yansıtmadığını belirlemektir. Alkalinitenin florür giderimi üzerine etkisinin belirlenmesi amacı ile içme suyunun alkalinitesine eşdeğer NaHCO_3 'ün ilavesi ile SN 2, SN 5, SN 8 ve SN 11 örnekleri hazırlanmıştır.

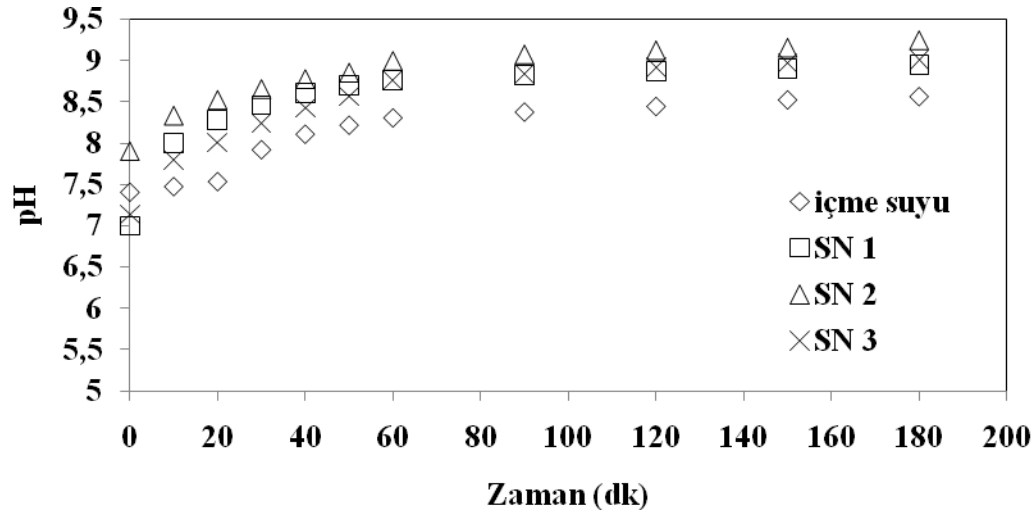
Ca^{2+} iyonunun etkisinin belirlenmesi amacı ile SN 3, SN 4, SN 9 ve SN 12 örneklerinde ise numunelere $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ tuzunun ilavesi yapılmıştır. Bu denemeler 2 mg/L ve 4 mg/L başlangıç florür konsantrasyonlarında 0,35 ve 0,70 mA/cm² akım yoğunluklarında gerçekleştirilmiş ve elde edilen sonuçlar EK H'de kapsamlı olarak verilmiştir.

0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda 2 mg/L florür içeren içme suyu ve sentetik olarak hazırlanmış numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında zamana bağlı olarak ölçülen florür konsantrasyonları Şekil 4.21'de verilmiştir. Şekil 4.21'de görüldüğü üzere, içme suyu ile SN numuneleri karşılaştırıldığında, sentetik olarak hazırlanmış numunelerde florür konsantrasyonunun çok daha hızlı bir azalış gösterdiği görülmektedir. İçme suyunda florür konsantrasyonu 180 dakika sonunda 2 mg/L'den 0,36 mg/L'ye düşerken; sentetik olarak hazırlanmış numunelerde 120 dakika sonunda florürün tamamı giderilmiştir. Bu sonuçlar ışığında içme suyu içinde bulunan diğer iyonların florür giderimini yavaşlattığı söylenebilmektedir.



Şekil 4.21 : 2 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı florür değişimleri J: 0,35 mA/cm², Cl: 36 mg/L.

Bu çalışmalar kapsamında, gerçekleştirilen 180 dakikalık elektrokoagülasyon deneylerinde gözlemlenen pH değişimleri Şekil 4.22’de verilmiştir. Şekil 4.22’de görüldüğü üzere deneysel çalışma sonucunda içme suyundaki pH artışı SN’lere göre daha yavaş gerçekleşmektedir, bunun sebebinin ise içme suyunun pH değişimine karşı tampon etkisi göstermesinden kaynaklandığı elde edilen sonuçlar ışığında söylenebilmektedir.



Şekil 4.22 : 2 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı pH değişimleri J: 0,35mA/cm², Cl: 36 mg/L.

Çizelge 4.6’da içme suyu ve sentetik olarak hazırlanmış olan numuneler üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon deneysel çalışmaları sonunda (180 dk.) üretilen çamur miktarları, ölçülen alüminyum konsantrasyonları ve ulaşılan pH değerleri, birinci derecen reaksiyon hız denklemleri ile beraber verilmektedir. Çizelge 4.6’dan görüldüğü üzere içme suyuna klorür, kalsiyum ve bikarbonat ilave edilerek sentetik olarak hazırlanmış numunelerde 180 dakika EK uygulaması sonunda üretilen çamur miktarları ve ulaşılan pH değerleri aynı mertebededir. Sentetik olarak hazırlanmış olan numunelerde 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon deneysel çalışmalarından elde edilen görünür birinci dereceden kinetik sabitleri içme suyu için 0,0081 dk⁻¹, kalsiyum ve bikarbonat ilaveli SN’ler için sırasıyla -0,024 dk⁻¹ ve - 0,0523 dk⁻¹ olarak bulunmuştur (bkz Çizelge 4.6). En yüksek florür giderim hızı bikarbonat ilaveli SN’lerde, en düşük giderim hızı ise kalsiyum ilave edilerek hazırlanan SN’lerde elde edilmiştir ($k_{CO_3} > k_{Cl} > k_{Ca}$). Elde edilen bu sonuçlar alkalinitenin florür giderimini artırıcı bir etki yaptığına işaret etmektedir.

Çizelge 4.6 : Suda Bulunan Diğer İyonların Etkisi (F₀: 2 mg/L, Cl: 36 mg/L)

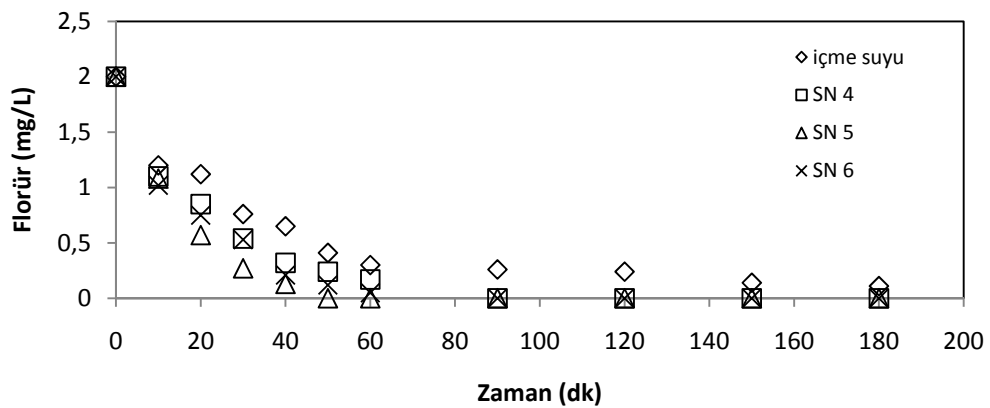
Numune	J (mA/cm ²)	pH ₀	Çamur* (mg AKM/L)	Alüminyum** (mg/L)	pH _{son} ***	ln (C/C ₀)	R ²
İçme suyu	0,35	7,5	203	0,5045	8,57	$= -0,0081 \times t - 0,1646$	0,98
SN 1	0,35	7,0	220	1,0337	8,95	$= -0,0381 \times t + 0,1542$	0,98
SN 2	0,35	7,9	260	0,5570	9,24	$= -0,0523 \times t + 0,7983$	0,99
SN 3	0,35	7,0	250	0,2354	9,01	$= -0,0245 \times t - 0,2722$	0,98
İçme suyu	1,04	7,0	470	0,9977	8,90	$= -0,0391 \times t - 0,1648$	0,99
SN 4	1,04	7,9	530	1,4048	9,30	$= -0,0713 \times t - 0,1229$	0,99
SN 5	1,04	7,0	520	0,0943	9,07	$= -0,0603 \times t - 0,0892$	0,99
SN 6	1,04	7,5	558	0,6133	8,69	$= -0,0325 \times t - 0,0701$	0,98

*180 dk EK uygulaması sonunda üretilen çamur

**180 dk EK uygulaması sonunda ölçülen alüminyum konsantrasyonu

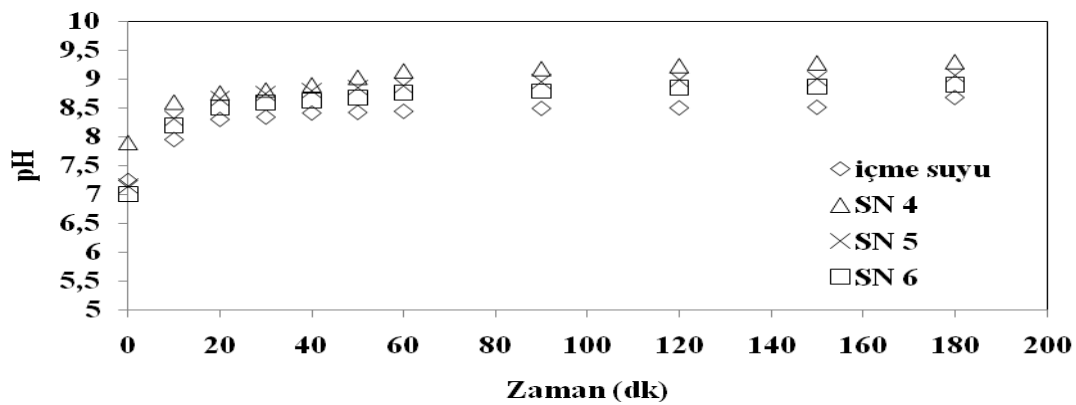
***180 dk EK uygulaması sonunda ulaşılan pH

İçme sularında, sertliğe neden olan iyonlardan biri olan kalsiyumun etkisini incelemek amacı ile, kalsiyum ilave edilerek sentetik olarak hazırlanmış numunelerde yürütülen elektrokoagülasyon deney sonuçları ile karbonat ve klorür ilave edilerek hazırlanan sentetik numunelerle gerçekleştirilen deneylerin sonuçları karşılaştırıldığında, 180 dakika reaksiyon sonunda aynı mertebelerde florür gideriminin gerçekleştiği ancak giderim hızının daha yavaş olduğu belirlenmiştir. Akım yoğunluğunun artırılması ile sistem veriminin değişiminin incelenmesi amacı ile, başlangıç florür konsantrasyonu 2 mg/L olan sentetik olarak hazırlanmış numunelerde ve içme suyu numunesinde, 0,35 mA/cm² olan akım yoğunluğu 3 kat artırılarak (1,05 mA/cm²) elektrokoagülasyon deneyleri yürütülmüş ve florür giderimleri incelenmiştir (bkz Şekil 4.23).



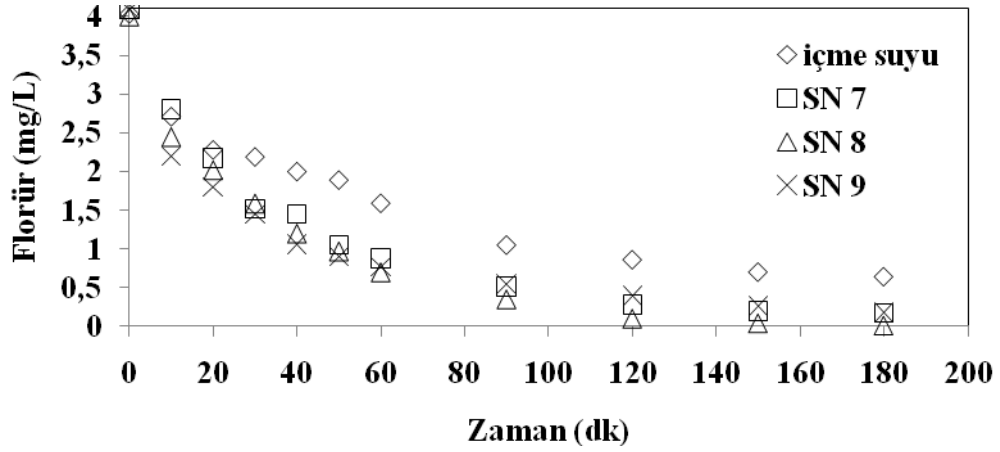
Şekil 4.23 : 2 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı florür değişimleri J: 1,05 mA/cm², Cl=36 mg/L.

