



**T.C.**  
**NECMETTİN ERBAKAN**  
**ÜNİVERSİTESİ**  
**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**



**ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMLERİ**  
**İLE YAĞ-SU EMÜLSİYONLARININ**  
**AYRILMASI**  
**Hatice Sevim EKŞİ**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

**Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı**

**Eylül-2023**  
**KONYA**  
**Her Hakkı Saklıdır**

## TEZ KABUL VE ONAYI

Hatice Sevim EKŞİ tarafından hazırlanan “Elektrokoagülasyon Yöntemleri ile Yağ-Su Emülsiyonlarının Ayrılması” adlı tez çalışması 04/09/2023 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Necmettin Erbakan Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı’nda YÜKSEK LİSANS olarak kabul edilmiştir.

### Jüri Üyeleri

### İmza

#### Başkan

Doç. Dr. Muhammed Kamil ÖDEN

.....

#### Danışman

Dr. Öğr. Üyesi Gülizar KURTOĞLU AKKAYA

.....

#### Üye

Prof. Dr. Ali TOR

.....

Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu’nun ....../.../20.. gün ve ..... sayılı kararıyla onaylanmıştır.

Prof. Dr. Şerife Yurdağül KUMCU  
FBE Müdürü

## TEZ BİLDİRİMİ

Bu tezdeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edildiğini ve tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

## DECLARATION PAGE

I hereby declare that all information in this document has been obtained and presented in accordance with academic rules and ethical conduct. I also declare that, as required by these rules and conduct, I have fully cited and referenced all material and results that are not original to this work.

Hatice Sevim EKŞİ

Tarih: 04.09.2023

## ÖZET

### YÜKSEK LİSANS TEZİ

## ELEKTROKOAGÜLASYON YÖNTEMLERİ İLE YAĞ-SU EMÜLSİYONLARININ AYRILMASI

Hatice Sevim EKŞİ

Necmettin Erbakan Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü  
Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı

Danışman: Dr. Öğr. Üyesi Gülizar KURTOĞLU AKKAYA

2023, 71 Sayfa

Jüri

Dr. Öğr. Üyesi Gülizar KURTOĞLU AKKAYA  
Prof. Dr. Ali TOR  
Doç. Dr. Muhammed Kâmil ÖDEN

Günümüzde su içinde oldukça yaygın bir kirletici olan yağlar, petrokimya tesislerinde, maden işletmelerinde, gıda endüstrilerinde ve birçok endüstriyel proses sonucunda oluşan suların içinde genellikle emülsiyon halinde bulunmaktadır. Bunun dışında, deniz üzerinden yapılan petrol taşımacılığında ve petrol üretimi esnasında sürekli meydana gelen petrol sızıntıları/dökülmeleri büyük miktarda yağ bazlı kirletici içeren petrolün, su kaynaklarına karışarak yağlı atıksuların oluşmasına sebep olmaktadır. Petrol sızıntılarının-kazalarının sıklıkla yaşanması ve emülsiyon haldeki yağ-su karışımlarının doğrudan alıcı ortamlara deşarj edilmesi, çevreye ve canlı yaşamı üzerine zararlı etkiler oluşturacağından, bu tür atıksuların verimli bir şekilde arıtılması büyük önem taşımaktadır.

Bu tez çalışmasında, sürdürülebilir su yönetimi için etkili ve umut verici bir yöntem olarak değerlendirilen elektrokoagülasyon (EC) ve ileri elektrokoagülasyon prosesi olarak adlandırılan elektro-persülfat yöntemi (EPS) ile yağ-su emülsiyonlarının arıtılması amaçlanmıştır. Deneysel çalışmalar için model bir yağ-su emülsiyonu hazırlanmıştır. Çalışmanın ilk aşamasında, üç farklı elektrot konfigürasyonu ile yağ-su emülsiyonlarının EC ile arıtımı gerçekleştirilmiş ve en ekonomik elektrot çifti belirlenmiştir. Çalışmanın devamında, yağ-su emülsiyonlarının ayrılması için EC ve EPS prosesi cevap yüzey yöntemi (RSM) ve Box-Behnken tasarımı (BBD) kullanılarak modellenmiş ve işletme şartları optimize edilmiştir. BBD ile işletme parametrelerinin (EC için pH, akım yoğunluğu ve elektroliz süresi; EPS için pH, akım yoğunluğu, persülfat (PS)/KOİ ve elektroliz süresi), sistem yanıtı (KOİ giderimi) üzerindeki etkileri ve birbirleriyle etkileşimleri ortaya konmuştur. Nötr pH'da, maksimum KOİ giderimi için model yardımı ile belirlenen optimal işletme şartları EC için 27 mA/cm<sup>2</sup>, 37 dk ve EPS için 27 mA/cm<sup>2</sup>, 25 dk ve PS/KOİ=0,5'dir. Optimum koşullar altında BBD tarafından tahmin edilen ve doğrulama deneyleri sonucu KOİ giderim verimi EC ve EPS için sırasıyla %100, %97,15 ve %88,18 ve %87,94 olarak ve toplam maliyet EC ve EPS için sırasıyla 2,061 €/m<sup>3</sup> ve 1,19 €/m<sup>3</sup> olarak belirlenmiştir. Çalışma neticesinde EC, EPS prosesine göre daha yüksek atıksu arıtma performansı sağlamıştır. Ancak, ekonomik açıdan EPS prosesi daha verimli yağ-su emülsiyonlarının arıtımını sağlamıştır.

**Anahtar Kelimeler:** Elektrokoagülasyon, Elektro-persülfat, Optimizasyon, Sonifikasyon, Yağ-su emülsiyonu,

## ABSTRACT

### MS/Ph.D THESIS

## SEPARATION OF OIL-WATER EMULSIONS BY ELECTROCOAGULATION PROCESSES

Hatice Sevim EKŞİ

THE GRADUATE SCHOOL OF NATURAL AND APPLIED SCIENCE OF  
NECMETTİN ERBAKAN UNIVERSITY  
THE DEGREE OF MASTER OF SCIENCE OF ENVIRONMENTAL  
ENGINEERING

Advisor: Asst. Prof. Dr. Gülizar KURTOĞLU AKKAYA  
2023, 71 Pages

Jury

Advisor Asst. Prof. Dr. Gülizar KURTOĞLU AKKAYA  
Prof. Dr. Ali TOR  
Assoc. Prof. Dr. Muhammed Kamil ODEN

Oils, which are a fairly common pollutant in water today, are usually found in emulsion form in petrochemical plants, mining operations, food industries and in water formed as a result of many industrial processes. In addition, oil spills/spills that occur continuously during oil transportation and oil production over the sea cause oil containing a large amount of oil-based pollutants to mix with water resources and form oily wastewater. Since frequent occurrence of oil spills-accidents and discharge of emulsified oil-water mixtures directly to receiving environments will have harmful effects on the environment and living life, efficient treatment of such wastewater is of great importance.

In this thesis study, it is aimed to separate oil-water emulsions by electrocoagulation (EC) which is evaluated as an effective and promising method for sustainable water management and electro-persulfate method (EPS) called advanced electrocoagulation process. A model oil-water emulsion was prepared for experimental studies. As a firstly in the study, oil-water emulsions with three different electrode configurations were treated with EC and the most economical electrode pair was determined. Afterwards, operating conditions of EC and EPS were modeled and optimized for the treatment of oil-water emulsions process by response surface method (RSM) and Box-Behnken design (BBD). Operating parameters with BBD (pH, current density, and electrolysis time for EC; pH, current density, persulfate (PS)/COD and electrolysis time for EPS), effects on system response (COD removal) and their interactions with each other have been revealed. At neutral pH, the optimal operating conditions determined with the help of the model for maximum COD removal are 27 mA/cm<sup>2</sup> 37 min for EC and 27 mA/cm<sup>2</sup>, 25 min and PS/COD=0.5 for EPS. Whereas The COD removal efficiency estimated as 100% and 88.18% by BBD under optimum conditions, tests results in the same conditions were 97.15% and 87.94% for EC and EPS respectively, and the total cost was 2,061 €/m<sup>3</sup> and 1.19 €/m<sup>3</sup> for EC and EPS respectively. As a result of the study, EC achieved higher wastewater treatment performance than the EPS process. However, from an economic point of view, the EPS process has enabled the treatment of more efficient oil-water emulsions.

**Keywords:** Electrocoagulation, Electro-persulfate, Optimization, Sonication, Oil-water emulsion

## ÖNSÖZ

Bu çalışmada, elektrokoagülasyon yöntemleri ile yağ-su emülsiyonlarının ayrımı farklı elektrot konfigürasyonu ile araştırılmıştır. Proseslerin verimliliğini etkileyen faktörler ve işletme maliyetleri değerlendirilerek en verimli ve ekonomik proses belirlenmeye çalışılmıştır.

Yüksek Lisans eğitimim boyunca, çalışma konusunun belirlenmesinde ve çalışmanın hazırlanma sürecinin her aşamasında bilgilerini, tecrübelerini aktaran değerli zamanlarını esirgemeyerek bana her fırsatta yardımcı olan değerli Hocam Sayın Dr. Öğr. Üyesi Gülizar KURTOĞLU AKKAYA'ya, tez çalışmamda tecrübelerini paylaşan Prof. Dr. Ali TOR ve deneysel çalışmalarında yardım ve desteği esirgemeyen Arş. Gör. Dr. Ömer KAZAK hocalarıma, ve beni büyüten ve yetiştiren çok değerli ve kıymetli aileme sonsuz saygılarımı ve teşekkürlerimi sunarım.

Hatice Sevim EKŞİ  
KONYA-2023

# İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	iv
ABSTRACT.....	v
ÖNSÖZ.....	vi
İÇİNDEKİLER.....	vii
SİMGELER VE KISALTMALAR.....	ix
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	xi
TABLolar DİZİNİ.....	xii
<b>1. GİRİŞ.....</b>	<b>1</b>
<b>2. KAYNAK ARAŞTIRMASI.....</b>	<b>3</b>
2.1. Yağ İçeren Atıksular.....	3
2.2. Yağ İçeren Suların Özellikleri.....	3
2.3. Yağ İçeren Atıksuların Arıtılması.....	4
2.3.1. Elektrokoagülasyon.....	6
2.3.2. Elektro-Persülfat Prosesi.....	13
<b>3. MATERYAL VE YÖNTEM.....</b>	<b>18</b>
3.1. Yağ-su emülsiyonun hazırlanması.....	18
3.2. Analitik Yöntemler.....	19
3.3. Deneysel Prosedür.....	19
3.4. Elektrot Konfigürasyonu.....	20
3.5. Deneysel Tasarım.....	21
<b>3.6. Ekonomik analiz.....</b>	<b>22</b>
<b>4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA.....</b>	<b>23</b>
4.1. Sonikasyon Etkisi.....	23
4.2. Elektrot Konfigürasyonunun Belirlenmesi.....	24
4.3. Model Tasarımı, İstatistiksel Analizi ve ANOVA sonuçları.....	26
<b>4.3.1. Çalışma Parametrelerinin KOİ Giderimi Üzerine Etkileri.....</b>	<b>31</b>
4.3.2. Optimizasyon Sonuçlar ve Karşılaştırılma.....	41
4.3.3. Çamur Karakterizasyonu.....	45
<b>5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER.....</b>	<b>48</b>
5.1 Sonuçlar.....	48
5.2 Öneriler.....	48



## SİMGELER VE KISALTMALAR

### Simgeler

Al	:Alüminyum
Fe	:Demir
S	:Kükürt
H <sub>2</sub>	:Hidrojen
OH	:Hidroksil
Cl	:Klor
N <sub>2</sub>	:Nitrojen
NH <sub>3</sub>	:Amonyak
Zn	:Çinko
Mg	:Magnezyum
Ti	:Titanyum
Cu	:Bakır
NaCl	:Sodyum klorür
KCl	:Potasyum klorür
NaClO	:Sodyum hipoklorit
Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	:Sodyum sülfat
NaHCO <sub>3</sub>	:Sodyum bikarbonat
CO <sub>3</sub> <sup>-2</sup>	:Karbonat
SO <sub>4</sub> <sup>-2</sup>	:Sülfat
mM	:Milimolar

## Kısaltmalar

EC	:Elektrokoagülasyon
EPS	:Elektro-persülfat
Sono	:Sonifikasyon
KOİ	:Kimyasal oksijen ihtiyacı
RSM	:Cevap yüzey yöntemi
BBD	:Box-Behnken Tasarımı
CCD	:Merkezi Kompozit Tasarımı
DOM	:Doğal organik madde
PV	:Fotovoltaik
UNESCO	:Birleşmiş Milletler Eğitim, Bilim ve Kültür Örgütü
AC	:Alternatif akım
DC	:Doğru akım



## ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1. Yağ damlacık boyutu.....	4
Şekil 2. a) EC prosesi, b) EC prosesi ile giderim mekanizması.....	8
Şekil 3. Negatif yüklü yağ damlacığının etrafında elektriksel çift katman ve elektrik potansiyeli.....	9
Şekil 4. Yüzdürme sırasında gaz kabarcıkları ve yağ damlacıkları arasındaki etkileşim mekanizması.....	10
Şekil 5. Elektro-persülfat prosesi mekanizması.....	15
Şekil 6. Sonikatör.....	18
Şekil 7. Deney düzeneğinin şematik diyagramı.....	20
Şekil 8. Farklı geometrik şekillere sahip demir elektrotlar.....	20
Şekil 9. Sonikasyon öncesi (a) ve sonrası (b) yağ-su emülsiyonları.....	23
Şekil 10. Farklı elektrot tipleri ile EC çalışması.....	25
Şekil 11. EC için 3D Tepki yüzey grafikleri ve 2D kontur grafikleri.....	34
Şekil 12. EPS için 3D Tepki yüzey grafikleri ve 2D kontur grafikleri.....	39
Şekil 13. EC ve EPS için Pareto Grafikleri.....	40
Şekil 14. Proses parametrelerinin KOİ giderimi için ana etki grafikleri.....	41
Şekil 15. Yağ-su emülsiyonların EC ve EPS ile ayrılması sonucu çıkış atıksuları.....	42
Şekil 16. EC ve EPS proseslerine ait çamurun SEM-EDX analizi.....	46
Şekil 17. EC ve EPS için FTIR analizi.....	47

## TABLolar DİZİNİ

<b>Tablo 1.</b> Sulu çözüldüden yağın uzaklaştırılması için farklı yöntemlerin karşılaştırılması.....	5
<b>Tablo 2.</b> Hazırlanan yağ emülsiyonunun temel özellikleri.....	18
<b>Tablo 3.</b> Deney tasarım tablosu.....	21
<b>Tablo 4.</b> Farklı elektrot konfigürasyonlarına ait enerji tüketimi.....	25
<b>Tablo 5.</b> Deney setleri ve KOİ giderim verimleri.....	28
<b>Tablo 6.</b> EC’de KOİ giderimi için ANOVA tablosu.....	30
<b>Tablo 7.</b> EPS’de KOİ giderimi için ANOVA tablosu.....	31
<b>Tablo 8.</b> Optimum çalışma şartları ve doğrulama deneyleri.....	42
<b>Tablo 9.</b> EC ve EPS için maliyet hesapları.....	44

## 1. GİRİŞ

Arıtılmamış endüstriyel atıkların su kütlelerine deşarjı, ciddi su kirliliği sorunlarına ve su kalitesinin bozulmasına neden olmaktadır.

Son zamanlarda ortaya çıkan su kıtlığı sorunu ve su kalitesindeki bozulma dünyanın her yerinde insanları büyük ölçüde rahatsız etmektedir. Bu nedenle, mevcut su kaynaklarının kirlenmesinin önlenmesi ve atık suların arıtılması büyük önem taşımaktadır.

Atıksu arıtma işlemi, farklı atıksu ve kirlenici türlerine bağlı olarak değişmektedir. Atıksu arıtımında ileri oksidasyon prosesleri (Boczka & Fernandes, 2017), biyolojik prosesler (Huang vd., 2017; Iskandar vd., 2018; Liew vd., 2015), fiziko-kimyasal prosesler (Bhuptawat vd., 2007; Can vd., 2006; Sher vd., 2013), membran filtrasyonu (Dickhout vd., 2017) ve adsorpsiyon (Amosa vd., 2016) gibi teknikler kullanılmaktadır. Gelişmiş oksidasyon süreçleri, atıksu arıtma işleminde güvenlik ve maliyet gerektiren güçlü oksitleyiciler gerektirir. Biyolojik prosesler, dikkat gerektiren işletme koşulları, uzun hidrolik bekleme süresi ve istenmeyen yan ürünlerin oluşumunu gerektirir. Kimyasal prosesler de ise kirlenici giderimi için kimyasal ilavesi yapılmaktadır. Bu durum, işletme maliyetini arttırdığı gibi, arıtım sonucu oluşan arıtma çamur hacminin artmasına ve ikincil bir kirlenici oluşumu problemine de sebep olmaktadır. Ayrıca adsorpsiyon ve membran filtrasyon gibi, fiziksel ön arıtma prosesleri ile birleştirilmedikçe, atık suların verimli bir şekilde arıtılmasında tek başına etkisiz olmaktadır. Adsorpsiyon işlemi önemli ölçüde çözelti pH'ına bağlıdır ve uzun bir işlem süresi gerektirebilmektedir. Ayrıca, adsorbanların yeniden kullanılabilir olmaması durumu, bu yöntemin tercih edilmemesine sebep olabilmektedir. Bunun dışında, membran filtrasyonu, kirlenici maddeler tarafından gözenek tıkanması ile akı kaybı nedeniyle zamanla verimsiz hale gelmektedir (Deepti vd., 2020). Tüm bu hususlar dikkate alındığında, elektrokimyasal işlemlere dayalı atık su arıtımı çalışmalarının önemli olduğu görülmektedir ve bu kapsamındaki araştırmalar devam etmektedir.

Elektrokoagülasyon (EC) farklı türde birçok kirlenici giderimi sağlaması ile atıksu ve su arıtımında etkili bir şekilde kullanılan, elektrik akımı ve metal elektrotların kullanımına dayalı, kolay işletilebilen elektrokimyasal bir prosestir. EC prosesi ile askıda katı maddeler, kolloidler, organik madde, renk, yağ ve gres, metaller, florür, fosfat, bakteri, virüsler vb. gibi çeşitli kirlenici türlerini içeren atıksuların etkili arıtımı sağlanmaktadır. Yüksek temizleme oranı ve kimyasal eklenmemesi nedeniyle, kirlenici konsantrasyonu yüksek atık suların arıtılması için uygun bir proses olarak

değerlendirilmektedir. EC ile atıksu arıtımı esnasında herhangi bir kimyasal koagülant eklenmediğinden, proseste ikincil kirletici oluşumu riski de bulunmamaktadır.

EC prosesinin atık su arıtımı için kullanımının avantajları çok sayıda çalışmada kapsamlı bir şekilde incelenmiştir (Galvão vd., 2020; Elkacmi vd., 2020; Al-Raad & Hanafiah, 2021; Tegladza et al., 2021). Bununla birlikte, yöntemin, enerji tüketimi, EC etkinliğini azaltan katot üzerinde oksit filmi oluşumu, gibi dezavantajları bulunmaktadır (Akkaya vd., 2023). Bunun için EC prosesi farklı prosesler ile işletilerek daha avantajlı ve verimli atıksu arıtımı gerçekleştirilebilmektedir. Örneğin; EC öncesi sonikasyon, ultrason, ozon veya adsorpsiyon işlemleri yapılabildiği gibi EC esnasında çok güçlü oksitleyici ajanlar ilave edilerek ileri EC prosesi ile atıksu arıtma verimi arttırılmaktadır.

Dolayısıyla bu tez çalışmasında, hazırlanan model bir yağ-su emülsiyonlarına sonikasyon (sono) işlemi uygulanarak EC ve ileri EC yöntemi olan elektro-persülfat (EPS) yöntemleri ile KOİ giderim verimi ve proses optimizasyonu gerçekleştirilmiştir. İlk olarak, üç farklı elektrot konfigürasyonu ile yağ-su emülsiyonlarının EC ile ayrımı gerçekleştirilmiş ve en ekonomik elektrot çifti belirlenmiştir. Sonrasında cevap yüzey metodolojisi (RSM) ve Box-Behnken tasarımı (BBD) kullanılarak EC ve EPS'nin matematiksel modelleme, optimizasyon, varyans analizi ile giderim verimliliklerinin anlamlılığını araştırılmıştır. Yapılan çalışma ile yağ-su emülsiyonlarının arıtımında model sonucu her iki prosesin arıtma verimliliği ve maliyetleri karşılaştırılarak yöntemlerin avantaj ve dezavantajları üzerinde durulmuştur.

## 2. KAYNAK ARAŞTIRMASI

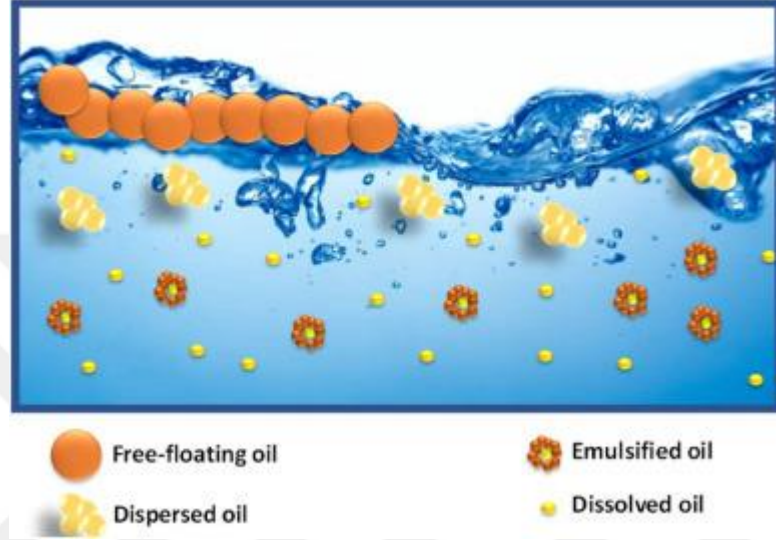
### 2.1. Yağ İçeren Atıksular

Sanayileşme ve kentleşmenin hızla artmaya devam ettiği günümüz dünyasında, suyun kullanımına paralel olarak yağ içeren atıksuların oluşumu da artmaktadır. Günlük yaşamda petrol-gaz çıkarma, petrol arıtma, tekstil, deri imalatı, petrokimya üretimi, gıda işleme, çelik metal kaplama gibi birçok alanda yağ içeren atıksular oluşmaktadır (Kadier vd., 2022; Peng vd., 2017). Örneğin, iki aşamalı bir zeytinyağı öğütme işleminde, işlenmiş her bir ton zeytin için yaklaşık 800-950 kg yağlı atık su oluşur (Maggay vd., 2021). Ayrıca sürtünmeyi önlemek ve soğutma sağlamak amacıyla endüstrinin birçok alanında kullanılan yağ bazlı sıvılar, sulara karışarak yağlı atıksu miktarında artışa sebep olmaktadır. Su kaynakları analiz edildiğinde birçok farklı türde yağ içeren atıksulara rastlanılır. Örneğin, bazı endüstrilerin atık suları incelendiğinde yağlama yağları, motor yağları, dizel gibi petrol kaynaklı yağlar bulunurken, gıda sektörüne bağlı endüstri kuruluşlarından ise bitkisel yağ içeren atıksuların oluştuğu görülür. Endüstri kuruluşlarından farklı olarak, petrokimya tesislerinin veya deniz taşıtlarının arızalı borularından su kaynaklarına sızıntı veya dökülme yoluyla petrol türevi yağlar da sulara karışabilmektedir (Nigiz & Yucak, 2019). Yakın geçmişte yaşanan Deepwater Horizon ve Exxon Valdez petrol sızıntıları ile milyonlarca metreküp petrolün deniz ekosisteminde onarılamaz hasarlara neden olduğu bilinmektedir (Maggay vd., 2021). Yağ emülsiyonları, genel olarak, son derece inatçıdır ve kararlılıkları nedeniyle kırılması zordur. Petrol, doğal ekosistemde sınırlı bir biyobozunurluğa sahiptir ve yağlı yapı, çevrenin işleyişini uzun süre engelleyebilir. Bunun sonucunda da yer üstü ve yer altı su kaynakları ciddi şekilde kirlenmektedir. Sonuç olarak, çevre kirliliğini ve insan sağlığını olumsuz etkilemekte ve yağın bertaraf edilmeden önce atık sudan uzaklaştırılması çok önemlidir.