1,05 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon deneylerinden elde edilen sonuçlar ile 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen deneylerden elde edilen sonuçlar karşılaştırıldığında, 1,05 mA/cm² akım yoğunluğunda çalışıldığında 2 mg/L florür ilave edilerek hazırlanan sentetik numuneler ile içme suyu numunesi arasındaki florür giderim hızlarının birbirine yaklaştığı görülmüştür. Sentetik olarak hazırlanmış olan numuneler ve içme suyunda oluşan çamur miktarları, akım yoğunluğu değişiminin etkisine benzer şekilde aynı mertebelerde bulunurken, pH_{son} değerlerinin sentetik numuneler ve içme suyunda birbirinden farklı olduğu gözlenmiştir (Şekil 4.24).



Şekil 4.24 : 2 mg/L ilaveli florür numuneler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı pH değişimleri J: 1,05 mA/cm², Cl=36 mg/L

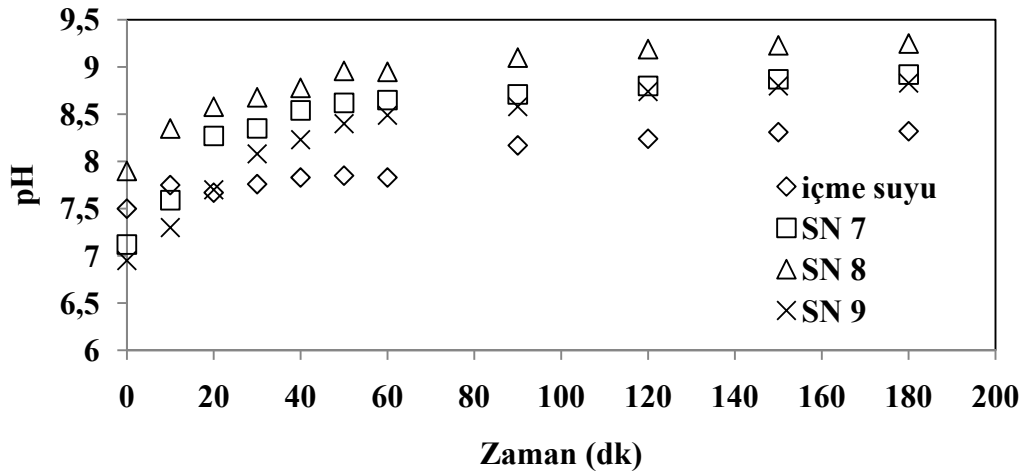
Yabancı iyonların yüksek giriş florür konsantrasyonuna sahip numunelerde sistem verimi üzerine etkisinin incelenmesi amacı ile giriş florür konsantrasyonu 4 mg/L olan sentetik olarak hazırlanmış numuneler üzerinde, 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen deneylerde, içme suyunda florür konsantrasyonu 180 dakika sonunda 0,65 mg/L'ye inmekte, sentetik örneklerde de aynı reaksiyon süresi sonunda florür tamamen giderilememektedir ($\cong$ 0,2 mg/L). Alkalinitenin florür giderimine etkisinin incelenmesi amacı ile yürütülen deneysel çalışmanın sonuçları incelendiğinde (SN 4, SN 5, SN 6), içme suyu ve diğer örneklere göre florür giderim veriminin daha yüksek olduğu gözlemlenmiştir (bkz Şekil 4.25).



Şekil 4.25 : 4 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı florür değişimleri J: 0,35 mA/cm², Cl=36 mg/L

Kalsiyum iyonunun etkisinin incelenmesi amacı ile 4 mg/L giriş florür konsantrasyonunda ve 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda yürütülen elektrokoagülasyon deneylerinde florür giderim hızlarının birbirlerine çok yakın olduğu görülmektedir (bkz Çizelge 4.7).

0,35 mA/ cm² akım yoğunluğunda 4 mg/L ilaveli florür ilaveli içme suyu ve SN numunelerindeki pH değişimi incelendiğinde, başlangıç florür konsantrasyonunun 2 mg/L olduğu içme suyu numunelerinde, içme suyundakine benzer şekilde yavaş bir artış gözlenmiştir. Bu da içme suyu içinde pH'a karşı tampon görevi yapan diğer iyonların var olduğunu göstermektedir (bkz Şekil 4.26).



Şekil 4.26 : 4 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı pH değişimleri J: 0,35mA/cm², Cl=36 mg/L

0,35 mA/ cm² akım yoğunluğunda 4 mg/L ilaveli florür ilaveli içme suyu ve şahit numunelerde pH değişimi incelendiğinde, başlangıç florür konsantrasyonunun 2 mg/L olduğu içme suyu numunelerinde, içme suyundakine benzer şekilde yavaş bir artış gözlenmiştir. Bu da içme suyu içinde pH'a karşı tampon görevi yapan diğer iyonların var olduğunu göstermektedir (bkz Şekil 4.26).

Çizelge 4.7 : Suda Bulunan Diğer İyonların Etkisi (F₀: 4 mg/L, Cl=36 mg/L)

Numune	J (mA/cm ²)	pH ₀	Çamur *(mg AKM /L)	Alüminyum** (mg/L)	pH _{son} ***	ln (C/C ₀)	R ²
İçme suyu	0,35	7,5	240	1,831	8,32	$= -0,0101 \times t - 0,2967$	0,98
SN 7	0,35	7,0	280	0,5537	8,92	$= -0,0233 \times t + 0,1531$	0,99
SN 8	0,35	7,9	350	0,3856	9,25	$= -0,0255 \times t + 0,2045$	0,98
SN 9	0,35	7,0	300	0,1783	8,83	$= -0,0218 \times t - 0,4069$	0,99
İçme suyu	1,04	7,0	570	0,2421	8,93	$= -0,0237 \times t - 0,1441$	0,99
SN 10	1,04	7,9	430	2,1812	9,21	$= -0,0456 \times t - 0,0345$	0,99
SN 11	1,04	7,0	460	1,1972	9,30	$= -0,0652 \times t + 0,0791$	0,98
SN 12	1,04	7,5	650	0,0451	8,19	$= -0,0386 \times t - 0,3824$	0,99

*180 dk EK uygulaması sonunda üretilen çamur

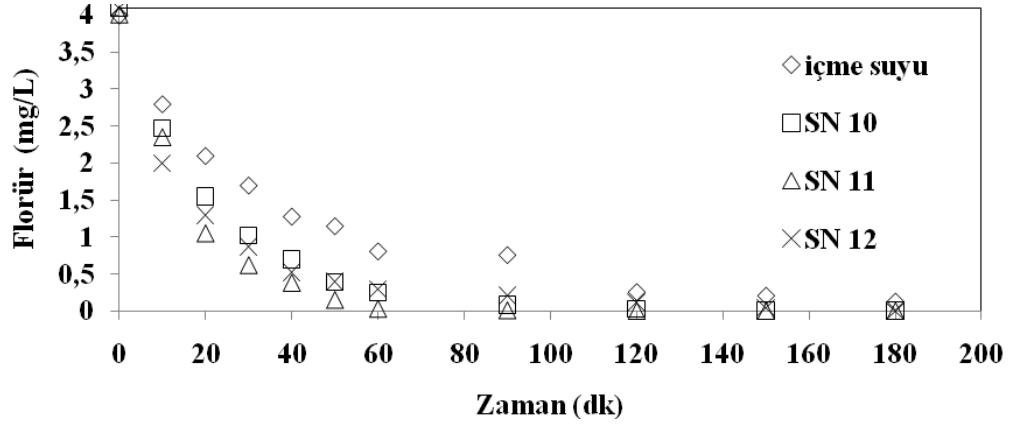
**180 dk EK uygulaması sonunda ölçülen alüminyum konsantrasyonu

***180 dk EK uygulaması sonunda ulaşılan pH

Çizelge 4.7'den görüldüğü üzere, hem 0,35 mA/cm² hem de 1,04 mA/ cm² akım yoğunluklarında görünür birinci dereceden hız sabitleri karşılaştırıldığında, hız sabitleri küçükten büyüğe içme suyu, F + Ca + Cl içeren sentetik numune, F + Cl içeren sentetik numune, F + Cl + CaCO₃ içeren sentetik numune şeklinde sıralanmaktadır.

Elde edilen sonuçlar ışığında kalsiyum iyonlarının florür gideriminde yavaşlatıcı bir etkiye sahip olduğu söylenebilmektedir. 0,35mA/cm² akım yoğunluğunda pH_{son} değerleri 4 mg/L başlangıç florür konsantrasyonuna sahip SN'ler ve içme suyu numunesinde aynı mertebelerdedir. Ancak bikarbonat içeren SN 8 örneğinde diğerlerine nazaran daha yüksek pH değerine ulaşılmış ve buna bağlı olarak diğerlerine göre daha yüksek miktarda çamur oluşumu gözlenmiştir.

Şekil 4.27'de 1,04 mA/cm² akım yoğunluğunda 4 mg/L florür içeren sentetik numuneler ve içme suyunda zamana bağlı florür değişimleri verilmektedir.



Şekil 4.27 : 4 mg/L ilaveli numuneler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı florür değişimleri J: 1,05 mA/cm², Cl=36 mg/L.

Şekil 4.27'den de görüldüğü gibi florür konsantrasyonu 120 dakika sonunda karbonat ilaveli SN'de sıfırlanırken kalsiyum içeren SN'de 0,12 mg/L, florür dışında başka iyonun bulunmadığı SN'de ise 0,03 mg/L'ye inmiştir.

Akım yoğunluğu 0,35 mA/cm²'den 1,05 mA/cm²'ye artırıldığında 4 mg/L florür içeren SN ve içme suyundaki pH değişimleri aynı oranda artmaktadır. Ancak 2 mg/L başlangıç florür konsantrasyonuna sahip örneklerde, içme suyunun pH değerindeki artış şahit örneklerine göre daha yavaştır (Şekil 4.24).

4.3.6 Alkalinitenin etkisi

Suda bulunan diğer iyonların florür giderimine olan etkileri incelendiğinde, bikarbonat ilave edilerek hazırlanan örneklerde elektrokoagülasyon uygulaması sonunda florürün daha kısa sürede ve çoğunlukla tamamen giderildiği yapılan deneysel çalışmalarla belirlenmiştir. Bu noktadan hareketle alkalinitenin florür giderimi üzerindeki etkisinin belirlenmesi amacı ile içme suyunun orijinal alkalinitesi 300 mg CaCO₃/L'ye kadar arttırılarak bir seri deney yürütülmüş ve sonuçları EK I'da kapsamlı olarak verilmiştir.

4 mg/L florür ilaveli içme suyu (FİS) örnekleri ve sentetik numunelerle (SN) yapılan 1,05 mA/cm² ve 0,35 mA/cm² akım yoğunluğundaki elektrokoagülasyon uygulama sonuçları Çizelge 4.8'de verilmektedir. Çizelge 4.8'de görüldüğü üzere yürütülen deneysel çalışmalarda başlangıç pH değerleri deneysel çalışma setleri arasında paralellik sağlanması için 8 olarak ayarlanmıştır. Deneysel çalışmaların bu pHo değerinde yürütülmesinin sebebi içme suyunun orijinal alkalinitesinin 300 mg CaCO₃/L'ye yükseltilmesi ile suyun başlangıç pH değerinin 8 civarına çıkmasıdır.

Çizelge 4.8 : 4 mg/L florür içeren içme suyu ve sentetik örnekler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında toplam alkalinitenin etkisi.

J (mA/cm ²)	Topam Alkalinite (mg CaCO ₃ /L)	pH _o	Çamur* (mg AKM /L)	Alüminyum** (mg/L)	pH _{son} ***	ln (C/C _o)	R ²
1,05	76	7,5	570	0,2421	8,93	$= -0,0237 \times t - 0,1140$	0,98
1,05	85	8,0	575	1,4317	9,17	$= -0,0242 \times t + 0,1833$	0,99
1,05	150	8,0	580	1,4717	9,10	$= -0,0237 \times t + 0,307$	0,97
1,05	305	8,0	600	0,3154	9,25	$= -0,0489 \times t - 0,112$	0,99
0,35	75	8,0	380	0,9183	9,20	$= -0,0225 \times t - 0,1245$	0,99
0,35	305	8,0	360	0,7872	9,25	$= -0,0322 \times t - 0,0216$	0,99

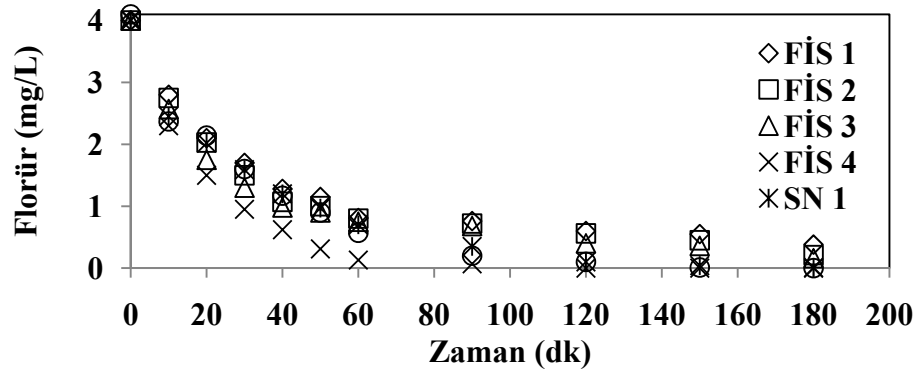
*180 dk EK uygulaması sonunda üretilen çamur

**180 dk EK uygulaması sonunda ölçülen alüminyum konsantrasyonu

***180 dk EK uygulaması sonunda ulaşılan pH

Şekil 4.28’da farklı alkaliniteye sahip florür ilaveli örnekler üzerindeki zamana bağlı florür değişim konsantrasyonları verilmektedir Şekil 4.28’de 4 mg/L giriş florür konsantrasyonuna ve farklı alkalinite değerlerine sahip örnekler üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında zamana bağlı elde edilen florür konsantrasyonları verilmektedir. 76 mg CaCO₃/ L (orijinal içme suyu) 180 dakikalık reaksiyon süresini sonunda florür konsantrasyonu 0,2 mg/L’ye inerken alkalinite 86 ve 150 mg CaCO₃/ L olduğunda 0,1 mg/L florür konsantrasyonuna ulaşılmıştır. Alkalinite değeri 300 mg CaCO₃/ L’ye yükseltildiğinde reaksiyon hızlanmış, florürün tamamı giderilmiştir.

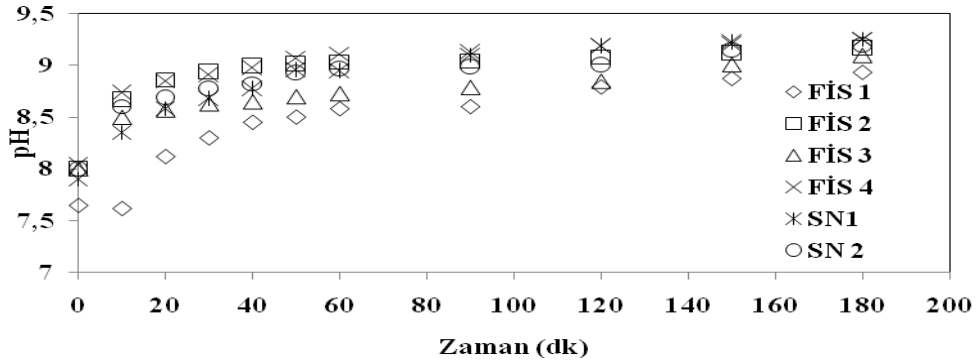
Çizelge 4.7’den görüldüğü üzere orijinal alkaliniteli içme suyunda 60 dakikalık reaksiyon süresindeki hız sabiti -0,0237 dk⁻¹ iken alkalinite değeri yaklaşık 4 kat arttığında k değeri de yaklaşık 2 kat artmaktadır. Elde edilen sonuçlar ışığında alkalinitenin elektrokoagülasyon prosesi ile florür arıtımında iyileştirici bir rol oynadığı söylenebilmektedir



Şekil 4.28 : 4 mg/L florür ilaveli numuneler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı florür değişimleri.(J: 1,05 mA/cm², Cl=36 mg/L).

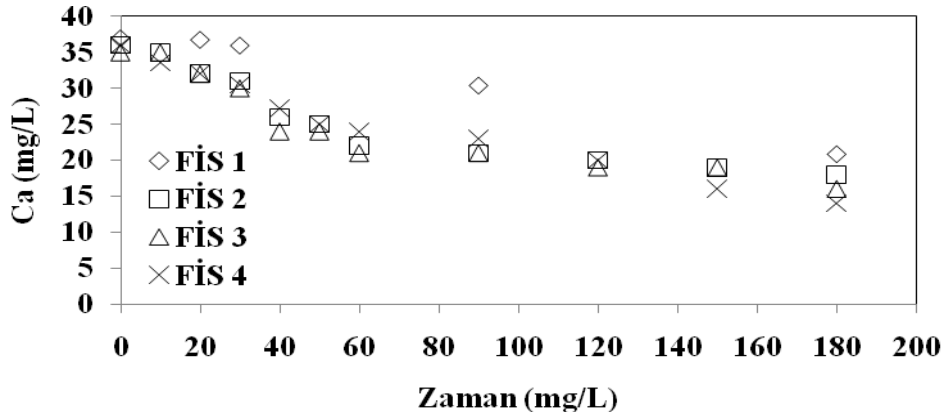
4 mg/L florür ilaveli içme suyu ve sentetik örnekler üzerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulaması sonunda pH değişimleri incelendiğinde orijinal alkaliniteli içme suyundaki pH artışının alkalinitesi yüksek olanlara göre daha yavaş olduğu belirlenmiştir (bkz Şekil 4. 39).

Ulaşılan pH son değerleri 0,35 mA/cm² akım yoğunluğunda 75 mg CaCO₃/L ve 300 mg CaCO₃/L alkaliniteye sahip SN'ler ile yürütülen elektrokoagülasyon deneylerinde 180 dakikalık reaksiyon süresince aynı mertebelere ulaşılır (pH_{son} 9,1) ve buna bağlı olarak oluşan çamur miktarları da birbirine çok yakındır.



Şekil 4.29 : 4 mg/L florür ilaveli içme suyu ve SN'leri üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı pH değişimleri. J: 1,05 mA/cm², Cl=36 mg/L).

Şekil 4.30'da 1,05 mA/cm² akım yoğunluğunda farklı başlangıç alkaliniteye sahip 4 mg/L florür ilaveli içme suyu örnekleri üzerinde uygulanan elektrokoagülasyon prosesi sırasında elde edilen kalsiyum değişimleri görülmektedir.



Şekil 4.30 : 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında elde edilen zamana bağlı kalsiyum değişimleri (J: 1,05 mA/cm², Cl=36 mg/L).

Şekil 4.30 incelendiğinde içme suyu kullanılarak yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarının sonucunda akım yoğunluğu arttıkça florür ile birlikte kalsiyum iyonun da giderildiği görülmektedir. Yürütülen bu elektrokoagülasyon deneyleri sonucunda kalsiyumun azalmasının nedeninin kalsiyumun alkaliniteyi oluşturan karbonat iyonları ile birleşerek CaCO₃ şeklinde çökerek sudan uzaklaşması olduğu düşünülmektedir. Yaklaşık 36 mg /L kalsiyum içeren florürlü içme suyu örneklerinde orijinal alkaliniteli suda 1,05 mA/ cm² akım yoğunluğunda 180 dakika sonunda kalsiyum değeri 20 mg/L iken, alkalinite değeri 4 kat arttığında kalsiyum miktarı 6 mg/L azalmıştır. Suyu karbonat ilavesi yapıldığında kalsiyum miktarında 180 dakikalık elektrokoagülasyon uygulaması sonunda bir azalış meydana gelmesi Ca²⁺ iyonlarının karbonat iyonları ile birleşerek çöktüğü görüşünü desteklemektedir.

4.3.7 Sülfat iyonlarının etkisi

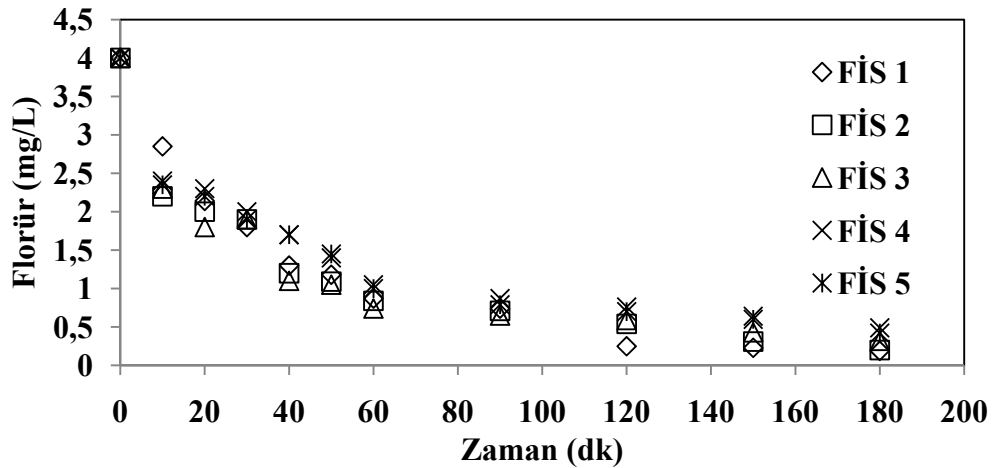
Önemli bir atıksu bileşeni olan sülfat iyonlarının elektrokoagülasyon prosesine olan etkileri literatürde yapılan çalışmalarda yer almaktadır. Bu noktadan hareketle içme sularındaki sülfat iyonlarının florür giderimine olan etkilerini incelemek üzere farklı konsantrasyonlarda sülfat içeren örnekler üzerinde deneysel çalışmalar yürütülmüştür. Çizelge 4.9’da 4 mg/L florür ilaveli içme suyu (FİS) örnekleri ile 1,05 mA/cm² akım yoğunluğunda gerçekleştirilen deneysel çalışma sonuçları yer almaktadır.

Çizelge 4.9 : 4 mg/L florür içeren içme suyu ve sentetik örnekler üzerinde yürütülen E.K. uygulamasında sülfat iyonlarının etkisi

Numune	Sülfat ₀ (mg/L)	Sülfat ^{**} (mg/L)	Çamur (mg AKM /L)	Alüminyum ^{**} (mg/L)	pH _{son}	ln (C/C ₀)*	R ²
FİS 1	60	10	565	1,6367	8,87	$= -0,0227 \times t - 0,1287$	0,98
FİS 1	60	10	567	0,6028	6,50	$= -0,0227 \times t - 0,1287$	
FİS 2	80	21	580	2,6176	8,80	$= -0,0188 \times t + 0,4148$	0,99
FİS 3	105	49	610	3,0451	9,13	$= -0,0228 \times t + 0,3411$	0,99
FİS 4	165	130	660	6,0563	9,25	$= -0,0165 \times t - 0,2099$	0,99
FİS 5	165	130	697	1,1595	6,50	$= -0,0165 \times t - 0,2099$	
FİS 5	300	235	690	7,0241	9,23	$= -0,0122 \times t - 0,3819$	0,99

** 180 dakika *60 dakika

Çizelge 4.9’da görüldüğü üzere sülfat konsantrasyonu arttıkça çamur miktarları da aynı mertebelere ulaşmaktadır ve buna bağlı olarak ulaşılan pH değerleri de birbirine yakındır. Bununla birlikte sülfat konsantrasyonundaki artış çıkış alüminyum konsantrasyonlarının artmasına sebep olmaktadır. Bu sonuçlar suda elektrokoagülasyon sonucunda alüminyum sülfatın çöktüğünü göstermektedir. Çıkış pH değerinin 6,5’a ayarlanması durumunda ise alüminyum katı fazının çözünürlüğü minimuma yaklaşmakta ve buna bağlı olarak alüminyum konsantrasyonunda ciddi bir azalma meydana gelmektedir. Şekil 4.31’de bu deneysel çalışmalardan elde edilen florür değişimleri gösterilmektedir.



Şekil 4.31 : 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalarında zamana bağlı florür değişimleri (J: 1,05 mA/cm², Cl:36 mg/L)

Şekil 4.31’den de görüldüğü üzere sülfat iyonlarının artması florür gideriminde çok önemli bir değişikliğe neden olmamaktadır. Çizelge 4.9’da verilen hız sabitleri

karşılaştırıldığında ise orijinal içme suyu numunesi ve 300 mg/L sülfat içeren içme suyu örneklerinde kinetik katsayıları aynı mertebelerdedir.

4.3.8 Çıkış suyu kalitesi açısından elektrokoagülasyon prosesinin değerlendirilmesi

Florür giderimi amacı ile farklı işletme koşullarında alüminyum elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulamasına tabi tutulmuş içme suyu örneklerinde ölçülen parametrelerin içme suyu standartlarını sağlayıp sağlamadığı konusunda bir değerlendirme yapıldığında sadece bazı işletme koşullarında alüminyum deşarj standartlarının sağlanmadığı bu tez kapsamında verilen eklerden de görülmektedir. bu nedenle arıtma çıkışı elde edilen akımlarda alüminyum konsantrasyonun içme suyu standardının (0,2 mg/L) altına düşürülme ihtiyacı bulunmaktadır. Suda alüminyum çözünürlüğünü belirleyen tek faktörün çözeltide ulaşılan pH değerleri olduğu düşünüldüğünde çıkış akımında pH'sının $Al(OH)_3$ katı fazının çözünürlüğünün minimum olduğu pH değerlerine ayarlama ihtiyacı bulunmaktadır. $Al(OH)_3$ katı fazının çözünürlüğünün minimum olduğu pH 5 ile 6 olarak bilinmektedir. Elektrokoagülasyon uygulaması sonunda hidrojen gazı oluşumu nedeni ile çözeltinin pH'sı alkali pH değerlerine ulaşmaktadır ve bu pH'ın bir asit yardımı ile $Al(OH)_3$ katı fazının çözünürlüğünün minimum olduğu pH değerine düşürülmesi gerekmektedir. Bu uygulama ile Çizelge 4.10'dan da görüldüğü üzere alüminyum konsantrasyonları deşarj standartları altına indirilebilmektedir. Bu durumda elektrokoagülasyon uygulamasının hemen sonunda pH'sının 5,5 veya 6 civarına düşürülmesi ve suda çözünmüş formda olan alüminyumun tamamının katı faz formuna dönüştürülmesini takiben çamur ayırımının yapılması daha anlamlı bir uygulama olarak görülmektedir.