### 2.2. Yağ İçeren Suların Özellikleri

Sularda bulunan yağlar, serbest yüzen yağlar, dağılmış yağlar, emülsifiye yağlar ve çözünmüş yağlar olarak çeşitli formlarda bulunabilmektedir (Maggay vd., 2021) (Şekil 1) Serbest yüzen yağlar  $\geq 150 \mu\text{m}$  büyük damlacık boyutuna sahiptir ve yerçekimi ayırıcıları tarafından kolayca çıkarılabilmektedir. Dağılmış yağlar büyük damlacık boyutuna (20-150  $\mu\text{m}$ ) sahiptir ve kararsız yapıları nedeniyle, yağ damlacıkları birbirleriyle temas ettiklerinde birleşme eğilimi gösterirler. Daha sonra yerçekimi ile atık suyun yüzeyine yükselirler. İlaç

firmaları ve kozmetik endüstrilerinde yaygın olarak üretilen emülsifiye yağlar daha küçük damlacık aralığına ( $\leq 20 \mu\text{m}$ ) sahiptir ve yerçekimi ile kolayca yüzeye çıkmazlar. Çözünmüş yağlar, atık suda çözünen ve en küçük damlacık boyutuna ( $\leq 5 \mu\text{m}$ ) sahip organik kimyasallardır (örn. benzin, benzen, ksilen, toluen, etilbenzen, ksilen vb.). Damlacıkların boyutu, karışımın stabilitesini büyük ölçüde belirler. Daha küçük yağ damlacıkları, ayırmanın elde edilmesini zorlaştıran daha yüksek kararlılığı göstermektedir (Maggay vd., 2021).



Şekil 1. Yağ damlacık boyutu (Kadier vd., 2022)

### 2.3. Yağ İçeren Atıksuların Arıtılması

Atık sudan yağın uzaklaştırılması, arıtma sürecindeki en zorlu konudur. Dağılmış yağ damlacıkları sıklıkla, özellikle emülsiyon haline getirilmiş yağ mevcut olduğunda, su içinde yağ sisteminin stabilitesinin korunmasına yardımcı olan önemli yüzey yükleri içerir. Mekanik çalkalama ve emülsifiye edici kimyasallar genellikle emülsiyonları oluşturmak ve stabilize etmek için kullanılır. Yağlı atıkların kalitatif ve kantitatif içerikleri çeşitli atıksu kaynaklarına göre değişiklik gösterse de, emülsifiye halde her zaman önemli miktarda yağ mevcuttur (Bratskaya vd., 2006). Yerçekimi ayırma, siklon ayırma, kimyasal destabilizasyon (pıhtılaşma, flokülasyon), nanopartiküllerde adsorpsiyon/sorpsiyon, ultrafiltrasyon veya membran filtrasyon teknikleri, kimyasal oksidasyon ve biyolojik işlemler, petrol giderme için mevcut teknolojilerden bazılarıdır (Adebajo vd., 2003; Sabir, 2015; Usman vd., 2018; Rezakazemi vd., 2018; Zhao vd., 2021). Bu teknolojilerin çeşitli avantajları olmasına rağmen, düşük verimlilik, daha uzun işlem süresi, ikincil kirleticiler ve aşırı fiyatlar gibi arıtma uygulamalarında bunlarla

ilişkili belirli zorluklar vardır (**Tablo 1**). Yağlı atık suların arıtılmasına yönelik birçok yaklaşım verimlilik açısından yetersiz kalmaktadır (Rahmani & Zarghami, 2015). Gelişmiş yağ içeren atık su temizleme ve su kaynağı geri kazanımı için sofistike ve uygun maliyetli arıtma tekniklerinin araştırılması devam etmektedir.

**Tablo 1.** Sulu çözüldüden yağın uzaklaştırılması için farklı yöntemlerin karşılaştırılması.

Yöntemler	Avantajlar	Dezavantajları
<b>Yerçekimi ayırımı</b>	Basit tasarım, düşük enerji tüketimi	Geniş alan gereksinimi, yavaş ayırma hızı, mikron altı boyutlu yağ damlacıklarının ayrılması için etkisiz
<b>Hidrosiklonlar</b>	Büyük arıtma kapasitesi, küçük hacim, basit kullanım ve kurulum	Güçlü merkez kaç kuvvetleri oluşturmak için yüksek enerji gereksinimi, küçük yağ damlacıkları için düşük ayırma verimliliği, yüksek bakım maliyeti
<b>Absorpsiyon</b>	Basit kullanım, iyi temizleme verimliliği, düşük işlem maliyeti	Küçük yağ damlacıkları için düşük ayırma verimliliği, yağ emiciler için yüksek maliyetler, yüksek yağ konsantrasyonunda daha az verimli
<b>Kimyasal Çökeltme</b>	İyi yağ giderme verimliliği	Karmaşık işletim, kimyasallar için yüksek işletme maliyeti, ikincil kirleticilerin oluşumu
<b>Flotasyon</b>	Yüksek taşıma oranları, kolay kullanım, sağlam ve dayanıklı	Büyük miktarda atık ve çamur oluşumu, ayırma için uzun süre ihtiyacı
<b>Membran filtrasyonu</b>	İyi yağ ayırma verimliliği, kimyasal ilavenin olmaması ve ardından yağlı çamur oluşumu	Ön arıtma gereksinimi, membran tıkanmasının neden olduğu membran performansının düşmesi
<b>Kimyasal oksidasyon</b>	İyi yağ gideme verimliliği, hızlı imha, kolay kullanım	Oksitleyici için yüksek maliyet, istenmeyen yan ürün, oksitleyicilerin uygulanmasıyla ilgili güvenlik endişeleri
<b>Biyolojik bozunma</b>	Düşük işletme maliyeti, temiz teknoloji	Uzun arıtma süresi, geniş alan, sıcaklık ve pH değişimlerine duyarlı-hassas olması, kalifiye operatör gereksinimi

Son zamanlarda, atıksu arıtımında yüksek performans ve verimlilik sağlayan elektrokimyasal teknolojiler geliştirilmektedir (Mohora vd., 2018). Çoğu araştırmacı, elektrokimyasal yöntemlerin çevresel kirlilikle mücadelede ve atık sudan bazı kirleticileri giderilmesi hususunda başarılı yenilikçi teknolojiler olduğu sonucuna varmışlardır (Nguyen vd., 2014; Kadier vd., 2022). Atıksu arıtımında yaygın olarak kullanılan elektrokimyasal teknolojiler; EC, elektroflotasyon, elektrooksidasyon, elektro-Fenton gibi çeşitli yöntemlerdir.

Atık su arıtımı için en yaygın kullanılan elektrokimyasal teknolojilerden biri EC'dir (AlJaberi, 2018; Nguyen vd., 2014). Kimyasal koagülasyonun aksine, EC, atık suyun hafif alkalileşmesine neden olur ve süreç üzerinde hassas kontrol sağlamaktadır. Son on yılda, farklı endüstriyel atıksulardan yağ partiküllerinin, greslerin ve petrolün uzaklaştırılması için EC kullanılmıştır (Palanisamy vd., 2020; Akkaya, 2022; Kadier vd., 2022).

### 2.3.1. Elektrokoagülasyon

EC, mevcut yağ giderme teknolojilerine karşı iyi bir alternatif arıtma yöntemi olarak belirtilmektedir. EC, çözünür bir metalik anot tarafından üretilen yüksek konsantrasyondaki katyonların ( $Fe^{+3}$  ve  $Al^{+3}$  vb.) uygulanan bir elektrik alanı altında kirleticilerin koagüle olmasını, çökmesini ve böylece kirleticilerin giderilmesini sağlayan bir su arıtma yöntemidir. Basit bir EC reaktöründe harici bir güç kaynağından elektrotlara bir elektrik akımı uygulandığında, elektrolitik hücrede bir dizi reaksiyon meydana gelmektedir. Gerçekleşen reaksiyonlar atıksuda veya solüsyonda bulunan farklı kirletici türlerinin sudan uzaklaştırılmasını sağlamaktadır. Metalik elektrotlar "M" olarak adlandırıldığında, EC prosesinde gerçekleşen elektrokimyasal reaksiyonlar aşağıdaki gibi özetlenebilir:

#### **Anotta:**



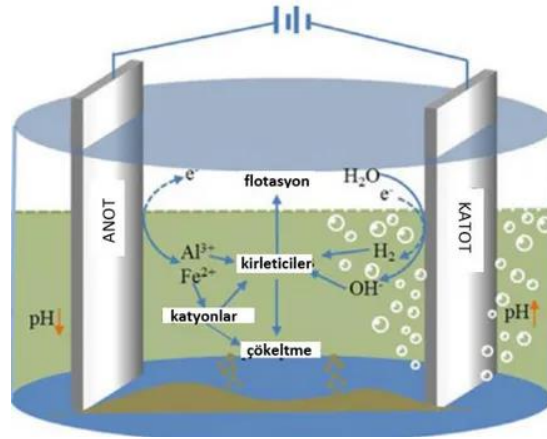
#### **Katotta:**



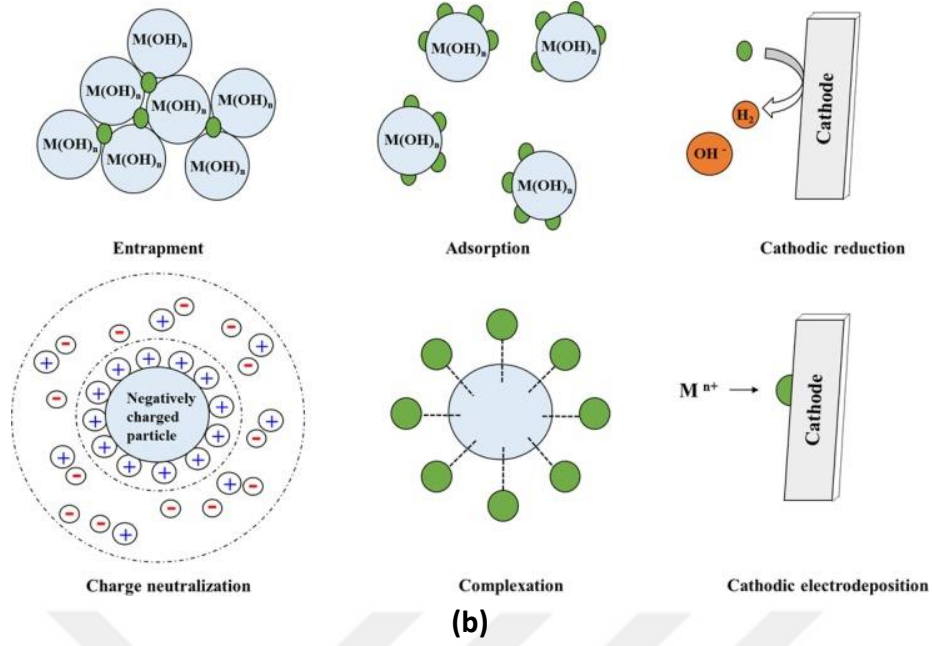
EC prosesinin mekanizması; (i) anotlara elektrik akımı sağlanması nedeniyle metal katyonlarının oluşumu; (ii) katot hidrolizinden dolayı hidroksil iyonlarının üretimi; (iii) metal hidroksitleri oluşturmak için metal katyonlarının hidroksil iyonları ile etkileşimi; (iv) toksik kirleticilerin zararsız ara ürünlere oksidasyonu; (v) metal

hidroksitlerle reaksiyonundan dolayı kirleticilerin yük nötralizasyonu; (vi) nötralize edilmiş kirleticilerin metal hidroksitler üzerinde adsorpsiyonu, ardından pıhtılaşma yoluyla uzaklaştırılması ve (vii) katotta gaz oluşumu ile ( $H_2$  gazı), oluşan yumakları yüzdürme/flotasyon yoluyla çözelti yüzeyine kaldırılması şeklinde açıklanabilmektedir. Metal hidroksitlerin adsorpsiyon kapasitesi çok yüksektir ve bu özellikleri ile metal hidroksitler, sudaki değişik kirleticileri adsorbe ederek ve sonrasında çökelterek sudan uzaklaştırmaktadır.

EC yönteminin, basit aparat kullanımı, kolay kullanılabilirliği, daha kısa arıtma süresi, kimyasallara ihtiyaç duymadan arıtma ve daha az miktarda çamur üretimi gibi belirli avantajları vardır (Bajpai vd., 2020; Bajpai & Katoch, 2021; Tahreen vd., 2020). EC, genellikle yağlı atık suyu iyileştirmek için kullanılan bir tekniktir. EC ile atık sudan yağın ayrılması, elektrokimyasal, fizikokimyasal ve hidrodinamik faktörlerin birleşik etkisi ile düzenlenen çeşitli kimyasal ve fiziksel olaylardan oluşan karmaşık bir işlemdir (Bensadok vd., 2011). EC düzeneği, bir elektrolitik hücre ve kontrollü bir DC güç kaynağına bağlanmış bir dizi geçici metal elektrottan (genellikle Fe veya Al) oluşmaktadır (Şekil 2). İşlem sırasında kullanılan katot ve anot olarak aynı veya farklı malzemeler kullanılabilir.

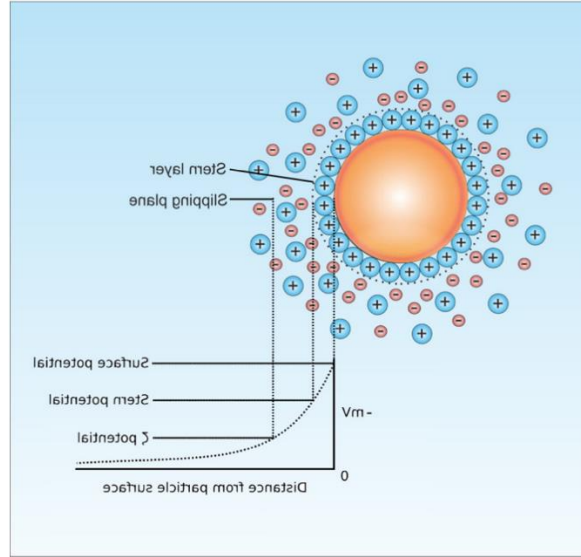


(a)



**Şekil 2.** a) EC prosesi, b) EC prosesi ile giderim mekanizması

EC işlemleri, su içinde özellikle yağ emülsiyonlarının kararsızlaştırılması için etkilidir. Su içinde yağ emülsiyonundaki yağ damlacıkları, damlacık yüzeyinde net yük sergilemektedir. Bu genellikle negatif bir yüküdür ve Helmholtz'un elektriksel çift tabaka teorisi tarafından tanımlandığı gibi, negatif yükler ara yüze hizalanır veya yakından bağlıdır. Bu yükler, elektriksel bir çift katman oluşturan zıt işaretli bir bölgeye yol açan toplu çözeltiden karşı iyonları çekmektedir (Volkov vd., 1996). Yağ yüzeyinden su fazına geçerken, **Şekil 3**'te gösterildiği gibi elektrostatik potansiyel düşmektedir. Çift tabaka tarafından üretilen potansiyel, yağ damlacıkları arasında itici bir etki yaratmaktadır ve böylece tek tek damlacıkların toplanmasını/birleşmesini önlemektedir. Bu itici elektrik potansiyeli, dolaylı olarak zeta potansiyeli ile temsil edilebilir (Liebermann vd., 1989). Zeta potansiyeli, partikül yüzeyindeki sıkıca bağlı iyon tabakasının yüzeyi ile çözeltinin elektro nötral bölgesi arasındaki potansiyel farkı olarak tanımlanmaktadır. Emülsiyon stabilitesi önemli bir göstergedir. Daha yüksek zeta potansiyeli, daha yüksek stabiliteyi göstermektedir.

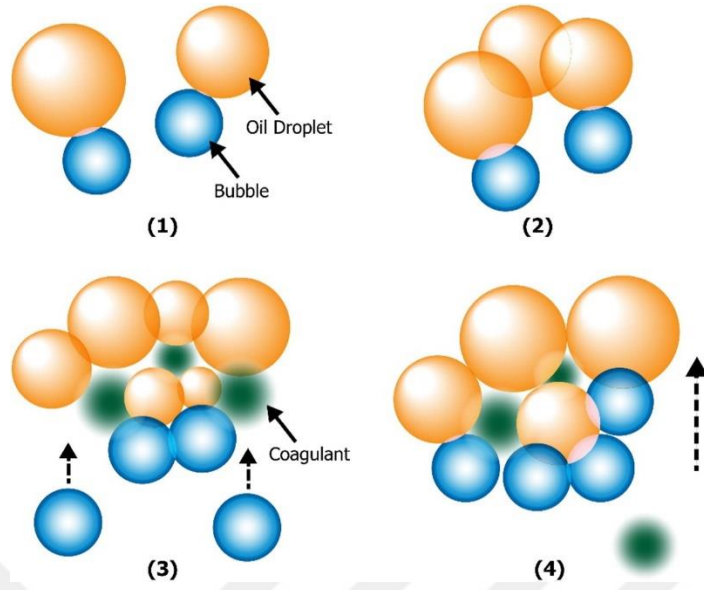


**Şekil 3.** Negatif yüklü yağ damlacığının etrafında elektriksel çift katman ve elektrik potansiyeli.

EC işlemi sırasında, emülsiyonların kırılması şu şekilde özetlenebilir: (i) çözünen anottan üretilen metalik iyonlar tarafından yüklü türlerin etrafındaki dağınık çift tabakanın sıkıştırılması; (ii) anodun elektrokimyasal çözünmesiyle üretilen karşı iyonlar tarafından atık suda bulunan iyonik türlerin yük nötralizasyonudur. Bu karşı iyonlar, elektrostatik parçacıklar arası itmeyi azaltır; (iii) pıhtılaşma sonucu flok oluşumu, kolloidal partikülleri yakalayan ve köprüleyen bir çamur örtüsü oluşturur (Mollah vd., 2004).

Katotta ince hidrojen kabarcıkları üretilmesi ile atık suya karışır ve yağ damlacıkları süspansiyondaki hafif katılara yapışarak onları daha yüzer hale getirmektedir. Yağ veya katı maddeler daha sonra havalandırılmış köpük olarak tankın yüzeyine daha hızlı yükselbilmektedir. Hava kabarcıkları ve yağ damlacıkları arasındaki etkileşim mekanizması REF\_Ref142574492 \hŞekil 4'te gösterilmektedir (Bennett & Peters, 1988). Burada;

- (i) yağ damlacıklarının yüzeyine ince hava kabarcıklarının çarpışması ve bağlanması;
- (ii) gaza bağlı damlacıklar ile aglomera oluşumu arasındaki çarpışma;
- (iii) yükselirken yağ damlacıklarının yumaklaşmış yapısında daha fazla gaz kabarcığının tutulması;
- (iv) süpürme flokülasyonu adı verilen bir süpürme eyleminde flok yapılarının yukarı doğru yükselmesidir.



Şekil 4. Yüzdürme sırasında gaz kabarcıkları ve yağ damlacıkları arasındaki etkileşim mekanizması.

EC reaktörlerindeki kritik parametreler üretilen koagülant ve gaz kabarcıklarını etkilediği için prosesin verimini önemli ölçüde etkilemektedir. Elektrodun malzemesi ve geometrisi, pıhtılaştırıcıları, üretilen kabarcıkların boyutunu ve miktarını değiştirdiğinden EC’de çok önemlidir. Proseste uygulanan elektrik akımı, yüksek metal iyonu çözünme hızına, dolayısıyla daha yüksek pıhtılaştırıcı üretim hızına yol açar. Benzer şekilde elektrik akımının uygulanma süresi de çözünen elektrot miktarını artırmaktadır. Bunun dışında, çözeltinin pH’na bağlı olarak, EC işleminde  $\text{OH}^-$  veya  $\text{H}^+$  üretimi, kolloidlerin aglomerasyonu ve çözünen veya çözünmeyen metal hidroksitler meydana gelebilmektedir. Dolayısıyla tüm bu işletme parametreleri EC’de arıtımı etkileyebilmektedir.

Yağ içeren atıksuların arıtılması için bazı EC çalışması aşağıda özetlenmiştir;

Wang vd. (2023), yapmış oldukları çalışmada, sudaki yağ emülsiyonlarının arıtılması için EC prosesini kullanmışlardır. Bu çalışmada, yeni bir kenar yalıtımlı elektrot malzemesi kullanılarak yağ giderme verimliliğini ve enerji tüketiminin optimize edilmesi hedeflenmiştir. Sonuç olarak yeni elektrot tasarımı ile daha düşük elektrot ve elektrik enerjisi elde edilmiştir. Ayrıca elektrot konfigürasyonunun akım dağılımı üzerinde önemli etkileri olduğu, akımın yönünü değiştirebildiğini ve miktarını artırabildiğini ve daha yüksek ayırma performansı elde ettiğini belirtmişlerdir (J.-Y. Wang vd., 2023).

Akkaya (2022) yaptığı çalışmada ise, hurda elektrotlar kullanarak petrol atıksularını EC prosesi ile arıtımını değerlendirmiştir. Çalışmada, literatürde bildirilenlerden farklı olarak, farklı endüstriler tarafından atılan hurda silindirik delikli demir (PS) ve levha metaller EC için geri kazanılmıştır. Anot olarak PS, katot olarak iki farklı malzemeden (Al ve Fe) yapılmış plaka elektrotlar kullanılmıştır. EC'ye etki eden pH (4–10), reaksiyon süresi (5–45 dakika) ve akım yoğunluğunun (2–28 mA/cm<sup>2</sup>) proses üzerindeki etkileri değerlendirilmiş ve RSM kullanılarak optimize edilmiştir. Sonuç olarak, optimum koşullar pH= 6.30, akım yoğunluğu= 22 mA/cm<sup>2</sup>, 39 dk da maksimum uzaklaştırma verimliliği sırasıyla KOİ ve fenol için %96.18 ve %94.02 olmuştur (Akkaya, 2022).

Song vd. (2022) yaptığı çalışmada ise yağlı atık suyun arıtımı için, geri dönüştürülmüş Al elektrot ile EC yapılmıştır. EC performansı KOİ giderimi üzerinden değerlendirilmiş ve prosese etki eden işletme parametrelerinin (çalışma voltajı, EC süresi, karıştırma hızı ve NaCl konsantrasyonu gibi) prosese etkisini belirlemek için RSM tabanlı BBD modeli kullanılmıştır. RSM sonucu, optimum çalışma voltajı (15 V), EC süresi (10 dk), karıştırma hızı (250 rpm) ve NaCl konsantrasyonu (1 g/L) koşullarında %93,53'lük en yüksek KOİ giderim oranı elde edilmiştir. Çalışma sonrası bulgular, döngüsel ekonominin ve endüstriyel atık suların sürdürülebilir yönetiminin önemini veren emülsifiye edilmiş yağ-su karışımlarının ayrılması için sürdürülebilir EC teknolojisinin geliştirilmesine katkı sağladığını göstermiştir (Song vd., 2022).

Farklı bir çalışmada ise yağ emülsiyonlarından yağın giderilmesi için EC prosesi tercih edilmiştir. Yeni elektrot kombinasyonu (Al plaka-SS ağı) ile EC'de pH=7.0, 25 V ve 60 dk işletme koşullarında %90,86'lık KOİ giderim verimliliği elde edilmiştir. (J. Y. Wang vd., 2022).

Liu vd. (2019) tarafından üçüncül yağ geri kazanım atıksuyunun arıtılması etkinliğini, EC ile gerçekleştirilmiştir. Akım yoğunluğu, başlangıç pH değeri, polimer konsantrasyonu ve elektrot tipinin (Al-Fe) petrol sahası atık sularının EC ile arıtma performansı üzerindeki etkileri incelenmiştir. Prosesin performansı yağ konsantrasyonu ve bulanıklık ölçümü kullanılarak değerlendirilmiştir. Düşük polimer konsantrasyonları, nötr pH ve 4 mA/m<sup>2</sup>'lik akım yoğunluğunun kullanıldığı optimum çalışma koşullarında, sırasıyla %98,99 ve %99,74'lük bir yağ ve bulanıklık giderme oranı sağlanmıştır. Ayrıca Al ve Fe, anot ve katot malzemeleri olarak farklı kombinasyonlarda kullanılmış ve Al elektrotların daha etkili olduğunu belirtilmiştir (Fei Liu vd., 2019).

Dias vd (2019) tarafından bir sentetik yağlı suyun arıtılması için delikli elektrotlar kullanılarak EC gerçekleştirilmiştir. Delikli elektrot kullanılması, delik sayısı, akış hızını ve elektrotlar arasındaki mesafenin EC'ye etkileri incelenmiştir. Elektrota açılan 10 delik ile, 8,83 nihai pH ile  $90,2 \pm 0,3$  oranında yağ giderimi bu çalışma ile sağlanmıştır (Dias vd., 2019).