Florür gideriminin amaçlandığı alüminyum elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulamasındaki adımlar E.K. prosesi, pH ayarı ile hidroksit çöktürmesi, katı faz ayırımı (çöktürme veya filtrasyon) ve nötralizasyon olarak sıralanabilmektedir. Bu hususlar dikkate alındığında hem asit hem de baz sarfiyatını minimize etmek üzere elektrokoagülasyon uygulamasının nötr pH'lar civarında başlatılması daha avantajlı bir uygulama olarak görülmektedir.

Çizelge 4.10 : Alüminyum konsantrasyonları (F_o : 4mg/L, Cl_o : 38 mg/L; E.K. koşulları: J :1,05 mA/cm²).

Başlangıç pH'sı	E.K süresi (dk.)	Ulaşılan pH	(Al) _u (mg/L)	Ayarlanan pH	(Al) _D
7,5	20*	8,12	0,24	6,5	0,004
7,5	180*	8,93	1,33	6,5	0,064
9,0	20*	9,11	1,82	5,5	0,0212
9,0	180**	9,40	2,25	5,5	0,875
9,5	15*	9,55	1,19	5,5	0,218
9,5	30**	9,61	2,15	5,5	0,511

*Florür konsntrasyonun 1,5 mg/L'ye düşürüldüğü

** Florürün tamamının giderildiği

5. TARTIŞMA VE YORUM

İnsan ve çevre sağlığı üzerindeki olumsuz etkilerinden dolayı Dünya Sağlık Örgütü (WHO) ve Türk Standartları Enstitüsü (TSE) tarafından içme sularında bulunabilecek maksimum florür konsantrasyonu 1,5 mg/L olarak belirlenmiştir. Florürün doğal ve endüstriyel kaynaklarının fazla oluşu, bazı durumlarda, yüzey ve yeraltı sularında standart değerlerinin aşılmasına yol açmaktadır. Bu nedenle florürün kullanılmadan önce su kaynaklarında arıtımı önem taşımaktadır. Florür arıtımında kullanılan başlıca fiziko kimyasal arıtma yöntemleri kimyasal çöktürme ve adsorpsiyon prosesleridir. Son yıllarda bu iki prosesin birlikte kullanıldığı alüminyum elektrotlar ile yürütülen elektrokoagülasyon uygulamaları florür giderimi için potansiyel bir arıtma yöntemi olarak gündeme gelmektedir. Bu konuda yapılan literatür değerlendirmesinde elektrokoagülasyon prosesi kullanılarak gerçekleştirilen çalışmaların distile su içinde bir florür tuzunun çözülmesiyle hazırlanan numuneler üzerinde yürütüldüğü tespit edilmiştir. Sentetik olarak hazırlanmış bu örnekler kalsiyum, klorür, alkalinite gibi içme suyu bileşenlerini içermemektedir. Bu şekliyle de gerçek koşulları tam olarak yansıtamamaktadır. Dolayısıyla hem su kompozisyonunda bulunan anyon ve katyonların proses verimi üzerine etkilerinin belirlenmesi hem de gerçek içme suyularının kullanılması durumunda alüminyum elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon prosesi için en uygun işletme koşullarının belirlenmesi ihtiyacı söz konusudur. Bu noktadan hareketle, bu çalışma kapsamında florürün içme sularından giderimini gerçekleştirmek amacı ile alüminyum elektrotlar kullanarak elektrokoagülasyon prosesi ile gerçek numuneler üzerindeki arıtılabilirliği incelenmiş, optimum işletme koşulları belirlenmiş ve su kompozisyonunda bulunan anyon ve katyonların florür giderim verimi üzerine etkileri tespit edilmiştir. Deneysel çalışmadan elde edilen sonuçlar aşağıda özetlenmiştir.

Alüminyum elektrotlar kullanılarak gerçekleştirilen elektrokoagülasyon uygulamalarında önemli bir işletme parametresi olan elektrolit konsantrasyonunun proses verimi üzerine etkisi incelendiğinde, başlangıç klorür konsantrasyonunu arttırılması florür gideriminde önemli bir değişikliğe neden olmamıştır. Orijinal elektrolit konsantrasyonunda içme suyu örnekleri elektrokoagülasyon uygulamalarında kullanılması içme suyunun çözünmüş madde muhtevasında bir artış olmaması, gerek klorür gerekse sodyum konsantrasyonunun standartlara göre belirlenen değerlerin altında kalması, işletme maliyetinin artmaması, çamur miktarında artış olmaması ve çamur uzaklaştırma maliyetinin düşük olması avantajlarını içermektedir.

Sabit bir akım yoğunluğunda, numunenin orijinal pH değeri ve elektrolit konsantrasyonunda yürütülen elektrokogülasyon uygulamalarında başlangıç florür konsantrasyonunun prosesi üzerine olan etkisi için bir değerlendirme yapıldığında özellikle ilk 60 dakikalık reaksiyon sürelerinde 2 mg/L, 3 mg/L ve 4 mg/L florür içeren içme suyu örnekleri üzerinde yürütülen deneysel çalışma verileri kullanılarak yapılan kinetik değerlendirme konsantrasyondaki artışın florür giderim hızı üzerinde etkili olmadığını göstermiştir. Buna karşın sabit bir florür konsantrasyonunda, numunenin orijinal pH değeri ve elektrolit konsantrasyonunda yürütülen elektrokogülasyon uygulamalarında, ilk 60 dakikalık reaksiyon süresi sonunda artan akım yoğunluğu ile daha hızlı florür giderimlerinin gerçekleştiği tespit edilmiştir.

Başlangıç pH'sının proses verimi üzerine etkisi incelendiğinde; elektrokoagülasyon uygulamalarının alkali pH değerlerinde başlatılmasının florür giderimini hızlandırıcı yönde rol oynadığı sonucuna varılmaktadır. Alkali başlangıç pH değerlerinde yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında çok daha kısa reaksiyon sürelerinde florürün tamamını giderilmesi, buna paralel olarak üretilen çamur miktarının minimize edilmesi ve enerji sarfiyatının ciddi oranda azalması nötral pH değerinde gerçekleştirilenlere nazaran daha avantajlı bir uygulama olarak görülmektedir. Ancak bu avantajlarının yanı sıra başlangıç pH'sının yükseltilmesinin reaksiyon süresince hidrojen gazı oluşumu nedeni ile çok daha alkali çıkış akımlarının elde edilmesine neden olmaktadır.

Bu husus ise çıkış akımlarında nötralizasyon yapma ihtiyacını gündeme getirecektir. Bununla birlikte gerek nötral gerekse alkali pH larda yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında alüminyum standartının (0,2 mg/L) aşılması durumunda, suda çözünmüş formda kalan alüminyumun $Al(OH)_3$ katı fazı olarak çöktürülmesi için çıkış akımlarında pH düzeltilmesi yapılma ihtiyacı söz konusudur. Bu nedenle çıkış akımlarında pH ayarı kaçınılmaz bir adım olarak görünmektedir. Bununla birlikte başlangıç pH sınırın yükseltilmesi durumunda alkali ilavesi sonucunda sodyum konsantrasyonunda bir artışın söz konusu olduğu da dikkate alınması gereken bir husustur.

İçme sularında florür dışında bulunan anyon ve katyonların elektrokoagülasyon prosesi üzerine olan etkileri incelendiğinde kalsiyum iyonun da florür ile birlikte giderildiği tespit edilmiştir. Kalsiyumun söz konusu uygulama çerçevesinde giderim mekanizması bu katyonun içme suyunda bulunan karbonat anyonu ile birleşerek kalsiyum karbonat oluşturup sudan çökmesi şeklinde izah edilebilmektedir. İçme suyu örneğine bikarbonat ilavesi yapılarak aynı işletme koşullarında yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında kalsiyum miktarında düşüşler meydana gelmiş olması da bu görüşü desteklemektedir.

Bikarbonat ilavesi yapılan içme suyu ve sentetik olarak hazırlanmış örneklerde 180 dakikalık elektrokoagülasyon prosesi süresi en hızlı florür giderimine ulaşılmıştır. Elde edilen bu sonuçlardan hareketle alkalinitenin artışın florür gideriminde iyileştirici bir rol oynadığı sonucuna varılmaktadır.

Sülfat anyonundaki artışın alüminyum elektrodların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulamasında florür giderimi üzerinde belirgin bir etkisinin olmadığı tespit edilmiştir. Bununla birlikte anılan anyondaki artış kalsiyum iyonunun söz konusu uygulama çerçevesinde gideriminde belirgin bir rol oynamıştır. Diğer bir ifadeyle artan sülfat konsantrasyonlarında yürütülen elektrokoagülasyon uygulamalarında daha yüksek kalsiyum giderimleri söz konusu olmuştur.

Florür giderimi amacıyla farklı işletme koşullarında alüminyum elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulamasına tabi tutulmuş içme suyu numunelerinde ölçülen alüminyum konsantrasyonları bazı durumlarda içme suyu standardının üzerine çıkabilmektedir. Suda çözünmüş formda kalan alüminyumun $\text{Al}(\text{OH})_3$ katı fazı olarak çöktürülmesi için çıkış akımlarında pH düzeltilmesi yapılmasıyla bu problemin aşılması mümkündür. Zira çıkış akımında pH'nın 5,5 ile 6,5 arasındaki bir değere ayarlanıp; aşırı alüminyumun katı faz haline dönüştürülmesi ve çöktürme/filtrasyon adımıyla önce uzaklaştırılması ile alüminyum açısından standart değer (0,2 mg/L) sağlanabilmektedir. Bu kapsamda ulaşılan pH değerleri nötralizasyon amacı ile düzeltildiğinde arıtılmış içme suyunun toplam çözünmüş madde ve klorür konsantrasyon miktarlarında önemli değişiklikler olmamakta ve içme suyu standartlarının altında kalmaktadır.

Bu çalışma kapsamında yürütülen deneysel çalışmadan elde edilen veriler ışığında, alüminyum elektrotların kullanıldığı elektrokoagülasyon uygulamasının etkin bir florür giderme yöntemi olduğu söylenebilmektedir.

KAYNAKLAR

- APHA.**, 1998. Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, 19th edition. Washington, D.C.
- Ayoob, S., Gupta, A. K., ve Venugopal, T. Bhat.**, 2008. A Conceptual Overview on Sustainable Technologies for the Defluoridation of Drinking Water, **38**, 401-478.
- Beyhan, M.**, 2003. Atık Çamurla ve Doğal Malzemeler ile Sulardan Florür İyonu Gideriminin Araştırılması, *Doktora Tezi*, Yıldız Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul,
- Cengiz, M.**, 1991. Su Kalitesi, Yüksek Lisans Ders notları. Akdeniz Üniv. Eğirdir S Ürünleri Yüksek Okulu, 148 s., Eğirdir.
- Chen, X., Jinguu, S., Nishimura, S., Oyama, Y., ve Terashima, K.**, 2002 Density and Surface Tension of Molten Calcium Fluoride. *Journal of Crystal Growth*, **240**, 445-453.
- Chen, G.**, 2004. Electrochemical Technologies in Wastewater Treatment, *Separation and Purification Technology*, **38**, 11-41.
- Drouiche, N., Ghaffour, N., Lounici, H., Mameri, N., Maallem, A., ve Mahmoudi, H.**, 2008 Electrochemical Treatment of Chemical Mechanical Polishing Wastewater: Removal of Fluoride –Sludge Characteristic-Operating Cost, *Desalination*, **223**, 134-142
- Emamjomeh, M. M., ve Sivakumar, M.**, 2006. An Empirical Model for Defluoridation by Batch Monopolar Electrocoagulation/Flotation (ECF) Process, *Journal of Hazardous Materials*, **B131**, 118-125.
- Emamjomeh, M. M., ve Sivakumar, M.**, 2009. Fluoride Removal by a Continuous Flow Electrocoagulation Reactor, *Journal of Environmental Management*, **90**, 1:2, 1204-1212.
- Gao, S., Sun, R., Wei, Z., Zhao, H., Li, H., ve Hu, F.**, 2009. Size-Dependent Defluoridation Properties of Synthetic Hydroxyapatite, *Journal of Fluorine Chemistry*, **130**, 550-556.
- Ghosh, D., Medhi, C. R., ve Purkait, M. K.**, 2008. Treatment of Fluoride Containing Drinking Water by Elektrocoagulation Using Monopolar and Bipolar Electrode Connections, *Chemosphere*, **73**, 1393-1400.
- Holt, P. K., Barton, G. W., ve Mitchell, C. A.**, 2005. The Future for Electrocoagulation as a Localised Water Treatment Technology. *Chemosphere*, **59**, 355-367.
- Hu, C. Y., Lo, S. L., ve Kuan, W. H.**, 2003. Effect of Co-Existing Anions on Fluoride Removal in Electrocoagulation (EC) Process Using Aluminum Electrodes, *Water Research*, **37**, 4513-4523.