Yapılan farklı bir araştırmada ise Al anot kullanılarak yüksek KOİ'li gerçek ham bitkisel yağ rafinerisi atık sularının arıtımı için EC kullanılmıştır. Proseste, elektroliz süresi (0–60 dk), uygulanan voltaj (10–20 V) ve elektrot aralığı (2–4 cm) gibi çalışma faktörlerinin KOİ giderimi üzerindeki etkileri belirlenmiştir. BBD kullanılarak işletme faktörleri optimize edilmiş ve elde edilen çalışma koşulları 47 dk, 18 V ve elektrotlar arası mesafe 2,7 cm olmuştur. Bu koşullarda KOİ giderimi  $70,80$  olarak elde edilmiştir. Sonuç olarak, EC işleminin yağlı atık suyun arıtılması için iyi bir yanıt verdiğini ve BBD'nin tahminiyle makul bir uyum içinde olduğunu göstermiştir (Preethi vd., 2019).

Bashir vd. (2016), hurma yağı değirmeni atık sularını arıtmak ve Malezya'daki deşarj standardını karşılamak amacıyla optimize edilmiş bir EC işlemi kullanmışlardır. KOİ, renk ve bulanıklığın maksimum düzeyde giderilmesi ve akım yoğunluğu, temas süresi ve başlangıç pH değeri gibi süreç değişkenlerinin etkileşimlerini optimize etmek için RSM'de CCD modülünü kullanmışlardır.  $56 \text{ mA/cm}^2$  akım yoğunluğu, 65 dk ve 4,5 pH'da  $75,4$  KOİ giderimi sağlanmıştır. Ayrıca renk ve bulanıklık tamamen uzaklaştırılmıştır. İşlem sonunda atıksuyun 7,6'lık pH'ı elde edilmiş ve bu, deşarj standartlarına uygun bulunmuştur (Bashir vd., 2016).

Yapılan bir çalışmada, petrol sondaj çamurlarının sızıntı suyu için EC ve elektro-oksidasyon arıtma uygulaması önerilmiştir. Proses parametrelerinin (pH, akım yoğunluğu, elektroliz süresi ve eklenen elektrolitik miktarı) prosese etkisi incelenmiştir. Proses verimi KOİ giderimi ölçülerek değerlendirilmiştir. Sonuçlar EC (yaklaşık  $95$ ), elektro-oksidasyona (yaklaşık  $78$ ) göre daha etkili bir KOİ giderimi sağladığını göstermiştir (Ighilahriz vd., 2014).

Bir yağ tabaklama endüstrisinden çıkan atık sudaki KOİ'nin giderilmesi için EC ile arıtım tercih edilmiştir. Fe ve Al elektrotların kullanıldığı proseste, elektrolitin doğası, akım yoğunluğu, ilk KOİ ve elektrolit konsantrasyonu gibi çalışma parametrelerinin etkisi incelenmiştir.  $90$ 'lık maksimum KOİ giderimi,  $1 \text{ g/l NaCl}$ ,  $20 \text{ mA/cm}^2$  ve 15 dk'da elde edilmiştir. Optimum koşullarda işletme maliyeti  $6,28 \text{ \$/m}^3$  olarak bulunmuştur. Ayrıca, EC'ye sonikasyon ilavesinin etkisi araştırılmıştır. Prosese verilen ultrasonik

dalgalar elektrot pasivasyonun azaltılmasında kullanılabileceği bulunmuştur. (Maha Lakshmi & Sivashanmugam, 2013).

Dolayısıyla EC prosesi atıksu arıtımında etkili olduğunu görülmektedir (Galvão vd., 2020; Elkacmi vd., 2020; Can-Güven, 2021). Yapılan tüm çalışmalar, bu arıtma prosesinin operasyon basitliği, düşük başlatma süresi, daha iyi uzaklaştırma verimliliği için kimyasallara ihtiyaç duyulmaması, üretilen çamurun yüksek filtrelenebilirliği, yüksek uzaklaştırma verimliliği, kolay ve hızlı kontrollü proses dahil olmak üzere birçok avantajını göstermiştir. Bunun aksine, enerji tüketimi, EC etkinliğini azaltan katot üzerinde oksit filmi oluşumu, gibi dezavantajları bulunmaktadır (Akkaya vd., 2023).

Bu sebeple, EC işleminin diğer arıtma veya ek prosesler ile kullanılması performansını artırabileceğini belirten çalışmalar mevcuttur. Barrera-Díaz vd. (2014), EC sürecini EC-ultrason EC-ozon ve EC-adsorpsiyon prosesleri ile kombine bir şekilde değerlendirmişlerdir (Barrera-Díaz vd., 2014). Bunun dışında farklı ileri oksidasyon destekli EC proseslerinde, sulu ortamda çok güçlü oksitleyici ajan olan serbest hidroksit radikallerin ( $\text{OH}\cdot$ ) oluşması ile daha etkili arıtım sağlanabileceği görülmüştür. Özellikle, sülfat radikali bazlı ileri oksidasyon prosesleri (AOP'ler), doğada kalıcı olsalar bile organik kirleticileri parçalama etkinliği nedeniyle çeşitli endüstriyel atık suların arıtılması için son yıllarda büyük ilgi görmüştür (Nidheesh & Rajan, 2016) .

### **2.3.2. Elektro-Persülfat Prosesi**

Kirleticilerin daha verimli gideriminin sağlanması amacıyla atıksuya güçlü oksitleyiciler eklenmektedir. Bu işlem ileri EC prosesi olarak adlandırılır. Genellikle, oksidan olarak hidroksil ve sülfat radikallerini sağlayan hidrojen peroksit ve PS eklenmektedir.

Son yıllarda, PS anyonları, sulu çözültideki kararlılığı nedeniyle tehlikeli bileşiklerin bozundurulmasında büyük ilgi görmüştür (Liang & Su, 2009). Eklenen PS, EC'de uygulanan akım ile daha yüksek redoks potansiyeline sahip olan sülfat radikallerinin oluşmasını sağlamaktadır. PS anyonunun redoks potansiyeli 2,01 V iken, sülfat radikal formunun kimyasal, termal ve elektriksel yöntemlerle PS aktivasyonu sonucu redoks potansiyeli 2,5–3,0 V aralığında değişmektedir (Zhi vd., 2020). Ayrıca, sülfat radikalinin ömrü (30–40  $\mu\text{s}$ ) daha uzundur ve bu nedenle sülfat radikali daha iyi kütle transfer performansına ve hedef kirleticilerle temas şansına sahiptir. Bunun sebebi, elektron transfer reaksiyonlarına karşı gösterdikleri seçici davranış olarak açıklanabilir

(Liang & Su, 2009). Üstelik, pH ayarlama gerektirmeyen özelliği nedeniyle pH 2,0 ila 8,0 arasında hedef bileşiklerle verimli bir şekilde reaksiyona girebilir. Bu nedenle, bu radikaller organik kirleticilerin bozunması için yüksek potansiyel sunar (Ghanbari vd., 2016).

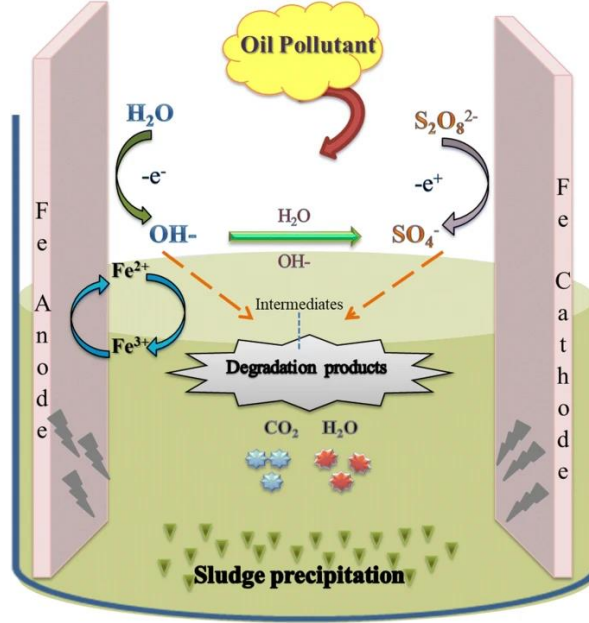


Elektrot olarak genellikle Fe kullanıldığı ve oksidan olarak PS'nin eklendiği EC işlemine elektro-persülfat (EPS) denir. EPS prosesinde, PS, Fe elektrotların çözünmesiyle oluşan Fe iyonları tarafından aktive edilir. Sülfat radikalleri, kimyasal ve anodik reaksiyonlarla elde edilir ve daha fazla PS'nin aktivasyonu için katotta  $Fe^{+3}$  yeniden üretilmesini sağlar (Silveira vd., 2017).



EPS prosesinde, en çok peroksimonosülfat (PMS) ve peroksidisülfat (PDS) tuzları (okson tuzu, potasyum peroksidisülfat ( $K_2S_2O_8$ ); sodyum peroksidisülfat ( $Na_2S_2O_8$ ); ve amonyum peroksidisülfat ( $(NH_4)_2S_2O_8$ ) kullanılmaktadır. PDS tuzları PMS tuzlarına göre daha kararlı, çevre dostu ve ucuzdur, tercihen sülfat radikali bazlı ileri oksidasyon proseslerinde kullanılır. PDS tuzları arasında, sodyum peroksidisülfat, suda potasyum peroksidisülfata göre daha yüksek çözünürlük sunduğundan ve amonyum peroksidisülfatın amonyum iyonları ile reaksiyona girerek sülfat oluşturmak için PDS mevcudiyetini azaltma dezavantajına sahip olduğu için su ve atık su arıtımında en uygun olarak işaret edilmektedir (Karim vd., 2021).

Son çalışmalar, EPS prosesi ile atıksuların arıtılmasının araştırılmasına odaklanmıştır (Dan & Le Luu, 2021; Silveira vd., 2017). Yağ-su emülsiyonlarının veya yağlı atıksuların EPS veya sülfat ile aktif edilmiş EC prosesi ile yapılan bazı çalışmalar aşağıda özetlenmiştir:



Şekil 5. Elektro-persülfat prosesi mekanizması (Senem vd., 2022)

Biyodizel atıksuların arıtımı Senem vd. (2022) tarafından EPS prosesi kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Çalışmada, RSM ve BBD kullanılarak deneysel tasarım oluşturulmuş ve bağımsız değişkenlerin (akım, PS/KOİ oranı, süre) KOİ, yağ-gres, VFA giderimi ve toplam maliyet üzerindeki etkisi ve proses değişkenlerinin etkileşimi belirlenmiştir. Model kullanılarak tahmin edilen maksimum yağ-gres giderim verimi optimum koşullarda (4A, PS/KOİ:4,4 ve 15 dk) %98,3 iken, yapılan doğrulama deneyleri ile elde edilen yağ-gres giderim verimliliği optimum koşullarda %97,2 olmuştur (Yazici Guvenc vd., 2021).

Chen ve Cuhang (2015), petrokimya endüstrisinde önemli bir hammadde olan anilinin sudan ayrıştırılması için elektroaktifleştirilmiş PS oksidasyonu uygulamışlardır. Bu çalışmada, elektro-aktive edilmiş PS prosesinin, atık sudaki anilinin oksidatif bozunması için etkili bir yöntem olduğu doğrulanmıştır. Ayrıca, anilin kirleticilerinin optimum koşullar (6 V, 318 K, PS=ağırlıkça %3,0, pH=3,0 ve N<sub>2</sub>=150 mL/min) altında neredeyse tamamen giderilebildiği belirtilmiştir. Sonuçlar, kurulan elektro-aktive edilmiş PS işleminin, anilinle kirlenmiş atık suyun bertarafı için umut verici bir teknik olabileceğini göstermiştir (Chen & Huang, 2015a). Ayrıca Chen ve Huang, anilin bozunması için EPS işleminin yanısıra ultrasonik ışınlamanın, akustik akışlarla çözeltildeki çözünenin kütle aktarım hızını artırabileceğini bulmuştur. Dolayısıyla yapmış oldukları diğer çalışmada ultrasonik ışınlama ilave edilmesiyle sono-elektro-aktive edilmiş PS oksidasyonu ile atık sudaki anilinin mineralizasyonunun değerlendirmişlerdir.

Sonuç olarak EPS prosesine göre, sülfat radikallerinin veriminin, ultrasonik ışınlamanın yardımıyla önemli ölçüde arttırıldığı görülmüştür (Chen & Huang, 2015b).

Yapılan farklı bir çalışmada ise, zeytin değirmeni atık sularının mineralizasyonu elektro/FeII/PS prosesi kullanılarak incelenmiştir. Her deneysel değişkenin (PS ve FeII konsantrasyonu, arıtma süresi ve sabit akım) zeytin değirmeni atık suyunun mineralizasyonu üzerindeki etkisini incelemek için RSM-CCD kullanılmıştır. KOİ giderme yüzdesi, 200 mA akım, 250 mM PS, 25 mM FeII ve 6 saat reaksiyon süresi olduğu optimum işletme koşullarda 71,2 olarak elde edilmiştir. Ayrıca, toplam fenolik giderimin maksimum yüzdesi ve enerji tüketimi sırasıyla %88 ve 4,50 kWh/kgKOİ olmuştur (Görmez vd., 2020).

Gholami vd. (2021) tarafından yapılan çalışmada, iki gerçek petrol atıksuyu numunesinin arıtımı için Fe elektrotlar kullanılarak EC, PS'nin elektro-aktivasyonu (EC/PS) ve termal aktifleştirilmiş-EC/PS proseslerinin performansı ve etkinliği incelenmiştir. Çalışma koşullarının EC ve EC/PS için farklı yanıtlar üzerindeki etkisini optimize etmek ve bulmak için RSM kullanılmıştır. Sonuçlar EC prosesinin H<sub>2</sub>S (%96), yağ ve gres (%98–99), bulanıklık (%91–97), fosfat fosforları (%94) ve ağır metaller (%92) gideriminde EC/PS'ye göre etkili olduğunu ancak KOİ (%41) ve amonyak giderimi (%8) için yeterli olmadığını göstermiştir. EC/PS'de, 35 A/m<sup>2</sup> akım yoğunluğunda, 30 mM PS'de, 30 dk'lık reaksiyon süresinde, amonyak ve KOİ giderim verimliliği %37 ve %71–94'e yükselmiştir. Amonyak giderimini daha da arttırmak için EC/PS, 65 °C'de termal-PS aktivasyonuna entegre edilmiş ve sonuçlar, termal/EC/PS ile amonyak gideriminin yaklaşık %69'a ulaştığını göstermiştir. Bunun dışında EC/PS, hidrokarbonların çoğunu etkili bir şekilde ortadan kaldıracaktır (Gholami vd., 2021).

Doumbi vd. (2022), Kamerun'daki tabakhanelen kaynaklanan atık suyun grafit kullanılarak elektro-Fenton (EF) ve EPS prosesleri ile arıtılmasını incelemişlerdir. Elektrotlar, geri dönüştürülmüş lityum iyon pillerden elde edilmiştir. En uygun arıtma prosesi ve en az enerji tüketimi değerlendirmek için akım yoğunluğu, elektroliz süresi ve elektrolit konsantrasyonunun etkisini araştırmışlardır. EF prosesi pH=3, I=300mA, Fe<sup>+2</sup>=0,1 mM, 6 saat sürede maksimum %67,25'lik KOİ giderimi için sağlamıştır. EPS ise, pH = 3, I = 300mA, S<sub>2</sub>O<sub>8</sub><sup>-2</sup> = 0,6 mM ve 6 saat sürede %95,62 KOİ giderim verimi elde edilmiştir. Yüksek KOİ giderimi için enerji tüketimi, EF ve EPS'nin sırasıyla 8.357 ve 6.867 kwh/gKOİ maliyetine sahip olduğunu göstermiştir. Dolayısıyla, EPS'nin tabakhane atık sularının ayrıştırılması için en etkili yöntem ve en düşük işletme maliyetine sahip olduğu sonucuna varılmıştır (Doumbi vd., 2022).

Yousefi vd. (2019), petrokimyasal atık su arıtımı için Sono-elektro-aktive edilmiş PS oksidasyon sürecini araştırmışlardır. Çalışmalarında KOİ giderimi için Sono-EPS, EPS, Sono-PS, PS ve ultrason işlemlerinin etkilerini belirlenmiştir. Sonuçlar, maksimum uzaklaştırma veriminin pH=3, ultrasonik güç 300 W, ultrasonik frekans 130 kHz, potansiyel elektrot 10V ve PS konsantrasyonu 20 mM'de elde edildiğini ortaya koymuştur. Etkin KOİ gideriminin sırasıyla kombine sistem Sono-EPS için %82,31, EPS için %68,97, Sono-PS için %21,11, PS için %13,06 ve tek başına ultrason sistemi için %2,6 olduğu gözlemlenmiştir. Sonuçlara göre, Sono-EPS prosesi, petrokimyasal atık su arıtımı için etkili ve verimli bir teknik olarak kabul edilmiştir (Yousefi vd., 2019).

Liu vd. (2019) tarafından, elektro/Fe<sup>+2</sup>/PDS prosesi ile dizel ve Tween 80 içeren toprak yıkama atık sularının arıtılması amaçlanmıştır. Optimum koşullarda, dizelin neredeyse %90'ı giderilebilirken, Tween 80'in yalnızca %32,6'sı bozunmuştur. Toprak solunum testleri, toprak yıkama atığının toksisitesinin, elektro/Fe<sup>+2</sup>/PDS işleminden sonra azaldığını göstermiştir. Elektron paramanyetik rezonans tanımlamaları sonucunda, proste reaktif radikallerin üretildiği ve bu radikallerin esas olarak dizel gideriminden sorumlu olduğunu ileri sürülmüştür. Sonuç olarak, bu araştırma, elektro/Fe<sup>+2</sup>/PDS prosesinin toprak iyileştirme için umut verici bir teknik sunabileceğini belirtmiştir (Fuzhen Liu vd., 2022).

Bashir vd. (2017) tarafından, Malezya'da hurma yağı değirmeni atıksularının son arıtımı olarak EPS oksidasyon sürecini kullanılması önerilmiştir. Maksimum arıtma verimi için RSM-CCD modeli ile operasyonel değişkenlerin etkileşimleri (yani akım yoğunluğu, temas süresi, başlangıç pH'ı ve PS dozajı) analiz ve optimize edilmiştir. 45 mA/cm<sup>2</sup>, 45 dk, pH=4 ve 0,892 g PS ile %77,70 KOİ, %97,96 renk ve %99,72 askıda katı madde giderimi elde edilmiştir (Bashir vd., 2017).

### 3. MATERYAL VE YÖNTEM

#### 3.1. Yağ-su emülsiyonun hazırlanması

Yağ-su emülsiyonu için 1 gr/L sodium dodeksil sülfat ( $C_{12}H_{25}NaO_4S$ ) ve 1ml/L makina yağı saf su ile karıştırılmıştır. Hazırlanan emülsiyonun karakterizasyonu **Tablo 2**' de verilmiştir. Bir ultrasonikasyon (Sonikatör) cihazı (Bandelin Sonopuls HD 3200) yardımıyla (**Şekil 6**), hazırlanan emülsiyon 5 dakika sonike edilmiştir. Daha sonra çözeltinin iletkenliğini arttırmak ve elektrot pasivasyonunu azaltmak için karışıma 2 g/L sodyum klorür (NaCl) ilave edilmiştir.

**Tablo 2.** Hazırlanan yağ emülsiyonunun temel özellikleri

Parametre	Birim	Değer
Sıcaklık	$^{\circ}C$	26±2
pH	-	7,00±0,20
İletkenlik	$\mu S/cm$	1576±20
Başlangıç KOİ değeri	mg/L	5800±100
NaCl konsantrasyonu	g/L	2
Renk	-	Süt beyazı



**Şekil 6.** Sonikatör

### 3.2. Analitik Yöntemler

Bu çalışma kapsamında yağ-su emülsiyonlarının EC ve EPS prosesi ile ayırımında giderim verimliliğini değerlendirmek için KOİ değeri dikkate alınmıştır. KOİ değeri ve yağ konsantrasyonunun giderme eğilimleri temel olarak aynı olduğundan, KOİ giderim oranı prosesler tarafından yağ gidermenin etkinliğini değerlendirmek için kullanılmıştır (Merma vd., 2020).

KOİ, potasyum dikromat yöntemi (Standart Yöntemler 5220-D) ile kapalı reflaks yöntemi kullanılarak analiz edilmiştir. Numunelerin absorbans değerleri DR 6000 HACH spektrofotometresi kullanılarak ölçülmüştür. KOİ giderim verimliliği hesaplamaları aşağıda belirtilen denkleme göre yapılmıştır:

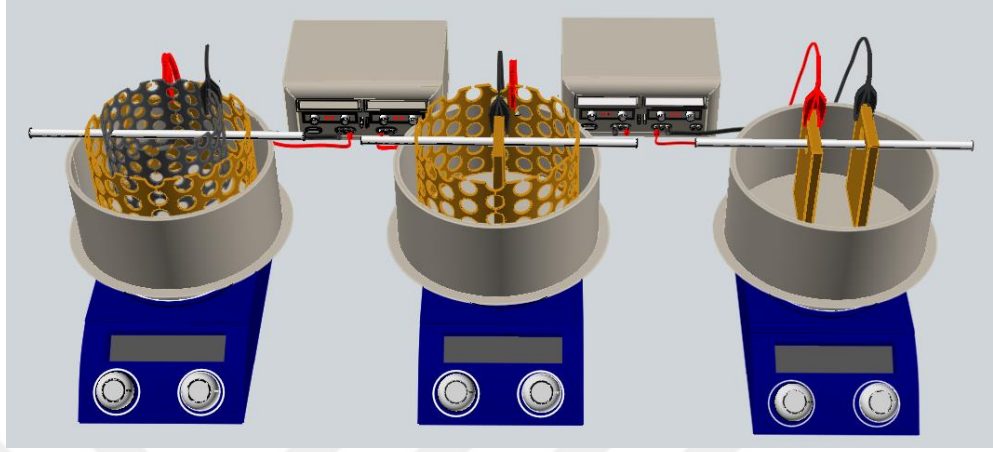
$$R \% = \frac{KOI_0 - KOI_1}{KOI_0} \times 100 \quad (9)$$

Burada KOİ<sub>0</sub> başlangıç kimyasal oksijen ihtiyacıdır; KOİ<sub>1</sub>, EC işleminden sonraki kimyasal oksijen ihtiyacıdır. Yağ-su emülsiyonunun iletkenlik ve pH ölçümleri Hach Multi-HQ40d Cihazları kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Karışımın pH'sını değiştirmek için hidroklorik asit (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 6M, 0.01 M) ve sodyum hidroksit (NaOH, 6M, 0.01 M) kullanılmıştır. Tüm kimyasallar Merck'ten satın alınmıştır.

### 3.3. Deneysel Prosedür

Yağ-su emülsiyonlarının EC ve EPS prosesi ile arıtımı çalışmaları için pleksiglas malzemeden yapılmış bir EC reaktörü kullanılmıştır. Reaktör çapı ve yüksekliği ise 25 cm'dir. Elektrot olarak Fe tercih edilmiştir. Elektrotlara, akımı ve voltajı sırasıyla 0 ile 3A arasında ve 0 ile 30V arasında stabilize edebilen bir DC güç kaynağı ile uygulanmıştır. Deney düzeneğinin bir şeması **Şekil 7**'te gösterilmiştir. EC reaktöründe, elektrotlardan çözünmüş metal iyonları ile yağ-su emülsiyonu taneciklerinin temasını sağlamak ve homojen bir karışım için, 250 rpm'de manyetik bir karıştırıcı vasıtasıyla deneyler sırasında karıştırılmıştır. Her deneysel çalışma öncesi elektrotlar ilk asetonla, daha sonra damıtılmış su ile yıkanmıştır. Deney seti tamamlandıktan sonra, numuneler 1 saat bekletilmiş ve elde edilen üst fazlara KOİ analizi yapılmıştır. Çamur analizleri için deneysel çalışma sonrasında reaktörden çamurlar toplanmış ve bir Whatman no. 125 filtre

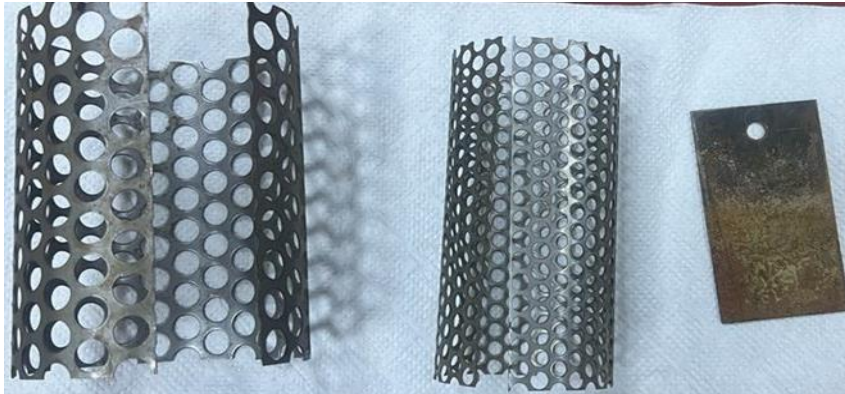
kağıdından geçirilmiştir. Filtre kağıdına toplanan çamur, etüvde 105 °C'de 24 saat kurutulduktan sonra çamurun morfolojik özelliği ve kimyasal analizi SEM-EDX (ZEISS GeminiSEM 500) ve FTIR (FT-IR Thermo Scientific – Nicolet iS20) ile değerlendirilmiştir.