- Hu, C. Y., Lo, S. L., Kuan, W. H., ve Lee, Y. D.,** 2005a. Removal of Fluoride from Semiconductor Wastewater by Electrocoagulation-Flotation, *Water Research*, **39**, 895–901.
- Hu, C. Y., Lo, S. L., ve Kuan, W. H.,** 2005b. Effects of the Molar Ratio of Hydroxide and Fluoride to Al(III) on Fluoride Removal by Coagulation and Electrocoagulation, *Journal of Colloidal and Interface Science*, **283**, 472–476.
- Hu, C. Y., Lo, S. L., ve Kuan, W. H.,** 2007. Simulation The Kinetics of Fluoride Removal by Electrocoagulation Process Using Aluminum Electrodes, *Journal of Hazardous Materials*, **145**, 180-185.
- Huang, J. C., ve Liu, J. C.,** 1999. Precipitate Flotation of Fluoride-Containing Wastewater from a Semiconductor Manufacture, *Water Research*, **33**, No.16, 3403-3412.
- İslam, M., ve Patel, R.,** 2007. Evaluation of Removal Efficiency of Fluoride Removal from Aqueous Solution Using Quick Lime, *Journal of Hazardous Materials*, **143**, 303-310.
- Kabdaşlı, I., Arslan, T., Hancı, T. Ö., ve Alaton, İ. A.,** 2009. Complexig Agent and Heavy Metla Removals from Metal Plating Effluent by Electrocoagulation with Stainless Stell Electrodes, *Journal of Hazardous Materials*, **165**, 838-845.
- Kim, T. H., Park, C., Shin, E. B., ve Kim S.,** 2002. Decolorization of Disperse and Reactive Dyes by Continuous Electrocoagulation Process, *Desalination*, **150**, 165-175.
- Kobyas, M.,** 2003 Flor Giderme, ders notu.
- Ku, Y., ve Chiou H. M.,** 2002. The Adsorption of Fluoride Ion from Aqueous Solution by Activated Alumina, *Water, Air and Soil Pollution*, **133**, 349–360.
- Mahramanlioğlu, M., Kızılcıklı, I., ve Bicer, I.,** 2002. Adsorption of Fluoride From Aqueous Solution by Acid Treated Spent Bleaching Earth*. *Journal of Fluoride Chemistry*, **115**, 41-47.
- MAMERI, N., YEDDOU, A.R., LOUNICI, H., BELHOCINE, D., GRIB, H., BARIOU B.,** 1998. Defluoridation of Septentrional Sahara Water of North Africa by Electrocoagulation Process Using Bipolar Aluminium Electrodes, *Water Research*, 32(5): 1604-1612.
- Mameri, N., Lounici, H., Belhocine, D., Grib H., Piron, D. L., ve Yahiat, Y.,** 2001. Defluoridation of Sahara Water by Small Plant Electrtocoagulation Using Bipolar Aluminium Electrodes, *Separation and Purification Technology*, **24**, 113-119.
- Meenakshi., ve Maheshwari, R. C.,** 2006. Fluoride in Drinking Water and Its Removal, *Journal of Hazardous Materials*, **137**, Issue 1, 456-463.
- Mollah, Y. M., Schennach, R., Parga, J. R., ve Cocke, D. L.,** 2001. Electrocoagulation (EC)-Science and Applications, *Journal of Hazardous Materials*, **B84**, 29–41.
- Mollah, Y., Morkovsky, P., ve Gomes, A.G.,** 2004. Fundamentals, Present and Future Perspectives of Electrocoagulation, *Journal of Hazardous Materials*, **B114**, 199–210.
- Oruc N.,** 2008, Occurance and problems of high flouride waters in Turkey: an overview, *Environmental Geochemical Health* 30:315-323.
- Patterson, J.W.,** 1985. Industrial Wastewater Treatment Technology, *Butterworth*

Publishers, USA.

- Pickards, P. A., ve Reynold, T. D.,** 1996. Unit Operations and Processes in Environmental Engineering”, Boston, Second Edition.
- Raichur, A.M., Jyoti Basu, M.,** 2001, “Adsorption of fluoride onto mixed rare earth oxides”, *Separation and Purification Technology*, Vol: 24, pp. 121-127.
- Srimurali, M., Pragathi, A., ve Karthikeyan, J.,** 1998. A Study on Removal of Fluorides From Drinking Water by Adsorption onto Low-Cost Materials, *Environmental Pollution*, **99**, 285-289.
- Sujana, M. G., ve Thakur, R. S.,** 1998. Removal of Fluoride From Aqueous Solution by Using Alum Sludge, *Journal of Colloid and Interface Science*, **206**, 94-101.
- Sujana, M. G., Soma, G., Vasumathi, N., ve Anand, S.,** 2009. Studies on Fluoride Adsorption Capacities of Amorphous Fe/Al Mixed Hydroxides from Aqueous Solutions, *Journal of Fluorine Chemistry*, **130**, 749-754.
- Tang, Y., Guan, X., Wang, J., Gao, N., McPhail, M. R., ve Chusuei, C. C.,** 2009. Fluoride Adsorption onto Granular Ferric Hydroxide: Effects of Ionic Strength, pH, Surface Loading, and Major Co-Existing Anions, *Journal of Hazardous Materials*, **171**, 774-779.
- TSE,** Türk Standartları Enstitüsü, 2008.
- Vardar, B.,** 2006. Tekstil Endüstrisi Reaktif Boya Banyolarının Elektrokimyasal Yöntemler ile Arıtımı, *Yüksek Lisans Tezi*, İstanbul Teknik Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.
- Veressinina, Y., Trapido, M., Ahelik, V., ve Munter, R.,** 2001. Fluoride in Drinking Water: The Problem and Its Possible Solutions, *Proc. Estonian Acad. Sci. Chem*, **50**, 2, 81–88.
- Wang, Y., Reardon, E.J.,** 2001. Activation and Regeneration of a Soil Sorbent for Defluoridation of Drinking Water. *Applied Geochemistry*, 16, 53- 59.
- Yang, C., ve Dluhy, R.,** 2002. Electrochemical Generation of Aluminum Sorbent for Fluoride Adsorption, *Journal of Hazardous Materials*, **B94**, 239-252.
- Zhang, G., Gao, Y., Zhang, Y., ve Gu, Ping.,** 2005. Removal of Fluoride from Drinking Water by a Membrane Coagulation Reactor (MCR), *Desalination*, **177**, 143-155.
- Zhang, J., Xie, S., ve Ho, Y.,** 2009. Removal of Fluorides Ions From Aqueous Solution Using Modified Attapulgit as Adsorbent, *Journal of Hazardous Materials*, **165**, 218-222.
- Zuo, Q., Chen, X., Li, W., ve Chen, G.,** 2008. Combined Electrocoagulation and Electroflotation for Removal of Fluoride From Drinking Water, *Journal of Hazardous Materials*, **159**, Issue 2-3, 452-457.

EKLER

EK A

Çizelge A. 1: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca_o: 36 mg/L, Cl_o: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH_o: 7,5; oluşan çamur: 240 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,5	4,05	37		3,9	0
10	7,75	2,72			3,2	0,01
20	7,67	2,29			3,1	0,02
30	7,76	2,2	36		3	0,03
40	7,83	2,01			3	0,03
50	7,85	1,9			3	0,04
60	7,83	1,6			3	0,04
90	8,17	1,06		0,7972	3,1	0,05
120	8,24	0,87			3,2	0,07
150	8,31	0,71	34		3,3	0,08
180	8,32	0,65	34	1,8367	3,3	0,1

Çizelge A. 2 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları

(Ca_o: 35 mg/L, Cl_o: 135 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH_o: 7,4; oluşan çamur: 243 mg AKM/L)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,4	4	37		3,1	0
10	7,59	3,1			2,6	0,02
20	7,57	2,5			2,5	0,02
30	7,72	2,12	36		2,4	0,02
40	7,97	1,84			2,4	0,03
50	8,07	1,56		0,3161	2,4	0,03
60	8,36	1,47			2,4	0,03
90	8,46	1,3			2,4	0,05
120	8,54	1,02			2,4	0,06
150	8,56	0,89	34		2,4	0,07
180	8,65	0,65	32	0,3464	2,4	0,07

Çizelge A. 3 4 mg/L florür ilaveli sentetik örnek üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları

(Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 36 mg/L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7; oluşan çamur: 300 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7	4,1	36		5	0
10	7,3	2,2	35,6		4,7	0,01
20	7,7	1,8	35,6		4,3	0,02
30	8,08	1,45	35,3	0,0668	4,2	0,03
40	8,23	1,06	35,3		4,1	0,03
50	8,4	0,9	34,4		4,1	0,04
60	8,49	0,77	34,4		4,1	0,04
90	8,58	0,55	34		4,1	0,06
120	8,74	0,4	33,2		4,1	0,07
150	8,8	0,26	33,2		4,1	0,09
180	8,83	0,18	33	0,1783	4,1	0,10

Çizelge A. 4 4 mg/L florür ilaveli sentetik örnek üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 96 mg/L,, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7,1; oluşan çamur: 290 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,15	4,05	36,4		4	0
10	7,45	2,89	36		3,2	0,01
20	7,78	2,21	36		3,1	0,02
30	8,01	1,96	35,6		3	0,02
40	8,13	1,5	35,2	0,0736	3	0,03
50	8,41	1,06	35,2		3	0,03
60	8,57	0,85	34,88		3	0,03
90	8,64	0,63	34,4		3	0,04
120	8,67	0,31	34,4		3,1	0,06
150	8,85	0,25	34		3,1	0,07
180	8,87	0,19	33,2	0,3835	3,1	0,08

Çizelge A. 5: 4 mg/L florür ilaveli sentetik örnek üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca_o: 36 mg/L, Cl_o: 36 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH_o: 7; oluşan çamur: 460 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7	4,1	36		9	0
10	8,2	2	34,4		8,8	0,07
20	8,42	1,3	34,4	0,5523	8,6	0,10
30	8,7	0,87	34		8,6	0,13
40	8,84	0,53	33,3		8,6	0,16
50	8,95	0,4	32,6		8,7	0,20
60	8,99	0,3	32		8,8	0,23
90	9,07	0,21	29,3		9,2	0,35
120	9,13	0,12	26,6		9,5	0,48
150	9,17	0,05	24		9,8	0,60
180	9,19	0	21,3	0,4553	10	0,73

Çizelge A. 6: 4 mg/L florür ilaveli sentetik örnek üzerinde farklı NaCl konsantrasyonlarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 96 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7,15; oluşan çamur: 650 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,15	4,05	36,4		8,1	0
10	7,75	2,51	35,2		7,7	0,08
20	8,3	1,68	34,4		7,6	0,11
30	8,46	1,22	33,6	0,6959	7,6	0,13
40	8,54	0,9	32		7,6	0,16
50	8,57	0,59	28,8		7,5	0,18
60	8,62	0,35	27,2		7,7	0,21
90	8,79	0,13	25,6		7,8	0,30
120	9,15	0,09	24		7,9	0,40
150	9,18	0,05	22		8,1	0,51
180	9,2	0,04	19,6	0,3379	8,1	0,61

EK B

Çizelge B. 1: 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 37 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7,4; oluşan çamur: 205 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,4	2,05	36		7,3	0
10	7,47	1,75			6,6	0,12
20	7,53	1,5			6,1	0,12
30	7,92	1,35		0,5192	5,7	0,14
40	8,11	1,23	35		5,5	0,15
50	8,5	1,18			5,3	0,17
60	8,55	1,07			5,2	0,18
90	8,47	0,73			5,1	0,19
120	8,65	0,63	32,8		5,2	0,24
150	8,71	0,45			5,3	0,28
180	8,77	0,36	32	0,5045	5,3	0,31