Şekil 7. Deney düzeneğinin şematik diyagramı

### 3.4. Elektrot Konfigürasyonu

Bu tez çalışmasında en iyi arıtma verimi ve düşük enerji maliyeti sağlayan elektrot konfigürasyonu belirlenmiştir. EC'de, iki farklı delik çapına sahip delikli Fe ve plaka Fe (P) elektrotlar kullanılmıştır. Delikli elektrotlardan bir tanesi 1,2 mm delik çapına ( $D_1$ ) sahiptir ve sadece anot olarak kullanılmıştır. Diğer delikli elektrot ise 0,7 mm delik çapına ( $D_2$ ) sahiptir ve katot olarak kullanılmıştır (Şekil 8). Sonuç olarak, çalışma “ $D_1$ - $D_2$ ”, “ $D_1$ -P” “P-P” elektrot çiftleri ile yağ-su emülsiyonlarının 0-150 dk arasında EC ile ayrılması çalışması yapılmıştır. Ekonomik ve verimli arıtım sağlayan elektrot çiftleri ile yağ-su emülsiyonunun EC ve EPS ile giderilmesi için bir deneysel tasarım oluşturulmuştur.



Şekil 8. Farklı geometrik şekillere sahip demir elektrotlar

### 3.5. Deneysel Tasarım

Deneysel tasarım RSM kullanılarak gerçekleştirilmiştir. RSM, çok değişkenli optimizasyon ve süreç modelleme için çok etkili bir istatistiksel araçtır (Inayat vd., 2019). Endüstriyel araştırmalarda, özellikle de bir sürecin özelliklerini etkileyen çok sayıda faktörün bulunduğu durumlarda yaygın olarak kullanılan bir istatistiksel yöntemdir. RSM'nin amacı, deneylerin uygun tasarımı ve analizi yoluyla, bir yanıtı etkileyen bir dizi girdi değişkeni veya faktörün düzeylerini ilişkilendirmeye çalışmak ve optimum çalışma koşullarını veya bir bölgeyi belirlemektir. Dahası, RSM, doğruluğu artırmaya yardımcı olan ve deney sayısını azaltan deneyler tasarlamak için güçlü bir istatistik tabanlı tekniktir (Myers vd., 2016). RSM'de, CCD ve BBD olarak, ikinci dereceden yanıt yüzeyini değerlendirmek ve ikinci dereceden polinom modelleri geliştirmek için ana faktöriyel tasarımlar bulunmaktadır. Bu çalışmada RSM, Minitab yazılımı yardımıyla yağ-su emülsiyonunun EC ve EPS prosesleri ile arıtımında işletme parametrelerini optimize etmek için kullanılmıştır. Ayrıca, karmaşık yanıt işlevini belirlemek için oldukça küçük bir parametre grubuna ihtiyaç duyan ve ağır koşullar altında gerçekleştirilen deneylerden kaçınan BBD tercih edilmiştir. Yazılımda, "stat" sekmesinden Deney Tasarımı (DOE) ayarı ve daha sonra BBD seçilerek deneysel tasarım oluşturulmuştur.

Deneysel tasarım için, üç düzeyli ve EC için üç sürekli faktör (pH, akım yoğunluğu ve maruz kalma süresi) ve EPS için dört sürekli faktör (pH, akım yoğunluğu, PS/KOİ ve maruz kalma süresi) BBD'ye girilmiştir. Her sürekli faktör ardışık olarak " $x_1, x_2, x_3, x_4$ ", üç düzey "-1, 0 ve 1" ve yanıt "Y" olarak kodlanmıştır. %KOİ uzaklaştırma oranları (Y) yanıt olarak kabul edilmiştir. Çalışmalar için dikkate alınan bağımsız değişkenler ve düzeyleri **Tablo 3**'de sunulmuştur. Önerilen BBD modeli, EC için toplam 15 ve EPS için toplam 27 deneysel kombinasyon sağlanmıştır.

**Tablo 3.** Deney tasarım tablosu

Proses	Parametre	-1	0	1
EC	Başlangıç pH'ı	4	7	10
	Akım Yoğunluğu (mA/cm <sup>2</sup> )	3	15	27
	Elektroliz Süresi (dk)	5	25	45
EPS	Başlangıç pH'ı	4	7	10
	Akım Yoğunluğu (mA/cm <sup>2</sup> )	3	15	27
	PS/KOİ	0,5	1	0,5
	Elektroliz Süresi (dk)	5	25	45

Deneysel verilerin istatistiksel analizleri ve varyans analizi (ANOVA) Minitab yazılımı ile yapılmıştır. Bağımsız değişkenler ve yanıtlar arasındaki etkileşimler ANOVA kullanılarak elde edilmiştir. Ek olarak, bir polinom fonksiyonu elde edilmiş, modelin uygunluğu değerlendirilmiştir. Model grafiksel olarak üç boyutlu (3D) etkileşimli grafikler, Pareto ve kontur (2D) grafikleri ile gösterilmiş ve çalışma parametreleri için optimum değerler belirlenmiştir.

### 3.6. Ekonomik analiz

Arıtmanın işletme maliyeti, gerçek bir EC ve EPS tesisi kurmak için önemli bir değişkendir. Genel olarak, EC sürecinin maliyeti büyük ölçüde elektrik enerjisinin maliyetlerine ve elektrot maliyetine bağlıdır (Khandegar and Saroha 2013). EPS prosesinde ek olarak kimyasal maliyeti bulunmaktadır. Sistem maliyeti denklem 10 kullanılarak hesaplanabilmektedir:

$$\text{Toplam maliyet} \left( \frac{\text{€}}{\text{m}^3} \right) = aC_{\text{enerji}} + bC_{\text{elektrot}} + C_{\text{kimyasal}} \quad (10)$$

burada " $aC_{\text{enerji}}$ ", " $bC_{\text{elektrot}}$ " ve " $C_{\text{kimyasal}}$ " sırasıyla elektrik enerjisi tüketimi ( $\text{kWh/m}^3$ ), elektrot tüketimi ( $\text{kg/m}^3$ ) ve kimyasal tüketimini ( $\text{€/m}^3$ ) temsil etmektedir. "a" değeri Türkiye'de 2023 elektrik fiyatı, "b" kullanılan elektrot malzemesinin kg fiyatıdır.  $C_{\text{enerji}}$ ,  $C_{\text{elektrot}}$  ve  $C_{\text{kimyasal}}$  değerleri denklem 11, 12 ve 13 kullanılarak hesaplanabilir:

$$C_{\text{enerji}} = \frac{U \times I \times t}{V} \quad (11)$$

$$C_{\text{elektrot}} = \frac{I \times t \times M}{Z \times F \times V} \quad (12)$$

burada "U", "I", "t" ve "V", sırasıyla uygulanan voltaj (V), akım (A), çalışma süresi (h) ve arıtılmış atık suyun hacmidir (L). Ek olarak, "M", "Z" ve "F", elektrotun moleküler kütlesi, aktarılan elektron sayısı ve Faraday sabitidir ( $96.500 \text{ C / mol}$ ).

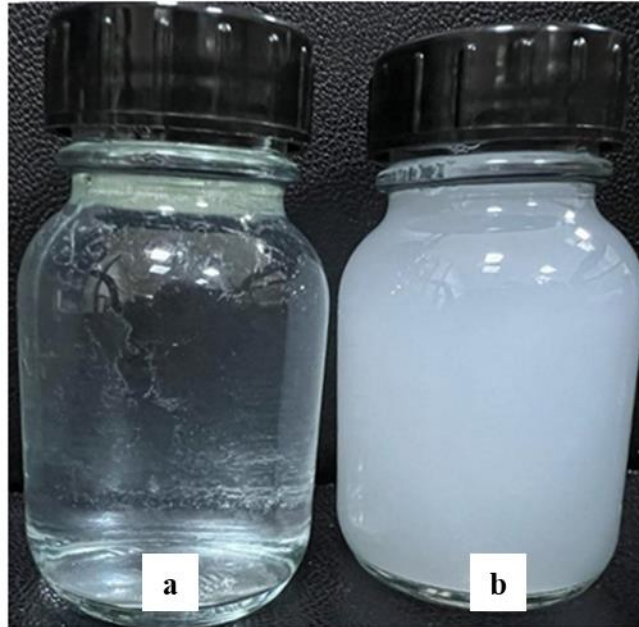
$$C_{\text{kimyasal}} = m \times p \quad (13)$$

Burada "m" tüketilen PS miktarı ( $\text{kg/m}^3$ ) ve "p" 2023 PS piyasa fiyatıdır ( $\text{€/m}^3$ ).

## 4. ARAŞTIRMA SONUÇLARI VE TARTIŞMA

### 4.1. Sonikasyon Etkisi

Sonikasyon, bir sıvıdaki parçacıkları homojen bir şekilde karıştırmak için ses enerjisi uygulama işlemini ifade eder. Genellikle ultrasonik frekanslar (>20 kHz) kullanılır, bu nedenle işlem ultrasonikasyon olarak da bilinmektedir. Sonikasyon ultrasonik banyo veya ultrasonik prob/sonikatör kullanılarak yapılabilmektedir. Bu çalışmada sonikatör EC deneylerinden önce 5 dk boyunca (29,542 kJ) yağ-su emülsiyonlarına doğrudan uygulanmıştır. Şekil 9, sonikasyon öncesi ve sonrası yağ-su emülsiyonları gösterilmiştir.



Şekil 9. Sonikasyon öncesi (a) ve sonrası (b) yağ-su emülsiyonları

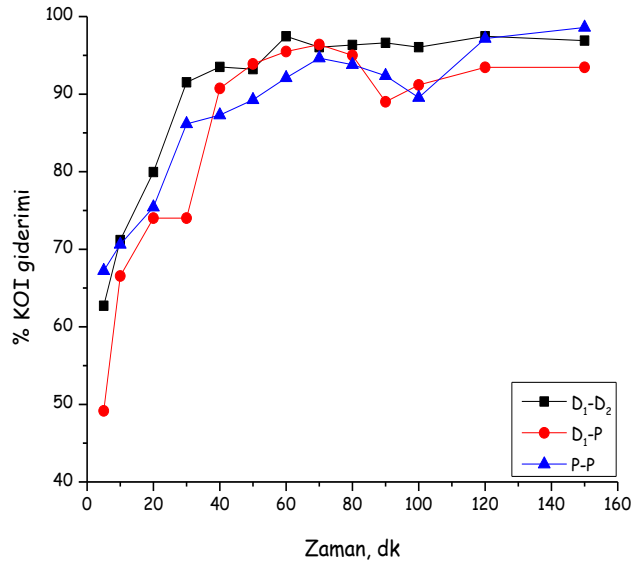
Ultrasonik dalgalar, sıvıda genişleyen ve daha sonra büyük yoğunlukta patlayan vakum kabarcıklarını (boşlukları) ortaya çıkarmaktadır. Kaviteasyon adı verilen bu olay, emülsifikasyon, dispersiyon, partikül boyutu azaltma ve homojenizasyon gibi etkileri sağlamaktadır. EC proseslerinde ise çözeltide iyonlar ve radikaller üretmektedir (Al-Shannag vd., 2015; Prajapati, 2021). Sonik alan EC sırasında koagülasyon oluşum hızını arttırmaktadır (Dizge vd., 2018; Moradi vd., 2021; Patidar & Srivastava, 2022). EC ile ultrasonik dalgaları kullanılması, OH<sup>-</sup> radikallerin atık sularda üretilmesi ile kirleticilerin müteakip oksidasyonunu kolaylaştırılmaktadır. Birçok araştırmacı, çeşitli şekillerde uygulanan ultrasonik dalgaların, kirleticilerin atık sudan uzaklaştırılması için kullanılabileceğini doğrulamıştır (Mirhosseini vd., 2021; Rashtbari vd., 2023;

Torkashvand vd., 2021). Bununla birlikte, karmaşık organik ve inorganik bileşikler içeren atık sularda bulunan kirleticileri oksitlemek için tek başına ultrason kullanılamayacağı da belirtilmiştir (Asaithambi vd., 2017). Bu nedenle sonikasyon ve EC prosesinin bir kombinasyonu, organik/inorganik kirleticilerin arıtımı için geliştirilmiş hibrit bir teknoloji olduğu belirtilmektedir. Sonikasyonun, elektrokimyasal, UV destekli ve ozon gibi diğer arıtma işlemleriyle birleştirildiğinde, bireysel proses uygulamasına kıyasla kirleticilerin atık sudan daha hızlı uzaklaştırılması söz konusudur (Al-Qodah vd., 2018; Raschitor vd., 2014).

#### 4.2. Elektrot Konfigürasyonunun Belirlenmesi

Elektrot tipleri, şekli ve düzenlemesinin EC prosesinin yağ geri kazanımı ve atıksu arıtımı üzerindeki etkisi olduğu belirtilmektedir (Liu vd., 2019, Hussin vd., 2017). Araştırmacılar ayrıca enerji tüketimini azaltmak, elektrot pasivasyonunu önlemek ve arıtma verimliliğini artırmak için EC’de farklı uygulamalar ileri sürmekte ve incelemektedir. Bu sebeple, bu çalışma kapsamında üç farklı geometrik şekle sahip elektrot kullanılmış ve D<sub>1</sub>-D<sub>2</sub>, D<sub>1</sub>-P ve P-P olarak üç farklı elektrot düzeni tasarlanmıştır. Farklı konfigürasyonlar ile EC çalışmaları, 15 mA/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda 150 dk boyunca yapılmıştır.

**Şekil 10**, farklı elektrot konfigürasyonu kullanılarak yağ-su emülsiyonlarının EC ile arıtımı sonrası KOİ giderim verimine ait deney sonuçlarını göstermektedir. Her elektrot düzeni ile elde edilen veriler birbirine yakın sonuçlar sergilemiştir. Ancak D<sub>1</sub>-D<sub>2</sub>, D<sub>1</sub>-P ve P-P göre KOİ giderim verimliliği %1-4 arasında daha yüksek elde edilmiştir. Bunun dışında, yağ-su emülsiyonlarının EC ile arıtılması esnasında 40 dk sonrasında her elektrot çifti için giderim verimliliği aşağı yukarı stabil ilerlemektedir. D<sub>1</sub>-D<sub>2</sub>, D<sub>1</sub>-P ve P-P göre KOİ giderim verimliliği 40 dk’da sırasıyla %94, %91 ve %87 olmuştur. Ayrıca, EC çalışması süresince D<sub>1</sub>-D<sub>2</sub>, D<sub>1</sub>-P ve P-P elektrot çiftlerinde sırasıyla 2,5V, 5,0 V ve 6,2V enerji harcanmıştır. Buna göre, elektrot çiftlerinin enerji tüketimi değerlendirmek için 40 dk elektroliz süresi dikkate alınarak denklem 11’e göre elektrik enerji tüketimi hesaplanmıştır (**Tablo 4**). Delikli elektrotlar ile daha az enerji harcanarak daha yüksek arıtma verimi sağlandığı görülmüştür.



Şekil 10. Farklı elektrot tipleri ile EC çalışması

Tablo 4. Farklı elektrot konfigürasyonlarına ait enerji tüketimi

Elektrot çifti	Voltaj (V)	Akım (A)	Elektroliz süresi (dk)	Hacim (ml)	C <sub>enerji</sub> (kwh/m <sup>3</sup> )	%KOİ
D <sub>1</sub> -D <sub>2</sub>	2,5	1	40	300	5,56	94
D <sub>1</sub> -P	5	1	40	300	11,11	91
P-P	6,2	1	40	300	13,78	87

Yapılan son araştırmalar, delikli elektrot kullanımı ile EC prosesinde yeni bir kütle transfer işlemi meydana geldiğini belirtmektedir. Ayrıca, bu çalışmada ispatlandığı gibi delikli elektrodun ek güç tüketimi olmadan hatta daha az güç tüketimi ile kirleticilerin uzaklaştırılmasında etkili olduğu bildirilmiştir (Hashim vd., 2017; Hashim vd., 2018). Bunun sebebi delikli elektrotlar, daha yüksek bir akım dağılımı sağlamak ve bu sayede atıksudaki kirlenici maddelerle reaksiyona girmek için daha fazla fırsat yakalamaktadır (Hussin vd., 2017, Hashim vd., 2020). Delikli anotun gözenek yapısı doğal olarak kütle transfer sürecini iyileştirebilmekte, çözeltinin homojen duruma daha hızlı ulaşmasını sağlayarak işlem süresini kısaltabilmektedir (Hashim vd., 2020). Örneğin; yağ-su emülsiyonların EC ile arıtımı sonrası KOİ giderim verimi 5 dk elektroliz süresi sonrasında, D<sub>1</sub>-D<sub>2</sub> için %67, D<sub>1</sub>-P için %63 ve P-P için ise %49 olarak kaydedilmiştir. P-P için %67'lik bir KOİ giderim verimi 10 dk sonrası elde edilmiştir. Dolayısıyla kullanılan delikli elektrotlar elektroliz süresinin kısılmasını sağlamıştır. Delikli

elektrotlarda düşük enerji harcanması ve giderim verimliliğinde elektroliz süresinde etkili olması EC proseslerinde enerji tüketiminin azaltılmasını sağlamaktadır. İbrahim vd. (2020) de benzer yaklaşımlarda bulunmuştur (İbrahim vd., 2020). Çalışmasında, plaka elektrotlar ile yapılan EC’de, delikli elektrotlara göre harcanan enerji yaklaşık %70 oranında daha yüksek olabileceğini bildirmiştir (İbrahim vd., 2020). Dias vd. (2019) ise, metal işleme atıksularının EC ile giderimi için delikli elektrot kullanmış, delikli elektrotun kirlenici gideriminde iyileşmeler sağladığını görmüşlerdir (Dias vd., 2019). Sonuç olarak, çalışmalara D<sub>1</sub>-D<sub>2</sub> seçilerek devam edilmiştir.

### 4.3. Model Tasarımı, İstatistiksel Analizi ve ANOVA sonuçları

Yanıt olarak KOİ giderim oranları, belirlenen elektrot konfigürasyonu ile sürekli faktörler olarak EC prosesi için pH, akım yoğunluğu ve elektroliz süresi ve EPS prosesi için pH, akım yoğunluğu, PS/KOİ oranı ve elektroliz süresi seçildikten sonra BBD ile prosesler için model tasarlanmıştır. BBD ile elde edilen EC için 15 ve EPS için 27 deneysel çalışma gerçekleştirilmiş ve bu deneysel çalışmalar sonunda bulunan KOİ giderim verimlilikleri Y olarak programa girilmiştir. RSM analizi yapıldıktan sonra, sürekli faktörlerin BBD'deki yanıtlar üzerindeki etkileşimleri, denklem 14 veya 15 kullanılarak ifade edilmiştir.

$$y = \beta_0 + \sum_i^k \beta_i x_i + \varepsilon \quad (14)$$

$$y = \beta_0 + \sum_i^k \beta_i x_i + \sum_{i=1}^k \sum_{j \geq i}^k \beta_{ij} x_i x_j + \varepsilon \quad (15)$$

burada “ε”, “k”, ve “y” sırasıyla rastgele test hatası, faktör sayısı ve tahmini yanıttır ve sürekli faktörlerdir. “β<sub>0</sub>”, “β<sub>i</sub>”, “β<sub>ij</sub>”, “i”, ve “j” sırasıyla sabit, doğrusal katsayı, etkileşimli katsayı, doğrusal katsayı indeksi ve ikinci dereceden katsayı indeksidir (Kumar & Dinesha, 2018).

Bu denklemler kullanarak çeşitli koşullar altında yağ-su emülsiyonlarının EC ve EPS ile arıtılmasında KOİ giderim verimi ve proseslerin performansını simüle etmek için ampirik modeller geliştirilmiştir. KOİ giderim verimliliğine ait EC ve EPS için kodlanmış değişkenleri ve yaklaşık fonksiyonları için regresyon denklemleri denklem 16 ve 17’de verilmiştir (denklemlerde ve grafiklerde akım yoğunluğu “AY”, elektroliz süresi “ES” olarak gösterilmiştir):

### EC prosesi ile KOİ giderimi eşitliği, %=

$$\%KOİ = 23,9 + 6,29pH + 0,133AY + 2,514ES - 0,367pH * Ph + 0,0125AY * AY - 0,02820ES * ES \\ - 0,0016pH * AY - 0,0488pH * ES - 0,00413AY * ES$$

(16)

### EPS prosesi ile KOİ giderimi eşitliği, %=

$$KOİ = 67,92 + 0,52pH + 0,923AY - 14,81 PS/KOİ + 0,859ES - 0,0313pH * pH \\ - 0,00886AY * AY + 8,95 PS/KOİ * PS/KOİ - 0,00608ES * ES \\ + 0,0295pH * AY - 0,179 pH * PS/KOİ - 0,0105pH * ES \\ - 0,285 AY * PS/KOİ - 0,01652AY * ES - 0,0760 PS/KOİ * ES$$

(17)

Regresyon denklemlerinde sürekli faktörlerin katsayılarına ait pozitif ve negatif işaretler bulunmaktadır. Burada katsayıların pozitif işaretli olması faktörlerin sinerjik etkisine veya birlikte eş etkiye sahip oldukları anlamına gelmektedir. Negatif işaretler ise antagonistik etki yani zıt çalıştıklarını ifade etmektedir. EC prosesine ait denklemde tüm değişkenlerin tek başına pozitif etkiye sahip olduğu görülmektedir. Ancak EPS prosesinde EC'den farklı olarak PS/KOİ değişkeni negatif etki göstermiştir.

Her iki proses için elde edilen bu denklemler ile tahmini KOİ giderim verimleri hesaplanabilmektedir. Dolayısıyla EC ve EPS için BBD ile elde edilen deneysel çalışmaların ve tahmini KOİ giderim sonuçları **Tablo 5**'te verilmiştir. Tablodan açık olarak görülmektedir ki model tahminleri ile deneysel sonuçlar birbirine oldukça yakındır.

**Tablo 5.** Deney setleri ve KOİ giderim verimleri

EC						EPS						
Deney No	ph	AY (mA/cm <sup>2</sup> )	ES (dk)	Deneysel	Tahmini	Deney No	ph	AY (mA/cm <sup>2</sup> )	PS/KOİ	ES (dk)	Deneysel	Tahmini
1	4	15	5	60,00	58,48	1	4	3	1	25	78,00	78,60
2	10	15	5	65,00	63,78	2	10	3	1	25	75,00	76,97
3	4	15	45	91,24	92,35	3	4	27	1	25	81,64	80,45
4	10	15	45	84,52	85,94	4	10	27	1	25	82,88	83,07
5	4	3	25	80,85	83,72	5	7	15	0,5	5	79,00	79,39
6	10	3	25	80,79	83,28	6	7	15	1,5	5	75,00	76,57
7	4	27	25	95,88	93,28	7	7	15	0,5	45	88,00	87,22
8	10	27	25	95,59	92,61	8	7	15	1,5	45	80,96	81,36
9	7	3	5	62,00	60,52	9	4	15	1	5	76,00	74,58
10	7	3	45	94,58	90,52	10	10	15	1	5	78,00	76,34
11	7	27	5	68,00	71,95	11	4	15	1	45	80,73	82,15
12	7	27	45	96,61	97,98	12	10	15	1	45	80,23	81,39
13	7	15	25	85,82	89,72	13	7	3	0,5	25	80,68	80,76
14	7	15	25	90,85	89,72	14	7	27	0,5	25	88,19	88,16
15	7	15	25	92,66	89,72	15	7	3	1,5	25	80,06	79,84
						16	7	27	1,5	25	80,73	80,40
						17	4	15	0,5	25	84,24	84,94
						18	10	15	0,5	25	86,50	85,97
						19	4	15	1,5	25	81,30	81,14
						20	10	15	1,5	25	82,49	81,10
						21	7	3	1	5	69,00	68,51
						22	7	27	1	5	79,00	80,42
						23	7	3	1	45	84,86	82,75
						24	7	27	1	45	79,00	78,80
						25	7	15	1	25	83,16	81,33
						26	7	15	1	25	80,90	81,33
						27	7	15	1	25	80,00	81,33

**Tablo 6** ve **Tablo 7**, iki prosesin KOİ giderim verimlerine ait modelin ANOVA sonuçlarını göstermektedir. ANOVA, geliştirilmiş ampirik modellerin anlamlılık derecesini ve geçerliliğini test etmek için yapılmaktadır (Zarei vd., 2010).

Modelin geçerliliği ANOVA sonuçlarında yer alan  $F$ -değerine,  $P$ -değerine, uyum eksikliğine ve korelasyon katsayısına bağlıdır ( $R^2$ ).  $F$  değeri, modelin ortalama kareler değerinin kalıntı (elde edilen değerler ile model tarafından tahmin edilen değer arasındaki fark) hata oranı olarak tanımlanmaktadır. Eğer modelin deneysel sonuçları tahmin etme kabiliyeti yüksekse,  $F$  değerinin modelde belli bir anlamlılık seviyesinde,  $F$  dağılımı tablo değerinden veya kritik değerden yüksek olması gereklidir (Khataee vd., 2010; Amani-Ghadim vd., 2013). Her iki proseste, geliştirilen modellerin  $F$ -değerleri kritik  $F$  değerlerinden yüksek elde edilmiştir. EC’de  $F$  değeri 13,04 (kritik  $F$  değeri=2,571, %95 anlamlılık seviyesinde) ve EPS için  $F$  değeri 10,78 (kritik  $F$  değeri=2,179, %95 anlamlılık seviyesinde) bulunmuştur.

$P$ -değerleri, 0,05'ten düşük (95% anlamlılık düzeyinde) regresyon modelinin istatistiksel olarak anlamlı olduğunu doğrularken, 0,001'den düşük  $P$  değerleri regresyon modelinin istatistiksel olarak yüksek derecede anlamlı olduğunu doğrulamaktadır (Jaafari vd., 2020). Modelde, 0,05'lik bir anlamlılık düzeyi, yanıt ve değişkenler arasında gerçek bir ilişki olmadığında bir ilişkinin var olduğu sonucuna varma riskinin %5 olduğu anlamına gelmektedir. EC prosesinde elektroliz süresi yüksek derecede önemli ( $P=0,000$ ) bulunmuştur. Bunun dışında akım yoğunluğu  $P$ -değeri 0,029 elde edilmiş ve dolayısıyla 0,05'ten düşüktür. Ancak, pH  $P$ -değeri 0,879 elde edilmiştir. Sonuç olarak, EC prosesinde KOİ giderim verimliliğine etkisi açısından elektroliz süresi ve akım yoğunluğu önemli olduğu ancak pH, modeldeki değişkenlerin sonuçları etkilemediğini göstermektedir. Bu nedenle, KOİ gideriminde pH anlamlı derecede etkili değişken değildir. EPS prosesinde ise, elektroliz süresi, akım yoğunluğu ve PS/KOİ oranı  $P$ -değerleri sırasıyla 0,000, 0,001 ve 0,001 olarak elde edilmiştir. Dolayısıyla, bu değişkenler yanıt üzerinde son derece önemlidir. Ancak EC’de olduğu gibi EPS’de de pH değişkeni  $P$ -değeri (0,585) 0,05'ten büyük bulunmuş ve yanıt üzerinde etkisi önemsizdir. Modelin geçerliliğini belirleyen bir diğer değer ise uyum eksikliği (Lack of Fit) değeridir. RSM'de uyumsuzluğun  $P$ -değeri  $>0,05$  ise (anlamlı değil) modelin iyi uyduğu ve yanıt (KOİ giderim verimi) üzerinde değişkenlerin önemli bir etkisi olduğu anlamına gelmektedir. Buna göre, EC ve EPS proseslerinde uyum eksikliği değerleri sırasıyla 0,357 ve 0,595'tir.

Regresyon katsayısı ( $R^2$ ) deneysel veriler ile öngörülen yanıtlar arasındaki uyum derecesinin belirlenmesi olarak değerlendirilir.  $R^2$ , 1,0'a yakın veya 0,8'in üzerinde bir polinom modelinin deneysel verilere mükemmel bir şekilde uyduğunu gösterir (Huda vd., 2017). Bu çalışmada, yanıtların  $R^2$  değerleri 0,90'ın üzerinde (EC için  $R^2$ =%95,91 ve EPS için  $R^2$ =%92,64) elde edilmiştir.

**Tablo 6.** EC'de KOİ giderimi için ANOVA tablosu

	DF	Kareler toplamı	Kareler ortalaması	F değeri	P değeri	Yorum
Model-KOİ	9	2306,82	256,31	13,04	0,006	Önemli
Linear	3	1746,32	582,11	29,61	0,001	Önemli
pH	1	0,53	0,53	0,03	0,876	Önemsiz
AY	1	179,21	179,21	9,12	0,029	Önemli
ES	1	1566,58	1566,58	79,68	0,000	Önemli
pH*pH	1	40,25	40,25	2,05	0,212	Önemsiz
AY*AY	1	12,02	12,02	0,61	0,47	Önemsiz
ES*ES	1	469,95	469,95	23,9	0,005	Önemli
pH*AY	1	0,01	0,01	0	0,981	Önemsiz
pH*ES	1	34,36	34,36	1,75	0,243	Önemsiz
AY*ES	1	3,93	3,93	0,2	0,673	Önemsiz
Artık	5	98,3	19,66			
Uyum eksikliği	3	73,21	24,4	1,94	0,357	Önemsiz
Saf hata	2	25,09	12,55			
Toplam	14	2405,12				
Model özeti		$R^2$			Düzeltilmiş $R^2$	
		%95,91			%88,56	

**Tablo 7.** EPS’de KOİ giderimi için ANOVA tablosu

	DF	Kareler toplamı	Kareler ortalaması	F değeri	P değeri	Yorum
Model-KOİ	14	404,014	28,858	10,78	0,000	Önemli
Lineer	4	223,827	55,957	20,91	0,000	Önemli
pH	1	0,843	0,843	0,32	0,585	Önemsiz
AY	1	47,414	47,414	17,72	0,001	Önemli
PS/KOİ	1	56,628	56,628	21,16	0,001	Önemli
ES	1	118,942	118,942	44,44	0,000	Önemli
pH*pH	1	0,422	0,422	0,16	0,698	Önemsiz
AY*AY	1	8,689	8,689	3,25	0,097	Önemsiz
PS/KOİ*PS/KOİ	1	26,673	26,673	9,97	0,008	Önemli
ES*ES	1	31,593	31,593	11,8	0,005	Önemli
pH*AY	1	4,501	4,501	1,68	0,219	Önemsiz
pH*PS/KOİ	1	0,288	0,288	0,11	0,749	Önemsiz
pH*ES	1	1,573	1,573	0,59	0,458	Önemsiz
AY*PS/KOİ	1	11,683	11,683	4,37	0,059	Önemsiz
AY*ES	1	62,875	62,875	23,49	0,000	Önemli
PS/KOİ*ES	1	2,31	2,31	0,86	0,371	Önemsiz
Artık	12	32,115	2,676			
Uyum eksikliği	10	26,804	2,68	1,01	0,595	Önemsiz
Saf Hata	2	5,311	2,656			
Toplam	26	436,129				
Model özeti		R <sup>2</sup>			Düzeltilmiş R <sup>2</sup>	
		%92,64			%84,05	

#### 4.3.1. Çalışma Parametrelerinin KOİ Giderimi Üzerine Etkileri

Yağ-su emülsiyonlarının EC ve EPS ile ayrılmasında değişkenlerin KOİ giderim verimi üzerindeki etkisini daha iyi anlamak için, kirlilik giderimlerinin bağımsız faktörlerle ilişkileri, 3D yüzey ve 2D kontur çizimleri kullanılarak incelenmiştir. Yüzey ve kontur çizimlerinde, bir değişken merkezi düzeyde tutulmuş ve diğer değişkenler ise deneysel aralıklar içinde değişmiştir.

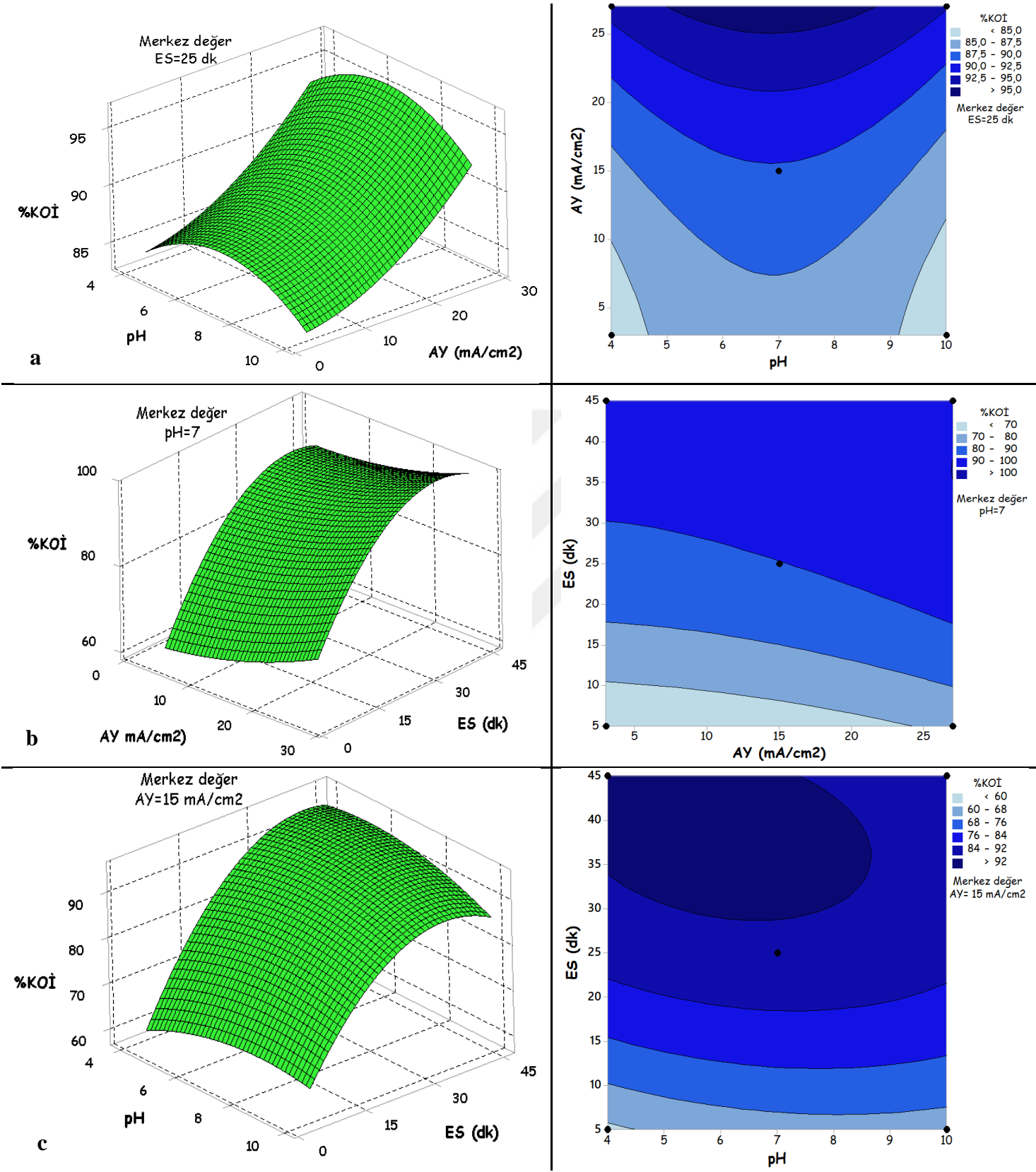
Şekil 11’de, EC’de proses değişkenlerinin KOİ giderim verimi üzerine etkileri 3D yüzey ve 2D kontur grafikleri ile gösterilmektedir. Şekil 11a’da, başlangıç pH’ı ve uygulanan akım yoğunluğu değiştirilirken, elektroliz süresi sabit tutulmuştur (25 dk.). Şekil 11b’de, elektroliz süresi ve uygulanan akım yoğunluğu değiştirilirken, başlangıç pH (7) sabit tutulmuş ve Şekil 11c’de, elektroliz süresi ve başlangıç pH değiştirilirken, uygulanan akım yoğunluğu (15 mA/cm<sup>2</sup>) sabit tutulmuştur.

EC proseslerinde pH önemli rol oynamaktadır ve prosesin verimliliği, işlem sırasındaki pH değişikliklerine bağlıdır (Elabbas vd., 2016). EC’de, başlangıç pH’daki (4-10) değişim akım yoğunluğunun artması ile KOİ giderim verimini etkilemiştir. Ayrıca, yağ-su emülsiyonlarının kendi pH’sında, artan akım yoğunluğu uzaklaştırma verimini artırmıştır. pH=5-9 aralığında 5 mA/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda yaklaşık %85 ve 27 mA/cm<sup>2</sup> bir akım yoğunluğunda ise %95 üzeri bir KOİ giderimi elde edilebileceği kontur grafiklerinde görülmektedir. Benzer durum bazı çalışmalarda da rastlanmıştır (Akkaya, 2022). EC’de, pH değeri 4,5’in altında olduğunda M<sup>+</sup> iyonları baskın türlerdir. Bununla birlikte, pH=4,5–9,5’te, baskın metal kimyasal türler M(OH)<sup>n</sup><sub>(s)</sub> olmaktadır. Aslında, çözeltinin başlangıç pH’ında (pH=5-9), EC işlemi sırasında üretilen polimerik metal kompleksleri, kirletici türlerin yükünü çekebilme ve Fe(OH)<sub>3</sub>’ler olarak metalik hidroksitlerle adsorpsiyon ve destabilizasyonla çözüldükten kirleticileri uzaklaştırabilmektedir. Buradaki EC işlemi sırasında, monomerik/polimerik metal türleri ve pH 5–9’da M(OH)<sub>3(s)</sub> ve pH> 9.5’te M(OH)<sup>-4</sup> oluşmuştur. Ancak, başlangıç pH değişimi aynı elektroliz sürelerinde önemli bir değişiklik sergilememiştir. Örneğin, 25 dk’lık bir elektroliz süresinde başlangıç pH’nın 4’ten 10’a artması ile KOİ giderim verimi %84-92 arasında değişmiştir. EC’de, KOİ giderim verimliliği, başlangıç pH’ındaki değişikliklerle önemli ölçüde değişmemiş olduğu görülmektedir. Deneysel veriler incelendiğinde ise aynı akım yoğunluğu ve elektroliz süresinde (15 mA/cm<sup>2</sup> ve 5 dk) asidik ve bazik pH’da elde edilen KOİ giderim verimliliği sırasıyla %60 ve %65 olmuştur. Ancak elektroliz süresinin 45 dk olması durumunda KOİ giderim verimliliği asidik pH’da %91,24 ve bazik pH’da ise %84,52 olmuştur.

Akım yoğunluğu, metalik iyonların atıksu içerisinde çözünme oranını ve katottan kaynaklı hidrojen kabarcık oluşum oranını, flokların boyutunu ve büyümesini ve giderim verimini doğrudan etkilemektedir (Koby vd., 2011). Faraday Kanunu’na göre akım yoğunluğunun artması anot üzerinde metal iyonlarının oluşumunu arttırmaktadır (Dermouchi vd., 2016; El-Naas vd., 2014). Elektroliz süresi ise, EC’de, elektrotların çözünmesi, hidroksitlerin üretilmesi ve koagülasyonu tamamlamak için yeterli zaman olması gerekmektedir. Ayrıca, elektroliz süresi ve akım yoğunluğu, yağlı atıksuların arıtılmasında ve EC prosesinde meydana gelen elektro-kimyasal reaksiyonun kontrol edilmesinde de kritik faktörlerdir (Kadier vd., 2022). EC prosesinde, artan akım yoğunluğu (3-27 mA/cm<sup>2</sup>) ve elektroliz süreleri (5-45 dk) KOİ giderim verimini önemli şekilde etkilediği görülmektedir. Örneğin, 25 dk bir elektroliz süresinde 15 mA/cm<sup>2</sup>’de %80-90, 20 mA/cm<sup>2</sup>’de ise %90 üzeri bir KOİ giderimi sağlanabilmektedir. Dolayısıyla,

(Faraday yasası) uygulanan akım yoğunluğu EC'deki anodun çözünme hızını doğrudan etkilemiş akım yoğunluğu arttıkça Fe anotun ( $D_1$ ) çözünmesi Fe iyonların yükselmesini ( $Fe^{+2}$  ve  $Fe^{+3}$ ) ve EC prosesi sırasında elektrottan üretilen  $Fe^{+2}$  ve  $Fe^{+3}$ , manyetit  $Fe_3O_4$ ,  $Fe_2O_3$  ve  $Fe(OH)_n$  gibi hidroksit topakları oluşturmak için eşzamanlı hidroliz reaksiyonuna girmesini sağlamıştır (Xu vd., 2020). Sonuç olarak, daha yüksek miktarda  $Fe^{+2}$  ve  $Fe^{+3}$ , daha yüksek pıhtılaşma etkinliğine ve EC işleminde koloidal maddelerin dramatik bir şekilde dengesizleşmesine yol açmıştır (Xu vd., 2020). Benzer şekilde herhangi bir akım yoğunluğu değerinde (örn;  $5 \text{ mA/cm}^2$ ), elektroliz süresinin artması kirletici giderimini artırmaktadır. Elektroliz süresinin artması da çözünmüş anot miktarının artmasına sebep olmuştur. Böylece, yağ-su emülsiyonu içerisindeki kirleticileri hapsetmek için daha yüksek ve çoklu iyon hidroksit kompleksleri üretilmiş ve aynı zamanda kabarcık oluşum hızını da artmıştır. Bu sonuçlar diğer çalışmalarla benzer bulunmuştur (Verma, 2017; Wang vd., 2022).

Bununla birlikte, ideal reaksiyon süresine ulaşıldığında, uzaklaştırma oranı sabit hale gelmekte ve elektroliz süresi ile dalgalanmamakta hatta düşüş eğilimine bile geçmektedir (Zini vd., 2020; Akkaya vd., 2023). Bu durumda, artan metal çözünmesi ve enerji tüketimi nedeniyle elektroliz süresi büyüdükçe bir EC prosesinin işletme maliyeti artmaktadır. Bunun nedeni, anottan çözültüye salınan Fe iyonlarının artan miktarı ile katottan salınan hidrojen gazı oranının artması olabilmektedir. Daha yüksek sayıda hidrojen kabarcığı, pıhtılaştırıcı kristallere daha fazla bağlanmaya neden olur, bu da kristallerin reaktör yüzeyinde daha hızlı yüzdürülmesiyle sonuçlanır (yüzme etkisi). Dolayısıyla bu etki daha önceki çalışmalarda da gösterildiği gibi (Bayar vd., 2011; Can-Güven, 2021) pıhtılaştırıcıların kirleticilerle temasını engelleyebilir ve süreçte verimsiz pıhtılaşmaya neden olabilmektedir.



Şekil 11. EC için 3D Tepki yüzey grafikleri ve 2D kontur grafikleri

Şekil 12, EPS’de proses değişkenlerinin KOİ giderim verimi üzerine etkileri 3D yüzey grafikleri ve 2D kontur grafikleri verilmiştir. Şekil 12a-f’de, iki değişken merkez değerinde sabit tutulmuş ve diğer değişkenlerin birbiri ile ilişkileri gösterilmiştir.

EPS prosesinde, elektriksel akım artışı Fe iyonlarının oluşumunu ve PS bozunma hızını arttırarak, sülfat radikali üretimini sağlamakta, böylece organik madde giderimini arttırmaktadır. Sülfat radikallerinin üretimi, elektron transfer reaksiyonları ve radikallerin söndürülmesinin kombinasyonu ile arttırılmıştır (Chan vd., 2010; Liu vd., 2020).

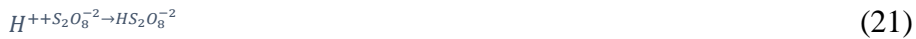
EPS’de, başlangıç pH’da 4-10 arasındaki değişim akım yoğunluğu ve PS/KOİ oranının artması ile KOİ giderim veriminde önemli değişime sebep olmamıştır. Ancak, pH=4’ten sonra KOİ giderim performansı artmaya başlamıştır (Şekil 12a-c). H<sup>+</sup> iyonlarının fazla olduğu ortamda (denklem 18, 19), katalizör görevi gören daha fazla SO<sub>4</sub><sup>-</sup> radikali üretilmesi sağlanır (Asha vd., 2017; Lin vd., 2016). Başka bir deyişle, asidik ortamda, protonlar sülfat radikallerinin oluşumunu katalize edebilir ve böylece KOİ giderme verimliliğinde artışı sağlayabilir. Ancak, pH’nın artmasıyla, FeOH<sup>3</sup>, Fe(OH)<sup>-</sup><sub>4</sub>, Fe(OH)<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>(OH)<sup>4</sup><sub>3</sub> gibi ferrik hidroksitler üretilmektedir. Bu tür Fe’nin PS’yi aktive etme yeteneği çok azdır (Zhou vd., 2013). Şekil 12a’da artan pH ile KOİ gideriminin düşüşü bu nedenledir. Benzer sonuçlar Shokri vd. (2022) tarafından da elde edilmiştir. Ancak, pH EPS prosesinde etkili bir parametre olmamıştır.



Şekil 12d akım yoğunluğu ve elektroliz süresinin EPS prosesinde artması, KOİ giderim verimini orantılı bir şekilde arttırmıştır. Şekilde görüldüğü gibi prosese uygulanan akım yoğunluğu ve elektroliz süresi arttıkça yağ-su emülsiyonlarından KOİ giderimi artmıştır. Çünkü, elektroliz süresi ve uygulanan akım yoğunluğu değeri PS’nin aktivasyonunu doğrudan etkilemektedir. Faraday yasasına göre sistemde elektrotlardan üretilen katalizör ve koagülant görevi gören Fe<sup>+2</sup> ve Fe<sup>+3</sup> katalizörlerin daha yüksek miktarı, daha fazla PS’yi aktive ederek sülfat radikallerinin oluşumunu arttırmaktadır (Kattel & Dulova, 2017). Örneğin; 5 dk bir elektroliz süresinde 5 mA/cm<sup>2</sup>’den 25 mA/cm<sup>2</sup>’ye giderim verimi %69’dan %81’e yükselmiştir. Elektroliz süresindeki artış beklendiği gibi KOİ giderim verimini de arttırmıştır. Elektroliz süresi artması da Fe<sup>+2</sup> konsantrasyonu artarak yüksek oranda organik madde ayrışmasına olanak sağlamaktadır

(Ghanbari & Moradi, 2015). Ayrıca reaksiyon süresinin artması, sülfat radikallerinin organik madde ile temas sürelerini artırarak daha yüksek organik madde ayrışmasına neden olmaktadır. Örneğin; 5 mA/cm<sup>2</sup> sabit akım yoğunluğunda 5 dk elektroliz süresinde %69-72, 45 dk elektroliz süresinde ise >%81 KOİ giderim verimi elde edilmiştir. Organik maddenin uzaklaştırılması şu iki mekanizma ile açıklanabilmektedir. Koagülasyon ((Fe(OH)<sub>n</sub> aracılığıyla) ve oksidasyon (SO<sub>4</sub><sup>-</sup>). Akım yoğunluğunun artmasıyla PS'nin katodik indirgenmesi ve Fe iyonlarının rejenerasyonunu artırılabilir (Chen & Huang, 2015a), (Sruthi vd., 2018). Benzer sonuçlar farklı çalışmalarda da elde edilmiştir (Nidheesh vd., 2023; Shokri vd., 2022).