Çizelge B. 2 : 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca_o: 36 mg/L, Cl_o: 37 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,70 mA/cm², pH_o: 7,5; oluşan çamur: 387 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,51	2,1	36		14,4	0
10	7,72	1,7			11,7	0,31
20	7,95	1,46		0,6332	10,1	0,35
30	8,02	1,27	35		9,8	0,39
40	8,15	0,99			9,6	0,38
50	8,3	0,82			9,6	0,42
60	8,45	0,68			9,8	0,46
90	8,49	0,6	30,4		10,4	0,69
120	8,57	0,4			10,8	0,85
150	8,62	0,32			11,2	1,05
180	8,74	0,21	25,6	0,1408	11,4	1,21

Çizelge B. 3: 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7,5; oluşan çamur: 558 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,5	2	36	0,3996	18,4	0
10	7,96	1,2	35		17,1	0,34
20	8,31	1,12			16,3	0,61
30	8,35	0,76			15,6	0,63
40	8,42	0,65	28,8		15,7	0,77
50	8,43	0,41			15,8	0,82
60	8,45	0,3			15,9	0,94
90	8,5	0,26			16,5	1,42
120	8,51	0,24			17,5	1,99
150	8,52	0,14			18,4	2,47
180	8,69	0,11	20	0,2151	19,1	3,03

Çizelge B. 4: 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca_o: 36 mg/L, Cl_o: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,40 mA/cm², pH_o: 7,5; oluşan çamur: 773 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,4	2,1	35		13,5	0
10	7,42	1,5		0,1023	13,1	0,47
20	7,69	1,02			12,2	0,50
30	8,01	0,84			11,9	0,63
40	8,24	0,54	30,4		12,1	0,68
50	8,35	0,48			12,4	0,85
60	8,43	0,21			12,8	0,90
90	8,51	0,17			14	1,45
120	8,6	0,12			15,2	2,05
150	8,63	0,1			16,6	2,77
180	8,75	0,1	18	0,6475	17,9	3,58

Çizelge B. 5: : 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca_o: 36 mg/L, Cl_o: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 2,10 mA/cm², pH_o: 7,6; oluşan çamur: 860 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,6	2,1	35	0,9451	19	0
10	8,5	1,11	30		19,1	0,62
20	8,79	0,41	27		20	0,78
30	8,88	0,27	24		21	1,15
40	8,92	0,19	22		22,1	1,53
50	8,97	0,12	20	1,4438	22,9	1,92
60	9,01	0,02	18		24,5	2,36
90	9,12	0	15		27,2	3,89
120	9,25	0	12		29,3	5,58
150	9,26	0	11		31,4	7,48
180	9,3	0	9		33,5	9,57

EK C

Çizelge C. 1:: 3 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca_o: 37 mg/L, Cl_o: 37 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH_o: 7,4; oluşan çamur: 200 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,65	3	37		4,4	0
10	7,6	2,38			4,8	0,04
20	7,69	2,13			4,4	0,06
30	7,71	1,92	36	0,5192	4,1	0,06
40	7,7	1,71			3,8	0,06
50	7,7	1,4			3,6	0,06
60	7,75	1,31			3,5	0,07
90	7,76	1,04	35,6		3,3	0,08
120	7,83	0,84			3,1	0,10
150	7,91	0,71			3,3	0,12
180	8,02	0,6	33,6	0,5045	3,3	0,14

Çizelge C. 2: 3 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca_o: 37 mg/L, Cl_o: 37 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,70 mA/cm², pH_o: 7,6; oluşan çamur: 340 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,6	3,01	37		8	0
10	7,76	2,5			6,3	0,13
20	7,82	2,21			5,9	0,16
30	7,89	1,92	36		5,8	0,18
40	7,95	1,71			5,7	0,19
50	7,99	1,49		1,0948	5,7	0,21
60	8,12	1,05	32,8		5,8	0,20
90	8,33	0,6			5,9	0,24
120	8,69	0,4			6,3	0,32
150	8,72	0,32			6,6	0,41
180	8,73	0,28	25,6	0,3719	7	0,51

Çizelge C. 3: 3 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7,6; oluşan çamur: 550 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,65	3,1	36		13	0
10	7,62	2,07			10	0,16
20	8,12	1,82	35,2		9,5	0,24
30	8,3	1,3		0,7365	9,4	0,26
40	8,45	1,18			9,5	0,33
50	8,5	0,85			9,7	0,36
60	8,58	0,69			9,9	0,41
90	8,6	0,32			10,7	0,58
120	8,79	0,2	28		11,6	0,80
150	8,87	0,14			12,5	1,06
180	8,93	0,1	24	0,1552	13,2	1,32

Çizelge C. 4: 3 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca_o: 36 mg/L, Cl_o: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,40 mA/cm², pH_o: 7,6; oluşan çamur: 800 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,6	3,1	36		13	0
10	8	2,19	36		12,5	0,29
20	8,21	1,11	34	0,9639	12,6	0,28
30	8,42	0,52	32		12,9	0,33
40	8,63	0,31	32		13	0,41
50	8,73	0,21	30		13,3	0,51
60	8,77	0,18	30		13,6	0,62
90	8,84	0,11	28		14,4	0,96
120	8,85	0,07	26		15,6	1,37
150	8,9	0,05	24		16,2	1,77
180	8,92	0,01	20	0,6024	16,5	2,14

EK D

Çizelge D. 1: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları

(Ca_o: 37 mg/L, Cl_o: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH_o: 7,5; oluşan çamur: 240 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,5	4,05	37		3,9	0
10	7,75	2,72			3,2	0,01
20	7,67	2,29			3,1	0,02
30	7,76	2,2	36		3	0,03
40	7,83	2,01			3	0,03
50	7,85	1,9			3	0,04
60	7,83	1,6			3	0,04
90	8,17	1,06		0,7972	3,1	0,05
120	8,24	0,87			3,2	0,07
150	8,31	0,71	34		3,3	0,08
180	8,32	0,65	34	1,8367	3,3	0,10

Çizelge D. 2: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca_o: 37 mg/L, Cl_o: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,70 mA/cm², pH_o: 7,6; oluşan çamur: 402 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,6	4	37		5,9	0
10	7,9	2,75			5,3	0,05
20	8	2,57			4,9	0,08
30	8,19	2,28	36		4,8	0,09
40	8,26	1,65			4,8	0,09
50	8,35	1,6	33,6		4,9	0,11
60	8,43	1,16		0,1412	4,9	0,12
90	8,55	0,92			5	0,16
120	8,6	0,71	31,6		5,2	0,21
150	8,65	0,58			5,5	0,27
180	8,71	0,5	30	0,2563	5,7	0,33

Çizelge D. 3: 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları
(Ca₀: 37 mg/L, Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7,6; oluşan çamur: 570 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,6	4	37		9	0
10	7,62	2,8		1,3349	9	0,12
20	8,12	2,1	36,8		7,9	0,14
30	8,30	1,7	36		7,3	0,16
40	8,45	1,28			7,2	0,17
50	8,5	1,15			7,3	0,21
60	8,58	0,81			7,5	0,24
90	8,60	0,76	30,4		8,2	0,38
120	8,79	0,26			8,8	0,47
150	8,87	0,21			9,8	0,65
180	8,93	0,2	20,8	0,2421	10,4	0,82

Çizelge D. 4 : 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde farklı akım yoğunluklarında yürütülen E.K. uygulamaları

(Ca_o: 37 mg/L, Cl_o: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,40 mA/cm², pH_o: 7,4; oluşan çamur: 831 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,40	4,2	37		13,5	0
10	7,42	2,62			13,1	0,18
20	7,69	1,55	36		12,2	0,20
30	8,01	1,30			11,9	0,27
40	8,24	0,95			12,1	0,33
50	8,35	0,75			12,4	0,40
60	8,43	0,61	32,8		12,8	0,48
90	8,51	0,3			14,0	0,72
120	8,60	0,21			15,2	1,02
150	8,63	0,17			16,6	1,37
180	8,75	0,16	19,2	0,2144	17,9	1,77

E K E

Çizelge E. 1: Başlangıç pHo'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 36 mg/L, Clo: 34 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO3 /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm2, pHo: 7,6; oluşan çamur: 570 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,65	4	37		9	0
10	7,62	2,8		1,3449	9	0,12
20	8,12	2,1	36,8		7,9	0,14
30	8,3	1,7	36		7,3	0,16
40	8,45	1,28			7,2	0,17
50	8,5	1,15			7,3	0,21
60	8,58	0,81			7,5	0,24
90	8,6	0,76	30,4		8,2	0,38
120	8,79	0,26			8,8	0,47
150	8,87	0,21			9,8	0,65
180	8,93	0,2	20,8	0,2421	10,4	0,82

Çizelge E. 2: Başlangıç pH₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 34 mg/L, T. Alkalinite: 86 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 8; oluşan çamur: 575 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	8	4	36		9	0
10	8,67	2,75	35		9,7	0,12
20	8,86	2,03	32		10,3	0,17
30	8,94	1,5	31		10,9	0,22
40	9	1,07	26		11,3	0,25
50	9,02	1	25		11,4	0,32
60	9,03	0,8	22		11,7	0,37
90	9,04	0,72	21		12	0,55
120	9,08	0,23	20		13	0,69
150	9,12	0,2	19		13,2	0,87
180	9,17	0,19	18	1,4317	14,6	1,15

Çizelge E. 3: Başlangıç pHo'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 36 mg/L, Clo: 36 mg/L, T. Alkalinite: 93 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pHo: 8,5; oluşan çamur: 575 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	8,5	4	36	2,0266	9,5	0
10	8,65	2,6	35		10	0,11
20	8,83	1,5	32		10,3	0,14
30	9	0,97	31		10,5	0,17
40	9,04	0,89	25		11	0,23
50	9,11	0,63	23	2,6154	11,3	0,28
60	9,15	0,46	20		11,5	0,32
90	9,19	0,3	20		12,5	0,51
120	9,23	0,15	20		13	0,68
150	9,25	0,08	16		13,6	0,87
180	8,5	4	36		9,5	0

Çizelge E. 4: Başlangıç pH₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 36 mg/L, T. Alkalinite: 100 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 9; oluşan çamur: 590 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	9	4	36		9,7	0
10	9,07	2,55	33	1,8209	11	0,12
20	9,11	1,12	30		11,4	0,13
30	9,12	0,9	30		11,5	0,19
40	9,13	0,57	24		11,6	0,22
50	9,17	0,3	24	2,5823	12	0,27
60	9,21	0,1	23		12,3	0,32
90	9,27	0	21		12,9	0,48
120	9,28	0	20		13,7	0,69
150	9,35	0	17		14,1	0,88
180	9,4	0	17	2,2536	14,9	1,12

Çizelge E. 5: Başlangıç pH₀’sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 36 mg/L, T. Alkalinite: 100 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 9; oluşan çamur: 200 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	9	4,1	36		10	0
10	9,09	2,6	33		12	0,13
20	9,12	1,18	31	1,2768	12,2	0,14
30	9,13	0,93	29		12,3	0,19
40	9,15	0,6	24		12,6	0,24
45	9,16	0,49	23		12,7	0,26
50	9,16	0,32	22		12,8	0,28
55	9,17	0,24	21		13	0,31
60	9,17	0,18	20		13,2	0,34
65	9,2	0,07	20		13,3	0,36
70	9,22	0	19	1,2722	13,4	0,38

Çizelge E. 6 : Başlangıç pHo'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 36 mg/L, Clo: 36 mg/L, T. Alkalinite: 105 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J:1,05 mA/cm², pHo: 9,5;oluşan çamur:590 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	9,5	4	37		15	0
10	9,55	2,05	32		15,2	0,12
20	9,57	0,6	31	1,2742	15,5	0,15
30	9,58	0	30	1,8363	15,8	0,20
40	9,59	0	27		16	0,26
50	9,61	0	23		16,5	0,34
60	9,62	0	21		17	0,43
90	9,65	0	20		17,3	0,65
120	9,66	0	19		17,7	0,89
150	9,8	0	17		18	1,13
180	10	0	14	3,4596	19	1,43

Çizelge E. 7: Başlangıç pH₀’sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 36 mg/L, T. Alkalinite: 105 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J:1,05 mA/cm², pH₀: 9,5;oluşan çamur:61 mg AKM/ L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	9,5	4	36		16	0
10	9,54	2,08	34	1,1945	16,2	0,14
15	9,55	0,62	32	0,9639	16,3	0,12
20	9,58	0,3	29		16,3	0,15
25	9,61	0,1	28		16,4	0,17
26	9,61	0,05	28		16,4	0,18
27	9,61	0,01	28		16,4	0,18
28	9,61	0	28		16,4	0,19
29	9,61	0	27		16,5	0,20
30	9,61	0	27	2,1517	16,6	0,21