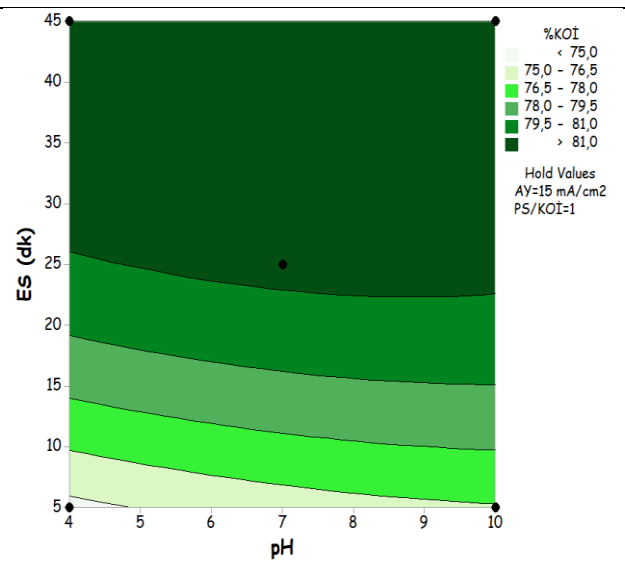
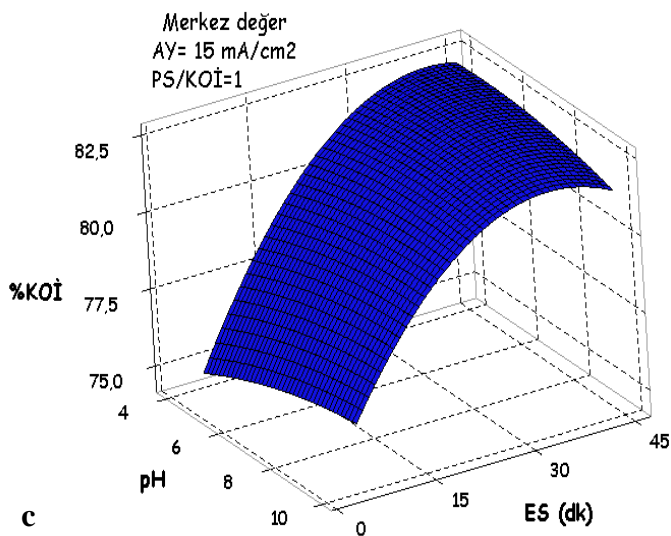
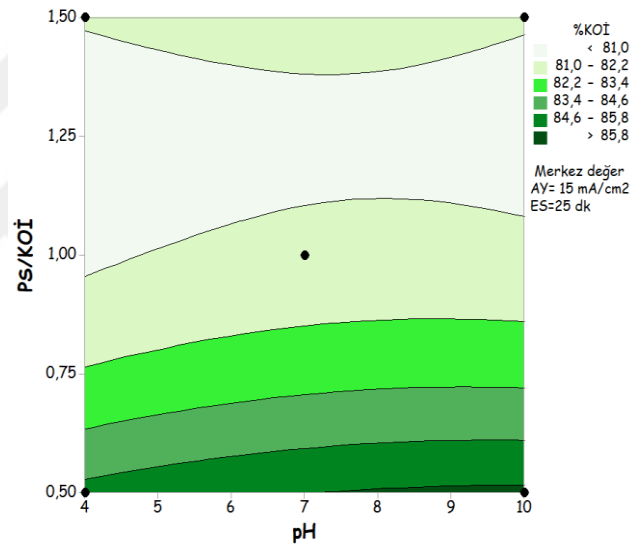
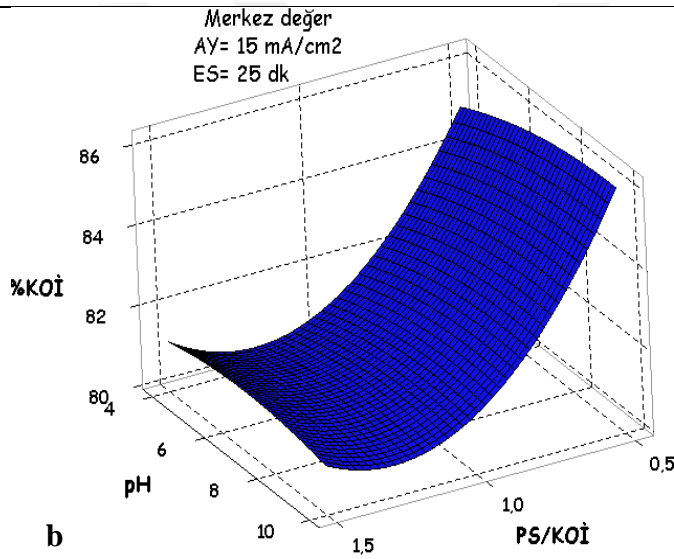
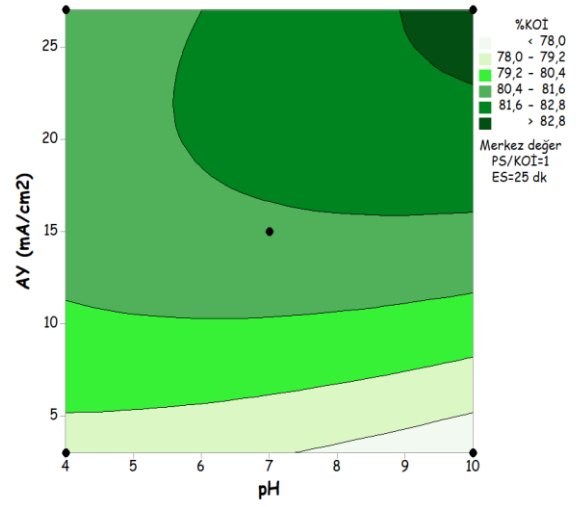
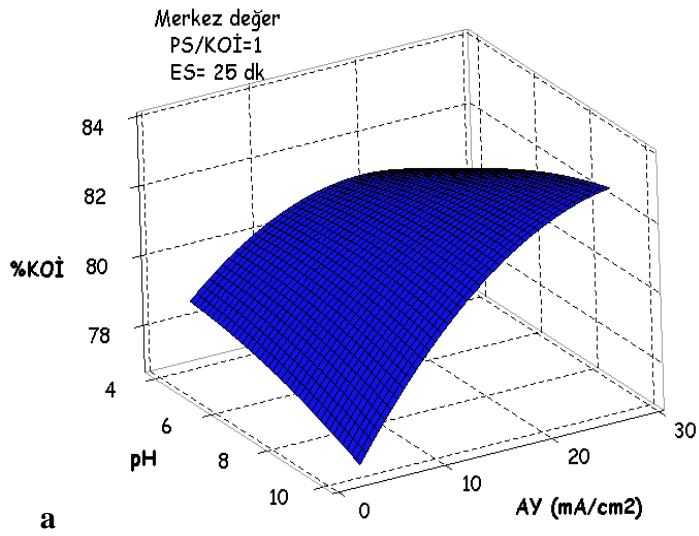
PS/KOİ oranı ise elektroliz süresi ve akım yoğunluğu ile proseste etkili olduğu görülmektedir. Şekil 12e-f' de görüldüğü gibi elektroliz süresi ve uygulanan akımın değeri PS'nin aktivasyonunu doğrudan etkiler. Düşük akım yoğunluğu ve elektroliz sürelerinde, PS/KOİ oranının artması sonucu etkili bir KOİ giderimi sağlanamamıştır. Bunun sebebi, ortama verilen PS'nin miktarının artması ile ekstra PS'nin süpürücü etkisinin oluşmasıdır ve bu KOİ giderme performansını düşürmektedir. Denklemlerde (20-24) görülmektedir. Diğer bir ifadeyle, sülfat radikalleri organik veya inorganik bileşenler yerine yeniden üretilen PS ve birbirleri ile reaksiyona girmektedir (Akbari vd., 2016; Hossein Panahi vd., 2020). PS, sülfat radikallerine göre daha zayıf bir oksidan olduğundan organik madde giderim etkinliği de düşmektedir. Benzer çıktılar Rao vd. (2014) ve Jaafarzadeh vd. (2016) tarafından da elde edilmiştir (Rao vd., 2014; Jaafarzadeh vd., 2016). Sonuç olarak elektroliz süresi ve PS/KOİ oranının EPS prosesi ile organik madde gideriminde en önemli faktörler olduğu sonucuna varılabilir.

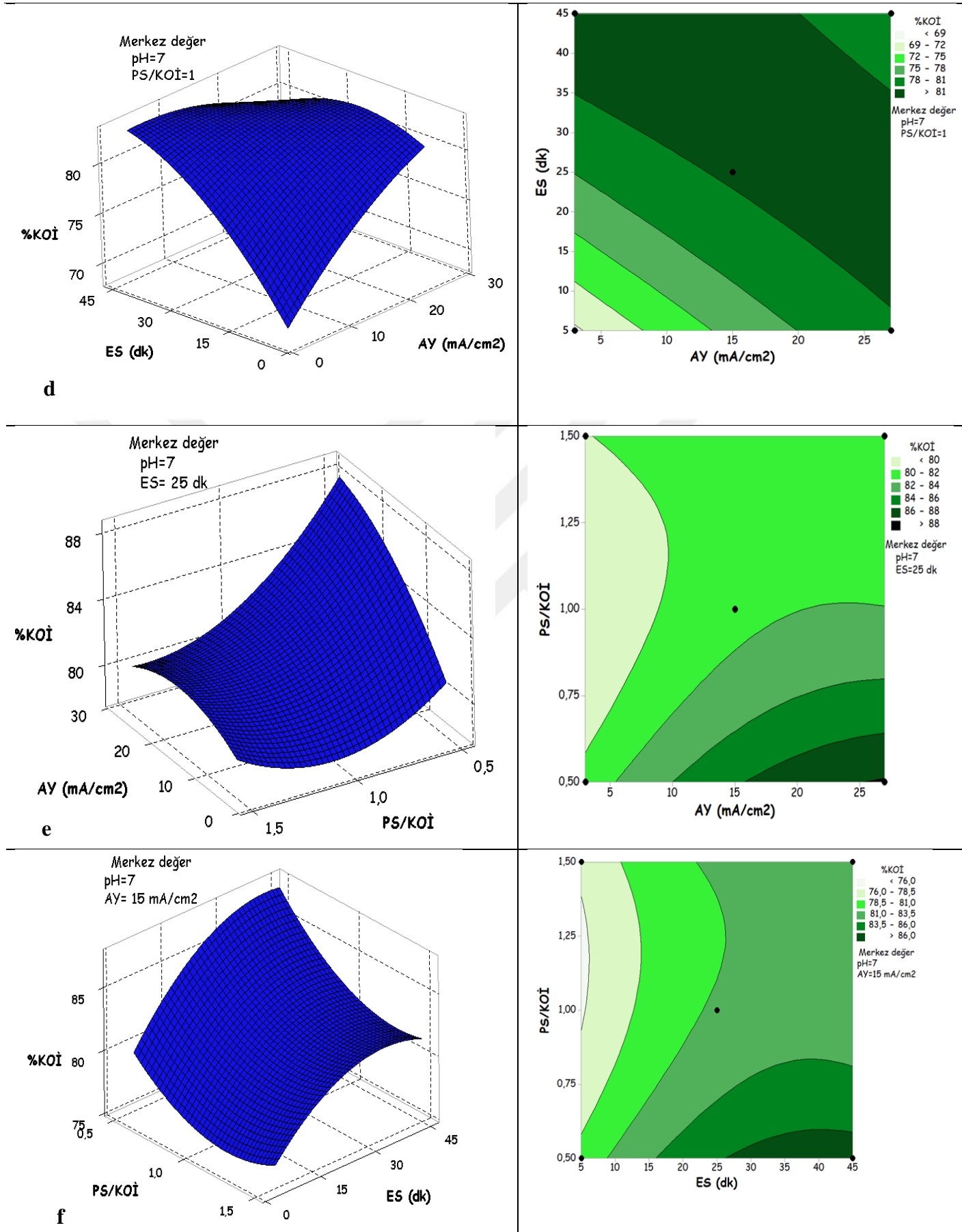


Özellikle PS/KOİ oranı 0,5 olduğunda 5 dk elektroliz süresinde %78,5-81, 45 dk elektroliz süresinde ise %86 üzeri giderim verimi sağlanmıştır. Aynı şekilde aynı PS/KOİ oranında 5 mA/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda %80-82, ve 25 mA/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda ise %88 üzeri giderim verimi elde edilmiştir. PS/KOİ oranının arttırılması yağ-su

emülsiyonlarının uzaklaştırılması hususunda pozitif bir etki yaratmamıştır. PS/KOİ en düşük ve en yüksek oranda elektroliz süresinin değişimi ile KOİ giderim verimi sonuçları benzer elde edilmiştir. Artan PS anyonlarının kirleticilerin bozunması üzerindeki etkisi diğer çalışmalar tarafından doğrulanmıştır (Darsinou vd., 2015; S. Wang vd., 2015; Rao vd., 2014).

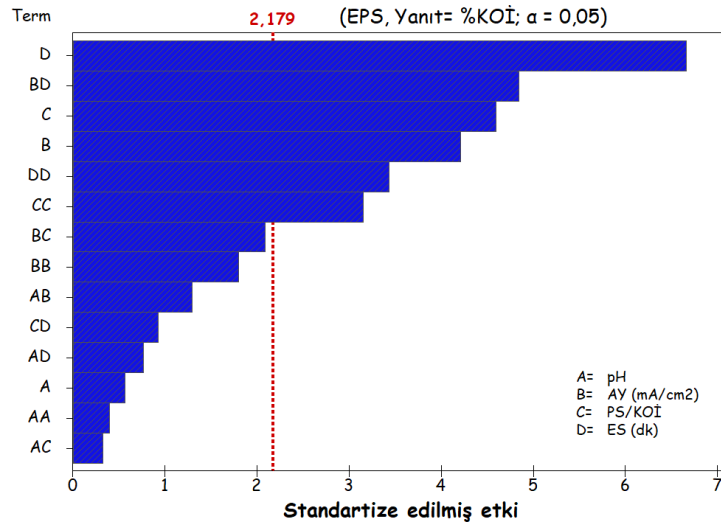
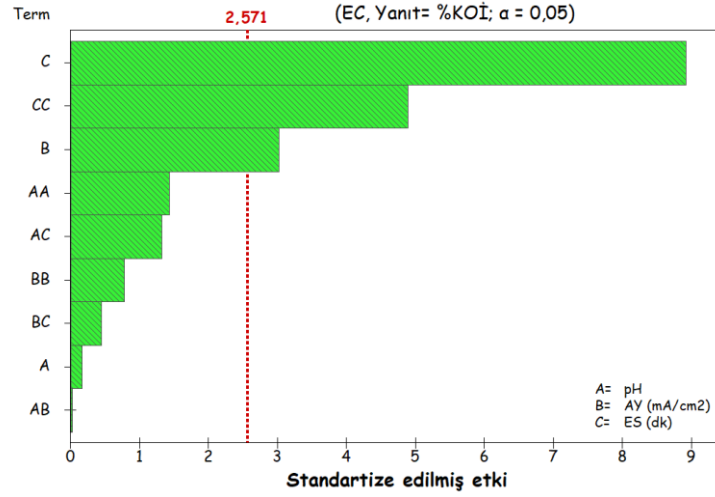






Şekil 12. EPS için 3D Tepki yüzey grafikleri ve 2D kontur grafikleri

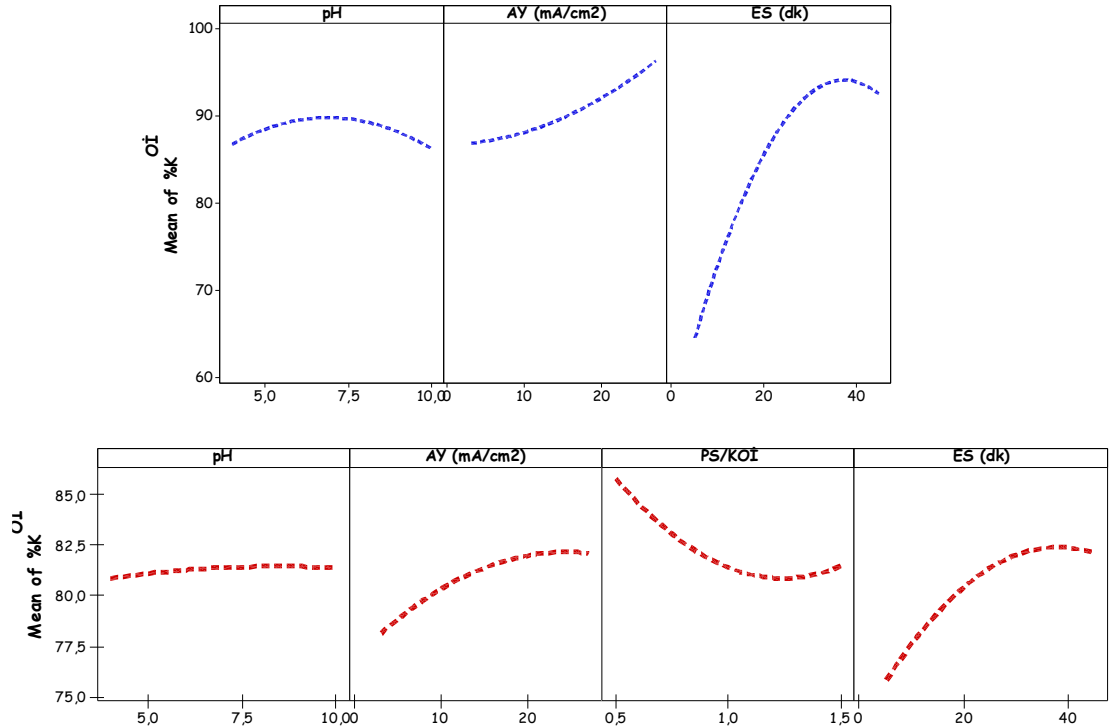
EC ve EPS için KOİ giderimine ait Pareto analizinin sonuçları Şekil 13'te gösterilmektedir. Pareto grafikleri, en büyük etkiden en küçük etkiye kadar standartlaştırılmış etkilerin mutlak değerlerini göstermektedir. Grafikler, hangi etkilerin istatistiksel olarak anlamlı olduğunu belirtmek için bir referans çizgisi çizer. Bu taban çizgisi modelde  $F$  kritik değer olarak da adlandırılmaktadır. Dolayısıyla model sonucu, EC için  $F$  kritik değeri 2,571 ve EPS için 2,179 olmuştur. Kritik değerin veya referans çizgisinin kestiği çubuklar mevcut model açısından 0,05 anlamlılık düzeyinde istatistiksel olarak anlamlıdır. Bu çalışmada KOİ giderimi için Pareto grafiklerinde EC'de C, B, CC, ve EPS için D, BD, C, B, DD ve CC faktörlerini temsil eden çubuklar referans çizgisini kesmektedir.



Şekil 13. EC ve EPS için Pareto Grafikleri

### 4.3.2. Optimizasyon Sonuçlar ve Karşılaştırılma

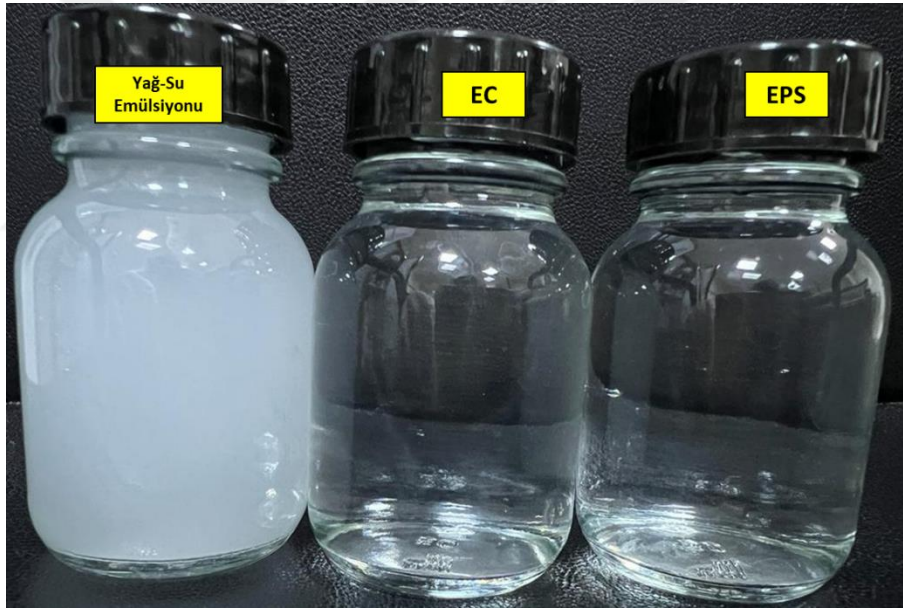
Süreç optimizasyonu, RSM kullanarak deneyler tasarlamının ana hedeflerinden biri olduğu belirtilmiştir. Bu çalışmada EC ve EPS prosesi ile geliştirilen modellerden elde edilen faktörlerin optimum değerleri KOİ giderim etkinliğinin birlikte maksimuma çıkarılması olarak belirlenmiştir. Yanıtlar Minitab yazılımında optimizasyon sekmesinde "en üst düzeye çıkarma" olarak tanımlanırken, pH'ın anlamlı olmayan etkisi dikkate alınarak, pH dışında ilgili tüm parametreler "aralık içinde" olarak ayarlanmıştır. Atıksuyun başlangıç pH'sı her iki proses içinde arıtma verimine etkili bir faktör değildir. Şekil 14'te açıkça görülmektedir. Bu sebeple yağ-su emülsiyonlarının kendi pH'sına yakın nötr pH değeri seçilmiştir. En yüksek KOİ giderim etkinliği değerlerini elde etmek için modellerin önerdiği optimal koşullar Tablo 8'de verilmiştir. Doğrulama deneyleri üç tekrar halinde gerçekleştirilmiş ve ortalama sonuç verilmiştir. Dolayısıyla yağ-su emülsiyonlarının arıtılmasında EC prosesi için optimum koşullar pH=7, akım yoğunluğu = 27 mA/cm<sup>2</sup>, yaklaşık 37 dk'lık bir elektroliz süresi ve EPS prosesi ise pH=7, akım yoğunluğu = 27 mA/cm<sup>2</sup>, PS/KOİ=0,5 ve yaklaşık 25 dk'lık bir elektroliz süresi olmuştur. Sonuçlar, EC ve EPS'de KOİ giderme verimliliğini kabul edilebilir bir doğrulukla tahmin edebileceğini göstermiştir. Şekil 15'te yağ-su emülsiyonlarının EC ve EPS ile ayrılması sonrası çıkış atıksuları verilmiştir.



Şekil 14. Proses parametrelerinin KOİ giderimi için ana etki grafikleri

**Tablo 8.** Optimum çalışma şartları ve doğrulama deneyleri

Parametre	EC	EPS
pH	7	7
Akım Yoğunluğu	27 mA/cm <sup>2</sup>	27 mA/cm <sup>2</sup>
Elektroliz süresi	37 dk	25 dk
PS/KOİ oranı	-	0,5
<b>Model Tahmini Sonuçları</b>		
%KOİ	% 100	% 88,18
<b>Deneysel Sonuçlar</b>		
	97,06	87,96
	98,17	87,85
	96,23	88,02
Ortalama	97,15	87,94
Hata Payı %	2,85	0,24



**Şekil 15.** Yağ-su emülsiyonların EC ve EPS ile ayrılması sonucu çıkış atıksuları

Son yıllarda yağ içeren atıksuların arıtımı sorunu EC ve EPS yöntemi kullanılarak çözülmeye çalışılmakta ve buna yönelik çalışmaların sayısı artmaktadır. Farklı özellikteki bu tür atıksuların arıtılmasında EC performansı kanıtlanmıştır. Örneğin; petrol rafinerisi atıksularının arıtılması için Al ve Fe elektrot kullanılmış ve 90 mA/cm<sup>2</sup> ve 39 dk elektroliz süresinde %85’lik bir KOİ giderimi elde edilmiştir (Martínez-Delgado vd., 2010). Tabakhane atıksularının arıtılmasında ise, Fe elektrot ile 200 mA/cm<sup>2</sup> ve 40 dk’da %95lik bir giderim verimi elde edilmiş ve 6 kWhm<sup>-3</sup> enerji harcanmıştır

(Thirugnanasambandham & Sivakumar, 2016). Bunun dışında, hazırlanan model bir yağ-su emülsiyonlarının EC ile arıtılması esnasında Al ve SS ağ şeklinde elektrotlar ile nötr pH'da 25 V ve 60 dk'da %90,86'lık bir KOİ uzaklaştırılmış ve bunun için elektrik ve elektrot tüketimi sırasıyla 1.54 kWh/kgKOİ ve 0.66 kg/m<sup>3</sup> olmuştur (J. Y. Wang vd., 2022). Bashir vd. (2016), hurma yağı değirmeni atık sularını EC ile 56 mA/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğunda, 65 dk'lık temas süresinde ve 4,5 pH da %75,4 KOİ giderimi elde etmiş ve 39,3 kwh/m<sup>3</sup> (1.9 \$/m<sup>3</sup>) enerji harcamıştır (Bashir vd., 2016). Bu çalışmada ise EC ile diğer çalışmalara kıyasla daha düşük akım yoğunluğu ve elektroliz süresinde (27 mA/cm<sup>2</sup> ve 37 dk) yağ-su emülsiyonlarından %97 KOİ giderim verimi sağlanmıştır. Delikli elektrotların kullanılması ile EC proses veriminin arttığı görülmüştür. Bu durum yapılan farklı çalışmalarda da ifade edilmiştir (Dizge vd., 2018; Moradi vd., 2021; Akkaya, 2022).

Zeytin değirmeni atık sularının mineralizasyonu için EC prosesine Fe ve PS ilave edilmiş ve 200 mA, 250 mM Ps ve 25 mM FeII ve 6 saatte %71,2 KOİ giderimi sağlanmıştır. Ayrıca, enerji tüketimi 4,50 kWh/kgKOİ olmuştur (Görmez vd., 2020). İki petrol atıksuyu numunesinin arıtımı için Fe elektrotlar kullanılarak EC prosesine PS ilave edilmiş ve 35 A/m<sup>2</sup> akım yoğunluğunda, 30 mM PS'de, 30 dk reaksiyon süresinde, KOİ giderim verimliliği %71–94 arası bulunmuştur (Gholami vd., 2021). Bunun için 12,58 \$/m<sup>3</sup> enerji harcanmıştır. Kamerun'daki tabakhaneden kaynaklanan atık suyun arıtılmasında ise EPS prosesi ile pH=3, 300mA, PS = 0,6 mM ve 6 saat sürede %95,62 KOİ giderimi sağlanmıştır. Enerji tüketimi 6.867 kwh/gKOİ olmuştur (Doumbi vd., 2022). Malezya'da hurma değirmeni atıksularının EPS ile arıtımında ise 45 mA/cm<sup>2</sup> akım yoğunluğu, 45 dk ve, pH=4 ve 0,892 g PS ile %77,70 KOİ giderimi elde edilmiştir ve 12.76 kWh/m<sup>3</sup>'lik bir enerji harcanmıştır (Bashir vd., 2017). Bunun dışında sonikasyon desteğinin EPS üzerine etkisi araştırılmış ve EPS'de en yüksek KOİ giderimi pH=3, ultrasonik güç 300 W, ultrasonik frekans 130 kHz, 10V ve PS=20 mM'de %82,31 olmuştur (Yousefi vd., 2019). Bu çalışmada, EPS ile 27 mA/cm<sup>2</sup>, 37 dk ve PS/KOİ=0,5'de %88,18 olmuştur.

Literatür çalışmalarına göre hem EC ve hem de EPS herhangi bir pH ayarlaması gerektirmeden, düşük kimyasal ihtiyacı ile etkili yağ-su emülsiyonlarının ayrılması sağlanmıştır. EC (%97), EPS'ye (%88,18) göre daha verimli bir atıksu giderimi olduğu görülmektedir. Ancak, herhangi bir arıtma prosesinin endüstriyel ölçekte uygulanabilmesi için prosesin ekonomik, çevresel ve teknik kaygıları ele alması gerekir. Yatırım maliyetlerine ek olarak tüketilen enerji, kullanılan elektrot ve kimyasallar gibi,

sürecin uygulanabilirliği ve etkinliği arıtma prosesi tercihinde önemli unsurlardır (Zongo vd., 2012). Bu çalışmada, proseslerin işletme maliyeti hesaplanmış ve

**Tablo 9**'da verilmiştir. Sonikasyon ve ekipman maliyetleri her iki proseste aynı olduğu için EC'de enerji ve elektrot tüketimi, EPS'de ise enerji ve elektrot tüketiminin yanısıra kimyasal maliyeti hesaplanıp prosesler karşılaştırılmıştır.

**Tablo 9.** EC ve EPS için maliyet hesapları

$C_{\text{enerji}}$	I (A)	V (v)	t (dk)	Atıksu Hacmi (L)	$C_{\text{enerji kWh/m}^3}$	$C_{\text{enerji €/m}^3}$	$C_{\text{enerji kWh/kgKOİ}}$	
EC	1,78	7,3	37	0,3	26,71	2,003	4,65	
EPS	1,78	5,6	25	0,3	13,84	1,038	2,66	
$C_{\text{elektrot}}$	I (A)	Fe (g/mol)	t (dk)	Atıksu Hacmi (L)	Elektro sayısı (z)	Faraday Sabiti (F)	$C_{\text{elektrot kg/m}^3}$	$C_{\text{elektrot €/m}^3}$
EC	1,78	56,8	37	0,3	3	96500	0,071	0,058
EPS	1,78	56,8	25	0,3	3	96500	0,048	0,039
$C_{\text{kimyasal}}$	Atıksuya verilen PS miktarı g		PS fiyatı €/kg			$C_{\text{kimyasal (€/m}^3)}$		
EPS	0,885		37,5			0,1106		
$C_{\text{toplam}}$	$€/m^3$		$$/m^3$			$₺/m^3$		
EC	2,061		2,27			61,31		
EPS	1,19		1,31			35,40		

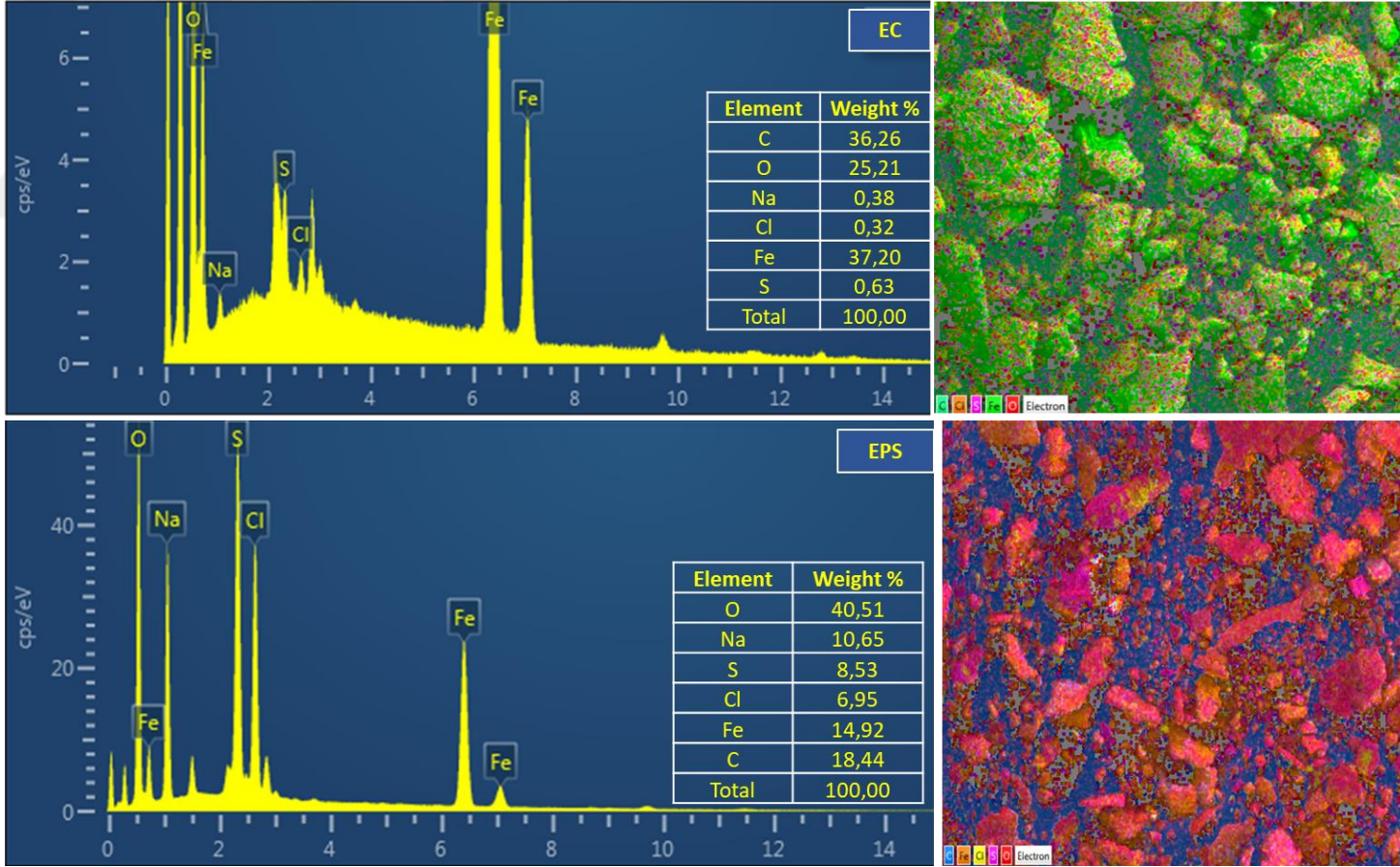
EC de %97 KOİ giderimine karşılık 26,71 kWh/m<sup>3</sup> bir enerji harcanmıştır. EPS de ise %88'lik bir KOİ giderim verimi için 13,84 bir enerji maliyeti söz konusudur. KOİ giderimi açısından EC daha verimli olduğu görülmektedir. Ancak %11'lik giderim verimine karşılık EC'de, EPS'ye göre iki kat enerji sarf edilmektedir. EPS'de uygulanan PS, prosese uygulanan voltajı düşürmüştür. Dolayısıyla elektrotun geç pasivize olmasını sağlayacaktır. Prosele verilen ultrasonik dalgaların elektrot pasivasyonun azaltılmasında kullanılabileceği daha önceki çalışmalarda belirtilmiştir (Maha Lakshmi & Sivashanmugam, 2013). Enerji ve elektrot tüketimleri dikkate alındığında, EPS yağ-su emülsiyonlarının arıtımında tercih edilen proses olabilir. Ancak, atıksu deşarj standartlarını sağlaması hususunda, elde edilen giderim verimi yeterli olmaması durumunda EC prosesi veya EC-EPS hibrit prosesi ile yağ-su emülsiyonlarının ayrılması

için tercih edilebilir. Buna ilaveten EC ve EPS prosesi yapılan çalışmalara göre daha az enerji ve elektrot tüketimi ile yağ-su emülsiyonlarının arıtımını sağlamıştır.

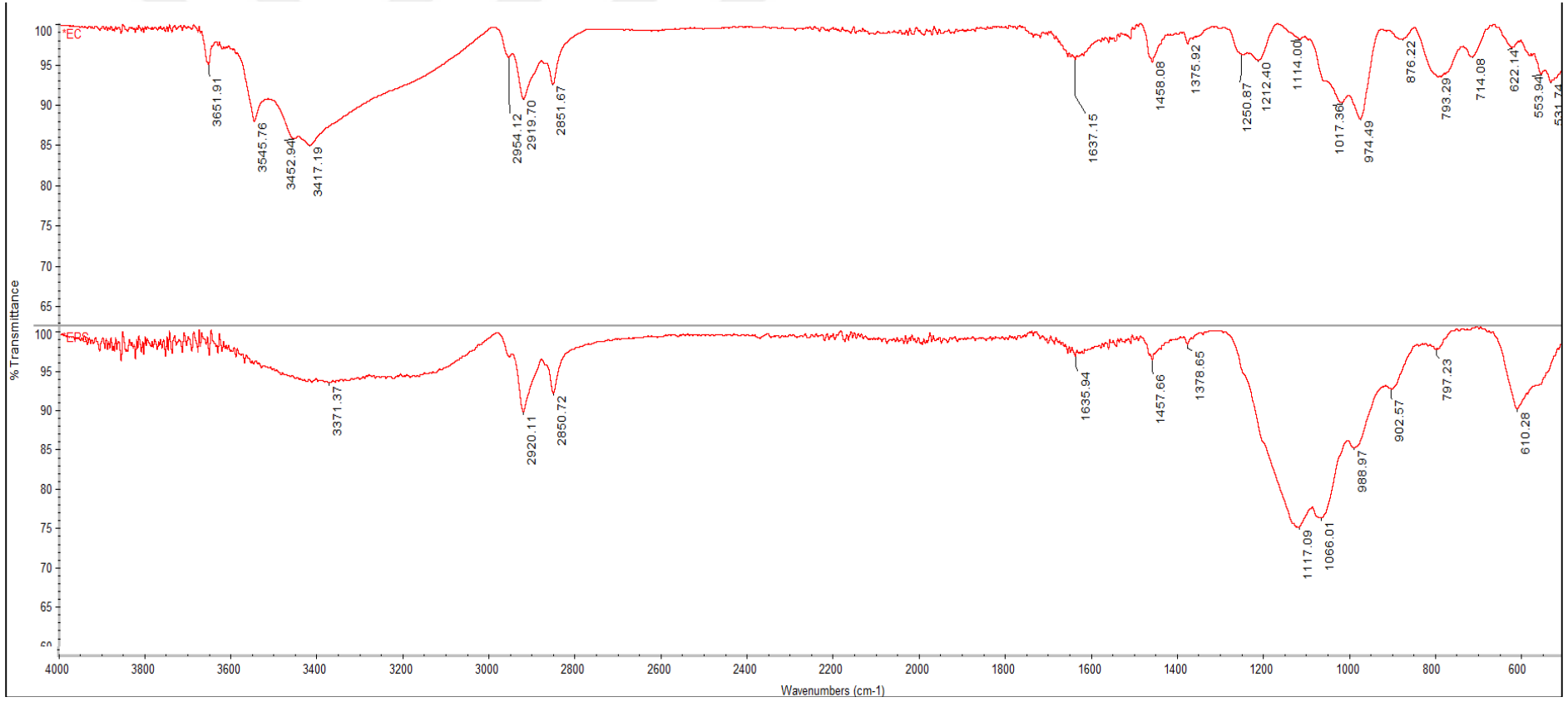
### 4.3.3. Çamur Karakterizasyonu

Optimum değerler altında elde edilen EC ve EPS proseslerinin atık çamuru morfolojisi ve element bileşimi SEM-EDX ile belirlenmiştir. SEM-EDX ile metal tespiti yapılmış ve sonuçlar Şekil 16'da verilmiştir. Proseslerin EDX'inde C, O, Na, Cl, Fe ve S metalleri bulunmuştur. Fe, kullanılan delikli Fe metalik anot ve katodun çözülmesiyle üretilmiş, kirleticilerle reaksiyona girmesi sonucu çökerek atık çamurda birikmiştir. Yüksek C ve O çalışmada kullanılan model yağ-su emülsiyondan kaynaklanmaktadır. EC'de elde edilen S'de model atıksudan kaynaklanmaktadır. Dolayısıyla EC ve EPS çamurunda yağ içeriklerinin olması yağ gideriminin bir kanıtıdır. Ayrıca O, demir hidroksit çökeleklerinden de meydana gelmiş olabilir. Atık çamurlar, model yağ-su emülsiyonunun iletkenliğini artırmak için proses sırasında eklenen NaCl'den gelen Na ve Cl elementlerini yüksek oranda içerir. Bunun dışında, S metali EPS prosesinde PS eklenmesi sonucu çamur numunesinde fazlaca bulunmuştur. Bu unsurlar arıtma çamurunun bertarafı açısından herhangi bir zorluk teşkil etmemektedir.

FTIR analizlerinde hidroksil gruplar, H-bağlı OH gerilmeleri “3570–3200  $\text{cm}^{-1}$  aralığında pik vermektedir (Şekil 17). EC'de ,3651  $\text{cm}^{-1}$ , 3545  $\text{cm}^{-1}$ , 3452  $\text{cm}^{-1}$  ve 3417  $\text{cm}^{-1}$  de pik vermiş, EPS'de ise sadece 3371  $\text{cm}^{-1}$ 'de pik vermiştir. Dolayısıyla, EC'de bu pikler hidroksil gruplarının yoğun olduğunu göstermektedir. İçten bağlı OH gerilmesi “3570–3540  $\text{cm}^{-1}$ ”; Dimerik OH “3550–3450  $\text{cm}^{-1}$ ” pik vermektedir. EC'de ayrıca aromatik primer amin, NH gerilmesi (3415–3380  $\text{cm}^{-1}$ ) Bunun dışında EC'de 2954, 2919 ve 2851 pikleri görülürken, EPS'de 2920ve 2850 pikleri görülmüştür. “3000-2700  $\text{cm}^{-1}$ ” arasındaki pikler -C-H gerilmeleridir. EPS'deki 610  $\text{cm}^{-1}$  piki sülfat iyonunun varlığını kanıtlamıştır (680-610  $\text{cm}^{-1}$ ) (Nandiyanto vd., 2019).



Şekil 16. EC ve EPS proseslerine ait çamurun SEM-EDX analizi



Şekil 17. EC ve EPS için FTIR analizi

## 5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

### 5.1 Sonuçlar

Bu çalışmada, yağ-su emülsiyonları sonikasyon ön işleminden geçirilerek EC ve EPS prosesi ile arıtılması araştırılmıştır. Çalışmada, ilk olarak farklı elektrot konfigürasyonları ile EC çalışması yapılmış ekonomik ve verimli giderim sağlayan elektrot konfigürasyonu belirlenmiştir. Çalışmanın devamında, yağ-su emülsiyonlarının arıtılması için EC ve EPS prosesi RSM'de BBD kullanılarak modellenmiş ve işletme şartları optimize edilmiştir. BBD ile işletme parametrelerinin (EC için pH, akım yoğunluğu ve elektroliz süresi; EPS için pH, akım yoğunluğu, PS/KOİ ve elektroliz süresi), sistem yanıtı (KOİ giderimi) üzerindeki etkileri ve birbirleriyle etkileşimleri ortaya konmuştur.

Nötr pH'da, maksimum KOİ giderimi için model yardımı ile belirlenen optimal işletme şartları EC için 27 mA/cm<sup>2</sup>, 37 dk ve EPS için 27 mA/cm<sup>2</sup>, 25 dk ve PS/KOİ=0,5'dir. Optimum koşullar altında BBD tarafından tahmin edilen ve doğrulama deneyleri sonucu KOİ giderim verimi EC ve EPS için sırasıyla %100, %97,15 ve %88,18 ve %87,94 olarak ve toplam maliyet EC ve EPS için sırasıyla 2,061 €/m<sup>3</sup> ve 1,19 €/m<sup>3</sup> olarak belirlenmiştir. Çalışma neticesinde EC, EPS prosesine göre daha yüksek atıksu arıtma performansı sağlamıştır. Ancak, ekonomik açıdan EPS prosesi daha verimli yağ-su emülsiyonlarının arıtımını sağlamıştır.

### 5.2 Öneriler

Yapılan çalışmada, elektrot tasarımı ile malzeme etkin bir şekilde kullanılmış ve düşük akım yoğunluğu seviyelerinde yüksek kirlilik giderme oranları elde edilmiştir. Yağ içeren tüm atıksular bugün hala arıtılması gereken atıksuların başında gelmektedir. Bu nedenle bu atıksuların ekonomik ve kaliteli arıtılması için çalışmalar devam etmektedir. Bu çalışmada, yağ-su emülsiyonlarının tamamen sulardan ayrılabilmesi için EC yöntemlerinden iki ayrı proses önerilmiştir. Önerilen proseslerde kullanılan elektrotlar, hurda veya atılmış metallere temin edilmesi ve yenilenebilir enerjinin de eklenmesiyle daha da ekonomik bir arıtma sergileyebileceği tahmin edilmektedir. Bunun dışında, hibrit bir proses EC-EPS yaklaşımı ile daha etkili bir arıtım yapılabileceği öngörülmekte ve önerilmektedir.

## 6. KAYNAKLAR

- Adebajo, M. O., Frost, R. L., Kloprogge, J. T., Carmody, O., ve Kokot, S. (2003). Porous materials for oil spill cleanup: a review of synthesis and absorbing properties. *Journal of Porous materials*, 10, ss. 159–170. Springer.
- Akbari, S., Ghanbari, F., ve Moradi, M. (2016). Bisphenol A degradation in aqueous solutions by electrogenerated ferrous ion activated ozone, hydrogen peroxide and persulfate: applying low current density for oxidation mechanism. *Chemical Engineering Journal*, 294, ss. 298–307. Elsevier.
- Akkaya, G. K. (2022). Treatment of petroleum wastewater by electrocoagulation using scrap perforated (Fe-anode) and plate (Al and Fe-cathode) metals: Optimization of operating parameters by RSM. *Chemical Engineering Research and Design*, 187, ss. 261–275. Elsevier.
- Akkaya, G. K., Polat, G., Nalçacı, G., ve Eker, Y. R. (2023). An economical electrocoagulation process of a hazardous anionic azo dye wastewater with the combination of recycled electrodes and solar energy. *Environmental Science and Pollution Research*, ss. 1–17. Springer.
- Al-Qodah, Z., Al-Shannag, M., Bani-Melhem, K., Assirey, E., Yahya, M. A., ve Al-Shawabkeh, A. (2018). Free radical-assisted electrocoagulation processes for wastewater treatment. *Environmental Chemistry Letters*, 16, ss. 695–714. Springer.
- Al-Raad, A. A., ve Hanafiah, M. M. (2021). Removal of inorganic pollutants using electrocoagulation technology: A review of emerging applications and mechanisms. *Journal of Environmental Management*.
- Al-Shannag, M., Al-Qodah, Z., Bani-Melhem, K., Qtaishat, M. R., ve Alkasrawi, M. (2015). Heavy metal ions removal from metal plating wastewater using electrocoagulation: Kinetic study and process performance. *Chemical Engineering Journal*, 260, ss. 749–756. Elsevier B.V.
- AlJaberi, F. Y. (2018). Studies of autocatalytic electrocoagulation reactor for lead removal from simulated wastewater. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 6(5), ss. 6069–6078. Elsevier.
- Amani-Ghadim, A. R., Aber, S., Olad, A., ve Ashassi-Sorkhabi, H. (2013). Optimization of electrocoagulation process for removal of an azo dye using response surface methodology and investigation on the occurrence of destructive side reactions. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 64, ss. 68–78. Elsevier.
- Amosa, M. K., Jami, M. S., Alkhatib, M. F. R., ve Majozi, T. (2016). Studies on pore blocking mechanism and technical feasibility of a hybrid PAC-MF process for reclamation of irrigation water from biotreated POME. *Separation Science and Technology*, 51(12), ss. 2047–2061. Taylor & Francis.

- Asaithambi, P., Aziz, A. R. A., Sajjadi, B., ve Daud, W. M. A. B. W. (2017). Sono assisted electrocoagulation process for the removal of pollutant from pulp and paper industry effluent. *Environmental Science and Pollution Research*, 24, ss. 5168–5178. Springer.
- Asha, T. T., Gandhimathi, R., Ramesh, S. T., ve Nidheesh, P. V. (2017). Treatment of stabilized leachate by ferrous-activated persulfate oxidative system. *Journal of Hazardous, Toxic, and Radioactive Waste*, 21(2), s. 4016012. American Society of Civil Engineers.
- Bajpai, M., ve Katoch, S. S. (2021). Reduction of COD from real graywater by electrocoagulation using Fe electrode: Optimization through box-behnken design. *Materials Today: Proceedings*, Elsevier Ltd.
- Bajpai, M., Singh Katoch, S., ve Singh, M. (2020). Optimization and economical study of electro-coagulation unit using CCD to treat real graywater and its reuse potential. *Environmental Science and Pollution Research*.
- Barrera-Díaz, C. E., Roa-Morales, G., Hernández, P. B., Fernandez-Marchante, C. M., ve Rodrigo, M. A. (2014). Enhanced electrocoagulation: New approaches to improve the electrochemical process. *Journal of Electrochemical Science and Engineering*, 4(4), ss. 285–296. Međunarodna udruga fizikalnih kemičara.
- Bashir, M. J. K., Mau Han, T., Jun Wei, L., Choon Aun, N., ve Abu Amr, S. S. (2016). Polishing of treated palm oil mill effluent (POME) from ponding system by electrocoagulation process. *Water science and technology*, 73(11), ss. 2704–2712. IWA Publishing.
- Bashir, M. J. K., Wei, C. J., Aun, N. C., ve Amr, S. S. A. (2017). Electro persulphate oxidation for polishing of biologically treated palm oil mill effluent (POME). *Journal of environmental management*, 193, ss. 458–469. Elsevier.
- Bayar, S., Yildiz, Y. S., Yilmaz, A. E., ve Irdemez, S. (2011). The effect of stirring speed and current density on removal efficiency of poultry slaughterhouse wastewater by electrocoagulation method. *Desalination*, 280(1–3), ss. 103–107. Elsevier.
- Bennett, G. F., ve Peters, R. W. (1988). The removal of oil from wastewater by air flotation: a review. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 18(3), ss. 189–253. Taylor & Francis.
- Bensadok, K., El Hanafi, N., ve Lopicque, F. (2011). Electrochemical treatment of dairy effluent using combined Al and Ti/Pt electrodes system. *Desalination*, 280(1–3), ss. 244–251. Elsevier.
- Bhuptawat, H., Folkard, G. K., ve Chaudhari, S. (2007). Innovative physico-chemical treatment of wastewater incorporating Moringa oleifera seed coagulant. *Journal of Hazardous Materials*, 142(1–2).
- Boczkaj, G., ve Fernandes, A. (2017). Wastewater treatment by means of advanced oxidation processes at basic pH conditions: a review. *Chemical Engineering*