EK F

Çizelge F. 1 : Başlangıç pHo'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 37 mg/L, Clo: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO3 /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm2, pHo: 7,5; oluşan çamur:240 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,5	4,05	37		3,9	0
10	7,75	2,72			3,2	0,01
20	7,67	2,29			3,1	0,02
30	7,76	2,2	36		3	0,03
40	7,83	2,01			3	0,03
50	7,85	1,9			3	0,04
60	7,83	1,6			3	0,04
90	8,17	1,06		0,7972	3,1	0,05
120	8,24	0,87			3,2	0,07
150	8,31	0,71	34		3,3	0,08
180	8,32	0,65	34	1,8367	3,3	0,10

Çizelge F. 2: Başlangıç pH₀'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 37 mg/L, Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite:100 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 9; oluşan çamur:240 mg AKM/ L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	9	4	36		6,2	0
10	9,01	2,9	36		6	0,03
20	9,01	2,5	36		5,8	0,04
30	9,02	2,1	35		5,5	0,05
40	9,07	1,6	35		5,3	0,05
50	9,1	1,2	34	0,9755	5,1	0,05
60	9,11	1,07	34		5	0,06
90	9,11	0,95	34		4,8	0,08
120	9,15	0,51	34		4,7	0,09
150	9,16	0,28	33		4,8	0,11
180	9,17	0,18	33	2,2509	4,9	0,13

Çizelge F. 3: Başlangıç pH₀'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 37 mg/L, Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite:76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,70 mA/cm², pH₀: 7,6; oluşan çamur:402 mg AKM/ L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,6	4	37		5,9	0
10	7,9	2,75			5,3	0,05
20	8	2,57			4,9	0,08
30	8,19	2,28	36		4,8	0,09
40	8,26	1,65			4,8	0,09
50	8,35	1,6	33,6		4,9	0,11
60	8,43	1,16		0,1412	4,9	0,12
90	8,55	0,92			5	0,16
120	8,6	0,71	31,6		5,2	0,21
150	8,65	0,58			5,5	0,27
180	8,71	0,5	30	0,2563	5,7	0,33

Çizelge F. 4: Başlangıç pH₀'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36mg/L, Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite:100 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,70 mA/cm², pH₀: 9; oluşan çamur:450 mg AKM/ L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	9	4	36		7,6	0
10	9,07	2,35	36		7,2	0,05
20	9,1	1,85	35		7,3	0,07
30	9,12	1,4	35	1,6706	7,7	0,10
40	9,15	1,2	34		8	0,13
50	9,19	0,97	33,6		8,3	0,15
60	9,19	0,5	33		8,6	0,16
90	9,21	0,25	32		9,3	0,25
120	9,23	0,16	31,6		10	0,35
150	9,25	0,09	31		10,7	0,46
180	9,27	0	30	0,8748	11,2	0,56

Çizelge F. 5: Başlangıç pH₀'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 37 mg/L, Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,40 mA/cm², pH₀: 7,4; oluşan çamur:831 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,40	4,2	37		13,5	0
10	7,42	2,62			13,1	0,18
20	7,69	1,55	36		12,2	0,20
30	8,01	1,30			11,9	0,27
40	8,24	0,95			12,1	0,33
50	8,35	0,75			12,4	0,40
60	8,43	0,61	32,8		12,8	0,48
90	8,51	0,3			14,0	0,72
120	8,60	0,21			15,2	1,02
150	8,63	0,17			16,6	1,37
180	8,75	0,16	19,2	0,2144	17,9	1,77

Çizelge F. 6: Başlangıç pHo'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 37 mg/L, Clo: 35 mg/L, T. Alkalinite: 100 mg CaCO3 /L E.K. koşulları J: 1,40 mA/cm2, pHo: 9; oluşan çamur:850 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	9	4	36		18	0
10	9,1	2,1	36		18,7	0,21
20	9,14	1,3	34	0,7901	18,7	0,30
30	9,15	0,6	32		18,6	0,36
40	9,18	0,23	31		18,5	0,43
50	9,21	0,18	30		18,5	0,54
60	9,25	0	30		18,5	0,62
90	9,29	0	27	2,115	20	1,00
120	9,34	0	25		20,7	1,38
150	9,47	0	21		21,2	1,77
180	9,6	0	16	2,7351	22,7	2,27

EK G

Çizelge G. 1 : Başlangıç pHo'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 37 mg/L, Clo: 35 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pHo: 7; oluşan çamur: 650 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7	4,1	36		9	0
10	8,2	2	34,4		8,8	0,07
20	8,42	1,3	34,4	0,5523	8,6	0,10
30	8,7	0,87	34		8,6	0,13
40	8,84	0,53	33,3		8,6	0,16
50	8,95	0,4	32,6		8,7	0,20
60	8,99	0,3	32		8,8	0,23
90	9,07	0,21	29,3		9,2	0,35
120	9,13	0,12	26,6		9,5	0,48
150	9,17	0,05	24		9,8	0,60
180	9,19	0	21,3	0,045	10	0,73

Çizelge G. 2 : Başlangıç pHo'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cao: 36 mg/L, Clo: 35 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pHo: 8; oluşan çamur: 655 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	8	4	36		12	0
10	8,61	1,6	33		11	0,07
20	8,89	1,02	32	0,2942	10,9	0,12
30	8,98	0,95	31		10,8	0,18
40	9,03	0,5	29		10,8	0,20
50	9,05	0,35	28		11,2	0,25
60	9,12	0,2	24		11,3	0,30
90	9,15	0,15	23		14	0,55
120	9,2	0,1	21		14,3	0,73
150	9,25	0,07	15		14,5	0,92
180	9,28	0,05	13	1,15	15	1,14

Çizelge G. 3 : Başlangıç pH₀ 'sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 36 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 8,5; oluşan çamur: 680 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	8,5	4	36	0,5751	11	0
10	8,74	1,5	30		12	0,08
20	8,8	0,96	29		12,5	0,14
30	8,86	0,6	27		12,9	0,19
40	8,93	0,52	26		13	0,25
50	8,95	0,31	25		13,1	0,29
60	8,98	0,15	24		13,4	0,35
90	9,05	0,1	20		13,5	0,52
120	9,17	0,05	18		13,6	0,69
150	9,24	0	16		14	0,88
180	9,27	0	12		14,6	1,10

Çizelge G. 4 : Başlangıç pH₀’sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 35 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 9; oluşan çamur: 680 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	9	4	36		12	0
10	9,01	1,21	31	0,96	11,5	0,07
20	9,07	0,35	30		11,2	0,10
30	9,08	0,21	29		11,2	0,15
40	9,15	0	28	2,24	11,2	0,18
50	9,17	0	28		11,2	0,23
60	9,2	0	25		11,2	0,28
90	9,29	0	24		11,9	0,45
120	9,33	0	22		13	0,65
150	9,45	0	18		13	0,81
180	9,5	0	14		13,2	0,99

Çizelge G. 5 : Başlangıç pH₀’sının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 35 mg/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 9; oluşan çamur: 680 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	9	4	36		13	0
10	9,05	1,23	33	0,96	13,2	0,08
20	9,08	0,37	31		13,3	0,12
30	9,1	0,23	29		13,5	0,18
34	9,1	0,15	25	2,24	13,6	0,20
36	9,11	0,09	24		13,6	0,21
38	9,12	0,03	23		13,6	0,22
40	9,13	0	23		13,7	0,23

E K H

Çizelge H. 1 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 37 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7,4; oluşan çamur: 205 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,4	2,05	36		7,3	0
10	7,47	1,75			6,6	0,12
20	7,53	1,5			6,1	0,12
30	7,92	1,35		0,5192	5,7	0,14
40	8,11	1,23	35		5,5	0,15
50	8,5	1,18			5,3	0,17
60	8,55	1,07			5,2	0,18
90	8,47	0,73			5,1	0,19
120	8,65	0,63	32,8		5,2	0,24
150	8,71	0,45			5,3	0,28
180	8,77	0,36	32	0,5045	5,3	0,31

Çizelge H. 2 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl₀: 35 mg/L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7; oluşan çamur: 220 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,9	2	0,8097	5,9	0
10	8,33	1,52		5,9	0,07
20	8,52	1,2		5,9	0,08
30	8,65	0,71		6	0,08
40	8,77	0,65		6,1	0,10
50	8,85	0,13	1,0337	6,2	0,09
60	8,99	0,02		6,3	0,11
90	9,07	0		6,5	0,16
120	9,12	0		6,7	0,22
150	9,15	0		6,8	0,28
180	9,24	0		7	0,35

Çizelge H. 3 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃/L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7,9; oluşan çamur: 260 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7	2		8,4	0
10	8	1,67	0,2031	7,6	0,12
20	8,28	1,43		7,5	0,14
30	8,46	1,01		7,5	0,13
40	8,61	0,75		7,6	0,13
50	8,7	0,34		7,6	0,13
60	8,76	0,18	0,557	7,6	0,14
90	8,82	0,05		7,8	0,20
120	8,87	0		8	0,27
150	8,9	0		8,2	0,34
180	8,95	0		8,3	0,42

Çizelge H. 4 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 37 mg/L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7; oluşan çamur: 250 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,14	2	36	0,118	4	0
10	7,8	1,4	34,6		3,6	0,03
20	8,01	1	34,6		3,5	0,04
30	8,24	0,86	34,6		3,5	0,05
40	8,43	0,56	34,6		3,5	0,05
50	8,57	0,27	34	0,2354	3,5	0,06
60	8,76	0,13	34		3,5	0,06
90	8,84	0,02	34		3,5	0,09
120	8,92	0	34		3,6	0,12
150	8,97	0	34		3,6	0,15
180	9,01	0	32		3,6	0,18

Çizelge H. 5 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca_o: 36 mg/L, Cl_o: 37 mg/L, T. Alkalinite: 76 mgCaCO₃/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH_o: 7,5; oluşan çamur: 558 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,5	2	36		18,4	0
10	7,96	1,2	35	1,4048	17,1	0,34
20	8,31	1,12	-		16,3	0,61
30	8,35	0,76	-		15,6	0,63
40	8,42	0,65	28,8		15,7	0,77
50	8,43	0,41	-		15,8	0,82
60	8,45	0,3	-		15,9	0,94
90	8,5	0,26	-	0,9977	16,5	1,42
120	8,51	0,24	-		17,5	1,99
150	8,52	0,14	-		18,4	2,47
180	8,69	0,11	20		19,1	3,03

Çizelge H. 6: Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl_0 : 35 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7; oluşan çamur: 470 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7	2	1,4048	20	0
10	8,2	1,1		19,4	0,34
20	8,51	0,85		19,5	0,56
30	8,59	0,54		19,6	0,67
40	8,63	0,32		19,6	0,77
50	8,68	0,24	0,9777	19,6	0,92
60	8,76	0,17		19,7	1,08
90	8,79	0		19,8	1,49
120	8,85	0		19,8	1,98
150	8,87	0		19,8	2,48
180	8,9	0		19,9	2,99

Çizelge H. 7 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7,9; oluşan çamur: 510 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,9	2	0,0568	15	0
10	8,6	1,08		14,7	0,26
20	8,76	0,57		14,8	0,34
30	8,81	0,27		15,1	0,44
40	8,9	0,13	0,0943	15,2	0,54
50	9,03	0		15,4	0,64
60	9,14	0		15,9	0,80
90	9,18	0		17	1,28
120	9,23	0	0,0943	17,5	1,75
150	9,28	0		17,9	2,24
180	9,3	0		18,4	2,76

Çizelge H. 8 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 2 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 37 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7; oluşan çamur:530 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,14	2	36	0,2359	8,7	0
10	8,32	1,02	34,6		8,3	0,14
20	8,66	0,75	34		8,1	0,21
30	8,75	0,53	34		8,2	0,28
40	8,8	0,21	32		8,3	0,31
50	8,85	0,12	32	0,6133	8,4	0,37
60	8,89	0,05	30,6		8,5	0,44
90	8,95	0	30		8,8	0,66
120	8,99	0	28		9	0,90
150	9,01	0	26,6		9,2	1,15
180	9,02	0	24		9,3	1,40

Çizelge H. 9 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde E.K. uygulamalar (Ca_o:37 mg/L, Cl_o: 35 mg/L, T.Alkalinite:76 mg CaCO₃/L E.K. koşullarıJ: 0,35 mA/cm²,pH_o: 7,5; oluşan çamur:240 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,5	4,05	37		3,9	0
10	7,75	2,72			3,2	0,01
20	7,67	2,29			3,1	0,02
30	7,76	2,2	36		3	0,03
40	7,83	2,01			3	0,03
50	7,85	1,9			3	0,04
60	7,83	1,6			3	0,04
90	8,17	1,06		0,7972	3,1	0,05
120	8,24	0,87			3,2	0,07
150	8,31	0,71	34		3,3	0,08
180	8,32	0,65	34	1,8367	3,3	0,10