- Journal*, 320, ss. 608–633. Elsevier.
- Bratskaya, S., Avramenko, V., Schwarz, S., ve Philippova, I. (2006). Enhanced flocculation of oil-in-water emulsions by hydrophobically modified chitosan derivatives. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 275(1–3), ss. 168–176. Elsevier.
- Can-Güven, E. (2021). Advanced treatment of dye manufacturing wastewater by electrocoagulation and electro-Fenton processes: Effect on COD fractions, energy consumption, and sludge analysis. *Journal of Environmental Management*, 300, s. 113784. Academic Press.
- Can, O. T., Kobya, M., Demirbas, E., ve Bayramoglu, M. (2006). Treatment of the textile wastewater by combined electrocoagulation. *Chemosphere*, 62(2).
- Chen, W.-S., ve Huang, C.-P. (2015a). Mineralization of aniline in aqueous solution by electrochemical activation of persulfate. *Chemosphere*, 125, ss. 175–181. Elsevier.
- Chen, W.-S., ve Huang, C.-P. (2015b). Mineralization of aniline in aqueous solution by electro-activated persulfate oxidation enhanced with ultrasound. *Chemical Engineering Journal*, 266, ss. 279–288. Elsevier.
- Dan, N. H., ve Le Luu, T. (2021). Continuous flow sequencing bed biofilm reactor biodegraded landfill leachate treatment using electrocoagulation-persulfate. *Journal of Environmental Management*, 297, s. 113409. Elsevier.
- Darsinou, B., Frontistis, Z., Antonopoulou, M., Konstantinou, I., ve Mantzavinos, D. (2015). Sono-activated persulfate oxidation of bisphenol A: kinetics, pathways and the controversial role of temperature. *Chemical engineering journal*, 280, ss. 623–633. Elsevier.
- Deepti, Sinha, A., Biswas, P., Sarkar, S., Bora, U., ve Purkait, M. K. (2020). Utilization of LD slag from steel industry for the preparation of MF membrane. *Journal of Environmental Management*, 259.
- Dermouchi, A., Mossaab, B.-L., Arris, S., Nedeff, V., ve Barsan, N. (2016). Aspects Regarding The Electrocoagulation Applications in the Water and Wastewater Treatment. *Journal of Engineering Studies and Research*, 21(2).
- Dias, O. A., Muniz, E. P., ve da Silva Porto, P. S. (2019). Electrocoagulation using perforated electrodes: an increase in metalworking fluid removal from wastewater. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 139, ss. 113–120. Elsevier.
- Dickhout, J. M., Moreno, J., Biesheuvel, P. M., Boels, L., Lammertink, R. G. H., ve De Vos, W. M. (2017). Produced water treatment by membranes: a review from a colloidal perspective. *Journal of colloid and interface science*, 487, ss. 523–534. Elsevier.
- Dizge, N., Akarsu, C., Ozay, Y., Gulsen, H. E., Adiguzel, S. K., ve Mazmanci, M. A. (2018). Sono-assisted electrocoagulation and cross-flow membrane processes for

- brewery wastewater treatment. *Journal of Water Process Engineering*, 21, ss. 52–60. Elsevier.
- Doumbi, R. T., Noumi, G. B., ve Ngobtchok, B. (2022). Tannery wastewater treatment by electro-Fenton and electro-persulfate processes using graphite from used batteries as free-cost electrode materials. *Case Studies in Chemical and Environmental Engineering*, 5, s. 100190. Elsevier.
- El-Naas, M. H., Alhaija, M. A., ve Al-Zuhair, S. (2014). Evaluation of a three-step process for the treatment of petroleum refinery wastewater. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 2(1), ss. 56–62. Elsevier B.V.
- Elabbas, S., Ouazzani, N., Mandi, L., Berrekhis, F., Perdicakis, M., Pontvianne, S., vd. (2016). Treatment of highly concentrated tannery wastewater using electrocoagulation: Influence of the quality of aluminium used for the electrode. *Journal of Hazardous Materials*, 319, ss. 69–77. Elsevier B.V.
- Elkacmi, R., Boudouch, O., Hasib, A., Bouzaid, M., ve Bennajah, M. (2020). Photovoltaic electrocoagulation treatment of olive mill wastewater using an external-loop airlift reactor. *Sustainable Chemistry and Pharmacy*, 17(May), s. 100274. Elsevier B.V.
- Galvão, N., de Souza, J. B., ve de Sousa Vidal, C. M. (2020). Landfill leachate treatment by electrocoagulation: Effects of current density and electrolysis time. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 8(5), ss. 1–8.
- Ghanbari, F., ve Moradi, M. (2015). A comparative study of electrocoagulation, electrochemical Fenton, electro-Fenton and peroxi-coagulation for decolorization of real textile wastewater: Electrical energy consumption and biodegradability improvement. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 3(1), ss. 499–506. Elsevier.
- Ghanbari, F., Moradi, M., ve Gohari, F. (2016). Degradation of 2, 4, 6-trichlorophenol in aqueous solutions using peroxymonosulfate/activated carbon/UV process via sulfate and hydroxyl radicals. *Journal of Water Process Engineering*, 9, ss. 22–28. Elsevier.
- Gholami, M., Souraki, B. A., ve Pendashteh, A. (2021). Electro-activated persulfate oxidation (EC/PS) for the treatment of real oilfield produced water: Optimization, developed numerical kinetic model, and comparison with thermal/EC/PS and EC systems. *Process Safety and Environmental Protection*, 153, ss. 384–402. Elsevier.
- Görmez, F., Görmez, Ö., Yabalak, E., ve Gözmen, B. (2020). Application of the central composite design to mineralization of olive mill wastewater by the electro/FeII/persulfate oxidation method. *SN Applied Sciences*, 2, ss. 1–11. Springer.
- Hashim, K. S., Idowu, I. A., Jasim, N., Al Khaddar, R., Shaw, A., Phipps, D., vd. (2018). Removal of phosphate from River water using a new baffle plates electrochemical reactor. *MethodsX*, 5, ss. 1413–1418. Elsevier.
- Hashim, K. S., Kot, P., Zubaidi, S. L., Alwash, R., Al Khaddar, R., Shaw, A., vd. (2020).

- Energy efficient electrocoagulation using baffle-plates electrodes for efficient Escherichia Coli removal from Wastewater. *Journal of Water Process Engineering*, 33, s. 101079. Elsevier.
- Hashim, K. S., Shaw, A., Al Khaddar, R., Pedrola, M. O., ve Phipps, D. (2017). Iron removal, energy consumption and operating cost of electrocoagulation of drinking water using a new flow column reactor. *Journal of environmental management*, 189, ss. 98–108. Elsevier.
- Hossein Panahi, A., Meshkinian, A., Ashrafi, S. D., Khan, M., Naghizadeh, A., Abi, G., vd. (2020). Survey of sono-activated persulfate process for treatment of real dairy wastewater. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 17, ss. 93–98. Springer.
- Huang, D., Hu, C., Zeng, G., Cheng, M., Xu, P., Gong, X., vd. (2017). Combination of Fenton processes and biotreatment for wastewater treatment and soil remediation. *Science of the Total Environment*.
- Huda, N., Raman, A. A. A., Bello, M. M., ve Ramesh, S. (2017). Electrocoagulation treatment of raw landfill leachate using iron-based electrodes: effects of process parameters and optimization. *Journal of environmental management*, 204, ss. 75–81. Elsevier.
- Hussin, F., Abnisa, F., Issabayeva, G., ve Aroua, M. K. (2017). Removal of lead by solar-photovoltaic electrocoagulation using novel perforated zinc electrode. *Journal of cleaner production*, 147, ss. 206–216. Elsevier.
- Ibrahim, M. H., Moussa, D. T., El-Naas, M. H., ve Nasser, M. S. (2020). A perforated electrode design for passivation reduction during the electrochemical treatment of produced water. *Journal of Water Process Engineering*, 33(July 2019), s. 101091. Elsevier.
- Ighilahriz, K., Ahmed, M. T., Djelal, H., ve Maachi, R. (2014). Electrocoagulation and electro-oxidation treatment for the leachate of oil-drilling mud. *Desalination and Water Treatment*, 52(31–33), ss. 5833–5839.
- Inayat, M., Sulaiman, S. A., ve Kurnia, J. C. (2019). Catalytic co-gasification of coconut shells and oil palm fronds blends in the presence of cement, dolomite, and limestone: Parametric optimization via Box Behnken Design. *Journal of the Energy Institute*, 92(4), ss. 871–882. Elsevier.
- Iskandar, M. J., Baharum, A., Anuar, F. H., ve Othaman, R. (2018). Palm oil industry in South East Asia and the effluent treatment technology—A review. *Environmental technology & innovation*, 9, ss. 169–185. Elsevier.
- Jaafari, J., Barzanouni, H., Mazloomi, S., Farahani, N. A. A., Sharafi, K., Soleimani, P., vd. (2020). Effective adsorptive removal of reactive dyes by magnetic chitosan nanoparticles: kinetic, isothermal studies and response surface methodology. *International journal of biological macromolecules*, 164, ss. 344–355. Elsevier.

- Jaafarzadeh, N., Omidinasab, M., ve Ghanbari, F. (2016). Combined electrocoagulation and UV-based sulfate radical oxidation processes for treatment of pulp and paper wastewater. *Process Safety and Environmental Protection*, 102, ss. 462–472. Elsevier.
- Kadier, A., Al-Qodah, Z., Akkaya, G. K., Song, D., Peralta-Hernández, J. M., Wang, J. Y., vd. (2022). A state-of-the-art review on electrocoagulation (EC): An efficient, emerging, and green technology for oil elimination from oil and gas industrial wastewater streams. *Case Studies in Chemical and Environmental Engineering*, 6, s. 100274. Elsevier.
- Karim, A. V., Jiao, Y., Zhou, M., ve Nidheesh, P. V. (2021). Iron-based persulfate activation process for environmental decontamination in water and soil. *Chemosphere*, 265, s. 129057. Pergamon.
- Kattel, E., ve Dulova, N. (2017). Ferrous ion-activated persulphate process for landfill leachate treatment: removal of organic load, phenolic micropollutants and nitrogen. *Environmental Technology*, 38(10), ss. 1223–1231. Taylor & Francis.
- Khandegar, V., ve Saroha, A. K. (2013). Electrocoagulation for the treatment of textile industry effluent—a review. *Journal of environmental management*, 128, ss. 949–963. Elsevier.
- Khataee, A. R., Zarei, M., ve Asl, S. K. (2010). Photocatalytic treatment of a dye solution using immobilized TiO<sub>2</sub> nanoparticles combined with photoelectro-Fenton process: Optimization of operational parameters. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 648(2), ss. 143–150. Elsevier.
- Kobyas, M., Demirbas, E., Bayramoglu, M., ve Sensoy, M. T. (2011). Optimization of electrocoagulation process for the treatment of metal cutting wastewaters with response surface methodology. *Water, Air, and Soil Pollution*, 215(1–4), ss. 399–410.
- Kumar, S., ve Dinesha, P. (2018). Optimization of engine parameters in a bio diesel engine run with honge methyl ester using response surface methodology. *Measurement*, 125, ss. 224–231. Elsevier.
- Liang, C., ve Su, H.-W. (2009). Identification of sulfate and hydroxyl radicals in thermally activated persulfate. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 48(11), ss. 5558–5562. ACS Publications.
- Liebermann, H. A., Rieger, M. M., ve Banker, G. S. (1989). Pharmaceutical dosage forms. Disperse system. Volume II. *Marcel Dekker Inc. Newyork and Basel*. pp, 199, ss. 350–354.
- Liew, W. L., Kassim, M. A., Muda, K., Loh, S. K., ve Affam, A. C. (2015). Conventional methods and emerging wastewater polishing technologies for palm oil mill effluent treatment: A review. *Journal of Environmental Management*.
- Lin, C. K., Bashir, M. J. K., Abu Amr, S. S., ve Sim, L. C. (2016). Post-treatment of palm

- oil mill effluent (POME) using combined persulphate with hydrogen peroxide (S<sub>2</sub>O<sub>8</sub><sup>2-</sup>/H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) oxidation. *Water Science and Technology*, 74(11), ss. 2675–2682. IWA Publishing.
- Liu, Fei, Zhang, Z., Wang, Z., Li, X., Dai, X., Wang, L., vd. (2019). Experimental study on treatment of tertiary oil recovery wastewater by electrocoagulation. *Chemical Engineering and Processing - Process Intensification*, 144(August), s. 107640. Elsevier.
- Liu, Fuzhen, Zhao, J., Ma, Y., Liu, Z., Xu, Y., ve Zhang, H. (2022). Removal of diesel from soil washing effluent by electro-enhanced Fe<sup>2+</sup> activated persulfate process. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 906, s. 115995. Elsevier.
- Maggay, I. V., Chang, Y., Venault, A., Dizon, G. V., ve Wu, C.-J. (2021). Functionalized porous filtration media for gravity-driven filtration: Reviewing a new emerging approach for oil and water emulsions separation. *Separation and Purification Technology*, 259, s. 117983. Elsevier.
- Maha Lakshmi, P., ve Sivashanmugam, P. (2013). Treatment of oil tanning effluent by electrocoagulation: Influence of ultrasound and hybrid electrode on COD removal. *Separation and Purification Technology*, 116, ss. 378–384. Elsevier B.V.
- Martínez-Delgadillo, S. A., Morales-Mora, M. A., ve Barceló-Quintal, I. D. (2010). Electrocoagulation treatment to remove pollutants from petroleum refinery wastewater. *Sustainable Environment Research*, 20(4), ss. 227–231.
- Merma, A. G., Santos, B. F., Rego, A. S. C., Hacha, R. R., ve Torem, L. (2020). ScienceDirect Treatment of oily wastewater from mining industry using electrocoagulation : Fundamentals and process optimization, 9.
- Mirhosseini, H., Shamspur, T., Mostafavi, A., ve Sargazi, G. (2021). A novel ultrasonic assisted-reverse micelle procedure to synthesize Eu-MOF nanostructure with high sono/sonophotocatalytic activity: a systematic study for brilliant green dye removal. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 32(18), ss. 22840–22859. Springer.
- Mohora, E., Rončević, S., Agbaba, J., Zrnić, K., Tubić, A., ve Dalmacija, B. (2018). Arsenic removal from groundwater by horizontal-flow continuous electrocoagulation (EC) as a standalone process. *Journal of environmental chemical engineering*, 6(1), ss. 512–519. Elsevier.
- Mollah, M. Y. A., Morkovsky, P., Gomes, J. A. G., Kesmez, M., Parga, J., ve Cocke, D. L. (2004). Fundamentals, present and future perspectives of electrocoagulation. *Journal of hazardous materials*, 114(1–3), ss. 199–210. Elsevier.
- Moradi, M., Vasseghian, Y., Arabzade, H., ve Mousavi Khaneghah, A. (2021). Various wastewaters treatment by sono-electrocoagulation process: A comprehensive review of operational parameters and future outlook. *Chemosphere*, 263, s. 128314. Pergamon.

- Myers, R. H., Montgomery, D. C., ve Anderson-Cook, C. M. (2016). *Response surface methodology: process and product optimization using designed experiments*. John Wiley & Sons.
- Nandiyanto, A. B. D., Oktiani, R., ve Ragadhita, R. (2019). How to read and interpret FTIR spectroscopy of organic material. *Indonesian Journal of Science and Technology*, 4(1), ss. 97–118.
- Nguyen, D. D., Ngo, H. H., ve Yoon, Y. S. (2014). A new hybrid treatment system of bioreactors and electrocoagulation for superior removal of organic and nutrient pollutants from municipal wastewater. *Bioresource technology*, 153, ss. 116–125. Elsevier.
- Nidheesh, P. V, Murshid, A., ve Chanikya, P. (2023). Combination of electrochemically activated persulfate process and electro-coagulation for the treatment of municipal landfill leachate with low biodegradability. *Chemosphere*, s. 139449. Elsevier.
- Nidheesh, P. V, ve Rajan, R. (2016). Removal of rhodamine B from a water medium using hydroxyl and sulphate radicals generated by iron loaded activated carbon. *RSC advances*, 6(7), ss. 5330–5340. Royal Society of Chemistry.
- NİĞİZ, F. U., ve YUCAK, A. İ. (2019). Emülsifiye Edilmiş Yağın Polivinil Florür/Polivinil Prolidon Membran İle Saflaştırılması. *Avrupa Bilim ve Teknoloji Dergisi*, (17), ss. 769–775. Osman SAĞDIÇ.
- Palanisamy, S., Nachimuthu, P., Awasthi, M. K., Ravindran, B., Chang, S. W., Palanichamy, M., vd. (2020). Application of electrochemical treatment for the removal of triazine dye using aluminium electrodes. *Journal of Water Supply: Research and Technology-Aqua*, 69(4), ss. 345–354. IWA Publishing.
- Patidar, R., ve Srivastava, V. C. (2022). Ultrasound-assisted electrochemical treatment of cosmetic industry wastewater: Mechanistic and detoxification analysis. *Journal of Hazardous Materials*, 422, s. 126842. Elsevier.
- Peng, Y., Guo, F., Wen, Q., Yang, F., ve Guo, Z. (2017). A novel polyacrylonitrile membrane with a high flux for emulsified oil/water separation. *Separation and Purification Technology*, 184, ss. 72–78. Elsevier.
- Prajapati, A. K. (2021). Sono-assisted electrocoagulation treatment of rice grain based distillery biodigester effluent: Performance and cost analysis. *Process Safety and Environmental Protection*, 150, ss. 314–322. Elsevier.
- Preethi, V., Ramesh, S. T., Gandhimathi, R., ve Nidheesh, P. V. (2019). Optimization of batch electrocoagulation process using Box-Behnken experimental design for the treatment of crude vegetable oil refinery wastewater. *Journal of Dispersion Science and Technology*. Taylor & Francis.
- Rahmani, M. A., ve Zarghami, M. (2015). The use of statistical weather generator, hybrid data driven and system dynamics models for water resources management under climate change. *Journal of Environmental Informatics*, 25(1), ss. 23–35.

- Rao, Y. F., Qu, L., Yang, H., ve Chu, W. (2014). Degradation of carbamazepine by Fe (II)-activated persulfate process. *Journal of Hazardous Materials*, 268, ss. 23–32. Elsevier.
- Raschitor, A., Fernandez, C. M., Cretescu, I., Rodrigo, M. A., ve Cañizares, P. (2014). Sono-electrocoagulation of wastewater polluted with Rhodamine 6G. *Separation and purification technology*, 135, ss. 110–116. Elsevier.
- Rashtbari, Y., Abazari, M., Arfaeinia, L., Gholizadeh, A., Afshin, S., Poureshgh, Y., vd. (2023). The optimization of reactive black 5 dye removal in the sono-catalytic process combined with local yellow montmorillonite and hydrogen peroxide using response surface methodology from aqueous solutions. *Biomass Conversion and Biorefinery*, 13(7), ss. 6067–6081. Springer.
- Rezakazemi, M., Khajeh, A., ve Mesbah, M. (2018). Membrane filtration of wastewater from gas and oil production. *Environmental Chemistry Letters*, 16(2), ss. 367–388. Springer International Publishing.
- Sabir, S. (2015). Approach of cost-effective adsorbents for oil removal from oily water. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 45(17), ss. 1916–1945.
- Sher, F., Malik, A., ve Liu, H. (2013). Industrial polymer effluent treatment by chemical coagulation and flocculation. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 1(4), ss. 684–689. Elsevier.
- Shokri, A., Soleimani, F., ve Sanavi Fard, M. (2022). The removal of COD in industrial wastewater by electro-persulfate process using central composite design. *Chemical Papers*, 76(11), ss. 7133–7145. Springer.
- Silveira, J. E., Garcia-Costa, A. L., Cardoso, T. O., Zazo, J. A., ve Casas, J. A. (2017). Indirect decolorization of azo dye Disperse Blue 3 by electro-activated persulfate. *Electrochimica Acta*, 258, ss. 927–932. Elsevier.
- Sivaranjani, Gafoor, A., Ali, N., Kumar, S., Ramalakshmi, Begum, S., vd. (2020). Applicability and new trends of different electrode materials and its combinations in electro coagulation process: A brief review. *Materials Today: Proceedings* içinde (C. 37).
- Song, D., Kadier, A., Peralta-Hernández, J. M., Xie, H., Hao, B., ve Ma, P. C. (2022). Separation of oil-water emulsions by a novel packed bed electrocoagulation (EC) process using anode from recycled aluminum beverage cans. *Journal of Cleaner Production*, 379, s. 134693. Elsevier.
- Sruthi, T., Gandhimathi, R., Ramesh, S. T., ve Nidheesh, P. V. (2018). Stabilized landfill leachate treatment using heterogeneous Fenton and electro-Fenton processes. *Chemosphere*, 210, ss. 38–43. Elsevier.
- Tahreen, A., Jami, M. S., ve Ali, F. (2020). Role of electrocoagulation in wastewater treatment: A developmental review. *Journal of Water Process Engineering*, 37, s. 101440. Elsevier.

- Tegladza, I. D., Xu, Q., Xu, K., Lv, G., ve Lu, J. (2021). Electrocoagulation processes: A general review about role of electro-generated flocs in pollutant removal. *Process Safety and Environmental Protection*.
- Thirugnanasambandham, K., ve Sivakumar, V. (2016). Removal of ecotoxicological matters from tannery wastewater using electrocoagulation reactor: modelling and optimization. *Desalination and Water Treatment*, 57(9), ss. 3871–3880.
- Torkashvand, J., Rezaei Kalantary, R., Heidari, N., Kazemi, Z., Kazemi, Z., Farzadkia, M., vd. (2021). Application of ultrasound irradiation in landfill leachate treatment. *Environmental Science and Pollution Research*, 28, ss. 47741–47751. Springer.
- Usman, M., Hanna, K., ve Faure, P. (2018). Remediation of oil-contaminated harbor sediments by chemical oxidation. *Science of the Total Environment*, 634, ss. 1100–1107. Elsevier B.V.
- Verma, A. K. (2017). Treatment of textile wastewaters by electrocoagulation employing Fe-Al composite electrode. *Journal of Water Process Engineering*, 20, ss. 168–172. Elsevier.
- Volkov, A. G., Deamer, D. W., Tanelian, D. L., ve Markin, V. S. (1996). Electrical double layers at the oil/water interface. *Progress in surface science*, 53(1), ss. 1–134. Elsevier.
- Wang, J.-Y., Kadier, A., Peralta-Hernández, J. M., Liang, C.-G., ve Ma, P.-C. (2023). An electrocoagulation (EC) process with a novel edge insulated electrode for separation of oil-in-water emulsions. *Case Studies in Chemical and Environmental Engineering*, 7, s. 100354. Elsevier.
- Wang, J. Y., Kadier, A., Hao, B., Li, H., ve Ma, P. C. (2022). Performance optimization of a batch scale electrocoagulation process using stainless steel mesh (304) cathode for the separation of oil-in-water emulsion. *Chemical Engineering and Processing - Process Intensification*, 174, s. 108901. Elsevier.
- Wang, S., Zhou, N., Wu, S., Zhang, Q., ve Yang, Z. (2015). Modeling the oxidation kinetics of sono-activated persulfate's process on the degradation of humic acid. *Ultrasonics Sonochemistry*, 23, ss. 128–134. Elsevier.
- Xu, K., Lu, J., Tegladza, I. D., Xu, Q., Yang, Z., ve Lv, G. (2020). Combined metal/air fuel cell and electrocoagulation process: Energy generation, flocs production and pollutant removal. *Chemosphere*, 255, s. 126925. Elsevier.
- Yazici Guvenc, S., Varank, G., Cebi, A., ve Ozkaya, B. (2021). Electro-activated persulfate oxidation of biodiesel wastewater following acidification phase: Optimization of process parameters using Box–Behnken Design. *Water, Air, & Soil Pollution*, 232, ss. 1–19. Springer.
- Yousefi, N., Pourfadakari, S., Esmaeili, S., ve Babaei, A. A. (2019). Mineralization of high saline petrochemical wastewater using Sono-electro-activated persulfate:

- Degradation mechanisms and reaction kinetics. *Microchemical Journal*, 147, ss. 1075–1082. Elsevier.
- Zhao, C., Zhou, J., Yan, Y., Yang, L., Xing, G., Li, H., vd. (2021). Application of coagulation/flocculation in oily wastewater treatment: A review. *Science of the Total Environment*, 765, s. 142795. Elsevier B.V.
- Zhi, D., Lin, Y., Jiang, L., Zhou, Y., Huang, A., Yang, J., vd. (2020). Remediation of persistent organic pollutants in aqueous systems by electrochemical activation of persulfates: A review. *Journal of Environmental Management*, 260, s. 110125. Elsevier.
- Zhou, L., Zheng, W., Ji, Y., Zhang, J., Zeng, C., Zhang, Y., vd. (2013). Ferrous-activated persulfate oxidation of arsenic (III) and diuron in aquatic system. *Journal of hazardous materials*, 263, ss. 422–430. Elsevier.
- Zini, L. P., Longhi, M., Jonko, E., ve Giovanela, M. (2020). Treatment of automotive industry wastewater by electrocoagulation using commercial aluminum electrodes. *Process Safety and Environmental Protection*, 142, ss. 272–284. Institution of Chemical Engineers.
- Zongo, I., Merzouk, B., Palm, K., Wethe, J., Maiga, A. H., Leclerc, J.-P., vd. (2012). Study of an electrocoagulation (EC) unit for the treatment of industrial effluent of Ouagadougou, Burkina Faso. *Adv Appl Sci Res*, 3, ss. 572–582.