Çizelge H. 10 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl_2 : 35 mg/L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7; oluşan çamur: 280 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,12	4,1	0,2051	8,3	0
10	7,59	2,8		6,6	0,03
20	8,27	2,17		6,3	0,04
30	8,35	1,53		6,2	0,04
40	8,54	1,45		6,1	0,05
50	8,62	1,05		6,1	0,06
60	8,65	0,88		6,2	0,06
90	8,71	0,51		6,3	0,09
120	8,8	0,28		6,5	0,11
150	8,87	0,2		6,7	0,14
180	8,92	0,17	0,5537	6,9	0,18

Çizelge H. 11 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃/L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7,9; oluşan çamur: 350 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,85	4,01	1,221	6,6	0
10	8,35	2,45		6,2	0,02
20	8,58	2,02		6	0,03
30	8,68	1,59		5,9	0,04
40	8,78	1,2		5,9	0,05
50	8,96	0,97		6	0,05
60	8,95	0,7		6	0,06
90	9,1	0,35		6,3	0,09
120	9,19	0,1		6,5	0,11
150	9,23	0,04		6,8	0,14
180	9,25	0,01	0,3856	7	0,18

Çizelge H. 12 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 37 mg/L, E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 7; oluşan çamur: 300 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7	4,1	36		5	0
10	7,3	2,2	35,6		4,7	0,01
20	7,7	1,8	35,6		4,3	0,02
30	8,08	1,45	35,3	0,0668	4,2	0,03
40	8,23	1,06	35,3		4,1	0,03
50	8,4	0,9	34,4		4,1	0,04
60	8,49	0,77	34,4		4,1	0,04
90	8,58	0,55	34		4,1	0,06
120	8,74	0,4	33,2		4,1	0,07
150	8,8	0,26	33,2		4,1	0,09
180	8,83	0,18	33	0,1783	4,1	0,10

Çizelge H. 13 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca₀:37 mg/L,Cl₀:35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm² pH₀: 7,6;oluşan çamur:570 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,6	4	37		9	0
10	7,62	2,8		1,3349	9	0,12
20	8,12	2,1	36,8		7,9	0,14
30	8,30	1,7	36		7,3	0,16
40	8,45	1,28			7,2	0,17
50	8,5	1,15			7,3	0,21
60	8,58	0,81			7,5	0,24
90	8,60	0,76	30,4		8,2	0,38
120	8,79	0,26			8,8	0,47
150	8,87	0,21			9,8	0,65
180	8,93	0,2	20,8	0,2421	10,4	0,82

Çizelge H. 14 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl₀: 35 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7; oluşan çamur: 430 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,12	4,1	0,7675	17,5	0
10	8,19	2,47		16,3	0,16
20	8,45	1,55		16	0,21
30	8,72	1,02		16	0,26
40	8,8	0,7		16,2	0,31
50	8,89	0,39		16,4	0,37
60	8,99	0,25		16,7	0,43
90	9,04	0,09	2,1812	17,5	0,65
120	9,15	0,03		18	0,88
150	9,2	0,01		18,5	1,13
180	9,21	0,01		18,8	1,38

Çizelge H. 15 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Clo: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃/L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7,9; oluşan çamur: 460 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0					
	7,9	4,01		15,5	0
10					
	8,65	2,35		14,5	0,14
20			0,3835		
	8,84	1,05		14,2	0,16
30					
	8,93	0,62		14,2	0,21
40					
	8,98	0,38		14,5	0,26
50					
	9,01	0,15		14,9	0,32
60					
	9,09	0,03		15,2	0,38
90					
	9,15	0,01		15,5	0,58
120			1,197		
	9,2	0		16	0,80
150					
	9,27	0		16,3	1,02
180					
	9,3	0		16,5	1,23

Çizelge H. 16 : Suda bulunan diğer iyonların E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Ca₀: 36 mg/L, Cl₀: 37 mg/L, E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm², pH₀: 7; oluşan çamur:530 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7	4,1	36	0,5523	9	0
10	8,2	2	34,4		8,8	0,07
20	8,42	1,3	34,4		8,6	0,10
30	8,7	0,87	34		8,6	0,13
40	8,84	0,53	33,3		8,6	0,16
50	8,95	0,4	32,6	0,0451	8,7	0,20
60	8,99	0,3	32		8,8	0,23
90	9,07	0,21	29,3		9,2	0,35
120	9,13	0,12	26,6		9,5	0,48
150	9,17	0,05	24		9,8	0,60
180	9,19	0	21,3		10	0,73

EK I

Çizelge I. 1 : Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Cao:37 mg/L,Clo:35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm2 pHo: 7,6;oluşan çamur:570 mg AKM/L) (orijinal)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,6	4	37	1,3349	9	0
10	7,62	2,8			9	0,12
20	8,12	2,1	36,8		7,9	0,14
30	8,30	1,7	36		7,3	0,16
40	8,45	1,28			7,2	0,17
50	8,5	1,15			7,3	0,21
60	8,58	0,81			7,5	0,24
90	8,60	0,76	30,4		8,2	0,38
120	8,79	0,26			8,8	0,47
150	8,87	0,21			9,8	0,65
180	8,93	0,2	20,8	0,2421	10,4	0,82

Çizelge I. 2 : Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_o:37 mg/L, Cl_o:35 mg/L, T. Alkalinite: 86 mg CaCO /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm² pH_o: 8 ;oluşan çamur:570 mg AKM/L)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	8	4	36		9	0
10	8,67	2,75	35		9,7	0,12
20	8,86	2,03	32		10,3	0,17
30	8,94	1,5	31		10,9	0,22
40	9	1,07	26		11,3	0,25
50	9,02	1	25		11,4	0,32
60	9,03	0,8	22		11,7	0,37
90	9,04	0,72	21		12	0,55
120	9,08	0,23	20		13	0,69
150	9,12	0,2	19		13,2	0,87
180	9,17	0,19	18	1,4317	14,6	1,15

Çizelge I. 3 : Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_o:37 mg/L, Cl_o:35 mg/L, T. Alkalinite: 150 mg CaCO₃ /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm² pH_o: 8;oluşan çamur: 580 mg AKM/L)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	8	4	35		14	0
10	8,5	2,57	35		14,3	0,16
20	8,57	1,75	32		14,3	0,21
30	8,63	1,3	30	2,0660	14,3	0,26
40	8,65	0,98	24		14,3	0,31
50	8,7	0,9	24		14,4	0,39
60	8,73	0,83	21		14,7	0,46
90	8,79	0,68	21		15	0,68
120	8,85	0,4	19		15,7	0,87
150	9,01	0,36	19		16	1,10
180	9,1	0,16	16	1,4769	16,4	1,28

Çizelge I. 4 : Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_o:37 mg/L, Cl_o:35 mg/L, T. Alkalinite: 305mg CaCO /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm² pH_o: 8;oluşan çamur: 600 mg AKM/L)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	8,04	4	36		19	0
10	8,74	2,3	33,6		18,7	0,18
20	8,85	1,5	32		18,5	0,24
30	8,91	0,95	30,5	1,9422	18,5	0,30
40	8,98	0,62	27,2		18,7	0,37
50	9,07	0,31	25		19,5	0,44
60	9,11	0,13	24		21	0,54
90	9,13	0,07	23		22	0,84
120	9,19	0	20		22,5	1,13
150	9,21	0	16		23	1,44
180	9,25	0	14	2,1538	23,4	1,76

Çizelge I. 5 : Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl₀: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃/L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH₀: 8; oluşan çamur: 350 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0					
	7,85	4,01		6,6	0
10					
	8,35	2,45		6,2	0,02
20					
	8,58	2,02		6	0,03
30					
	8,68	1,59		5,9	0,04
40			1,221		
	8,78	1,2		5,9	0,05
50					
	8,96	0,97		6	0,05
60					
	8,95	0,7		6	0,06
90					
	9,1	0,35		6,3	0,09
120					
	9,19	0,1		6,5	0,11
150					
	9,23	0,04		6,8	0,14
180			0,9832		
	7,85	4,01		6,6	0

Çizelge I. 6 : Alkalinitenin E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli SN üzerinde yürütülen E.K. uygulamaları (Cl_o: 35 mg/L, T. Alkalinite: 76 mg CaCO₃/L E.K. koşulları J: 0,35 mA/cm², pH_o: 8; oluşan çamur: 360 mg AKM/L).

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	8	4,1	0,7710	6	0
10	8,6	2,37		5,1	0,02
20	8,69	2,14		5,1	0,03
30	8,78	1,6		5,3	0,04
40	8,82	1,17		5,4	0,04
50	8,93	0,9		5,5	0,05
60	8,97	0,57		5,7	0,05
90	8,99	0,2		6	0,08
120	9,01	0,1		6,1	0,10
150	9,15	0,01		6,2	0,13
180	9,2	0	0,7872	6,4	0,16

EK J

Çizelge J. 1 : Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_o:40 mg/L, Cl_o:38 mg/L, Sülfat 60 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm² pH_o: 7,4;oluşan çamur:565 mg AKM/L) (orijinal)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,4	4	40		10	0
10	7,8	2,85	34		11	0,15
20	8,18	2,14	30		11	0,20
30	8,23	1,8	29		11,2	0,25
40	8,32	1,3	27	0,5523	11,4	0,28
50	8,35	1,18	25		11,4	0,34
60	8,43	0,87	24		11,4	0,36
90	8,56	0,74	23		11,9	0,55
120	8,76	0,25	20		12	0,64
150	8,8	0,23	16		12	0,80
180	8,87	0,19	14	1,6734	12	0,94

Çizelge J. 2: Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_o:40 mg/L,Cl_o:38 mg/L, Sülfat 80 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm² pH_o: 7,56;oluşan çamur:580 mg AKM/L)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,56	4	40		13	0
10	8	2,2	32		13	0,12
20	8,1	2	27		14	0,23
30	8,19	1,9	26		14,5	0,35
40	8,22	1,2	25	1,1539	14,9	0,35
50	8,36	1,09	23		15	0,43
60	8,4	0,84	21		15,3	0,48
90	8,45	0,71	20		15,6	0,71
120	8,65	0,54	19		15,9	0,92
150	8,69	0,31	15		16	1,08
180	8,8	0,2	12	2,6173	17	1,34

Çizelge J. 3 :Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_o:40 mg/L,Cl_o:38 mg/L, Sülfat 105 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm² pH_o: 7,55;oluşan çamur:610 mg AKM/L)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,55	4	40		16	0
10	8,6	2,3	33		17	0,16
20	8,9	1,8	30		17,3	0,26
30	9,01	1,9	24		17,8	0,42
40	9,07	1,1	21	1,8953	18	0,41
50	9,09	1,05	19		18,2	0,51
60	9,1	0,74	16		18,3	0,56
90	9,11	0,65	15		18,6	0,83
120	9,12	0,59	14		19	1,11
150	9,12	0,43	11		19,6	1,37
180	9,13	0,32	10	3,0451	20	1,63

Çizelge J. 4 :Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_o:40 mg/L,Cl_o:38 mg/L, Sülfat 165 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm² pH_o: 7,6;oluşan çamur:660 mg AKM/L)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,6	4	40		21	0
10	8,65	2,4	31		21,3	0,21
20	8,98	2,3	29		21,4	0,42
30	9,05	2	25		21,8	0,55
40	9,07	1,7	20	2,1572	22	0,63
50	9,09	1,4	17		22,3	0,71
60	9,12	1,05	15		23	0,78
90	9,12	0,87	12		23,4	1,12
120	9,13	0,76	11		23,8	1,47
150	9,13	0,64	9		24,5	1,82
180	9,13	0,49	8	6,0561	26	2,22

Çizelge J. 5 :Sülfat İyonlarının E.K. prosesi üzerindeki etkisini belirlemek için 4 mg/L florür ilaveli içme suyu üzerinde yürütülen E.K. uygulamalar (Ca_o:40 mg/L,Cl_o:38 mg/L, Sülfat 300 mg /L E.K. koşulları J: 1,05 mA/cm² pH_o: 7,55;oluşan çamur:690 mg AKM/L)

Zaman (dk)	pH	Florür (mg/L)	Kalsiyum (mg/L)	Alüminyum (mg/L)	Volt	SEC (kw saat/g F _{giderilen})
0	7,55	4	40		22	0
10	8,78	2,35	31		22,3	0,22
20	8,92	2,2	30		22,4	0,41
30	9,01	1,9	25		23	0,55
40	9,04	1,7	20		23,1	0,66
50	9,07	1,45	17	2,2132	23,8	0,77
60	9,12	1	16		24,4	0,81
90	9,15	0,79	13		25	1,17
120	9,17	0,7	10		26	1,58
150	9,18	0,6	10		26,7	1,96
180	9,23	0,42	8	7,0251	28	2,35

ÖZGEÇMİŞ

Ad-Soyad: Ayça TETİK

Doğum Yeri/ Tarihi: İstanbul, 18/01/1986

Adres: İstanbul

Lisans Üniveriste: İstanbul Teknik Üniversitesi