

**ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

DOKTORA TEZİ

Fatma Elçin ERKURT

**BAZI FARMASÖTİK MADDELERİN FARKLI DENEYSEL
KOŞULLARDA KOAGÜLASYONLA GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI**

ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

ADANA, 2016

**ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**BAZI FARMASÖTİK MADDELERİN FARKLI DENEYSEL
KOŞULLARDA KOAGÜLASYONLA GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI**

Fatma Elçin ERKURT

DOKTORA TEZİ

ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

Bu Tez 13/07/2016 Tarihinde Aşağıdaki Jüri Üyeleri Tarafından
Oybirliği/Oyçokluğu ile Kabul Edilmiştir.

.....
Prof. Dr. Mesut BAŞIBÜYÜK
DANIŞMAN

.....
Prof. Dr. Zeynep B. ZAIMOĞLU
ÜYE

.....
Prof. Dr. Ramazan BİLGİN
ÜYE

.....
Doç. Dr. Kevser CIRIK
ÜYE

.....
Yrd. Doç. Dr. Yakup CUCİ
ÜYE

Bu Tez Enstitümüz Çevre Mühendisliği Anabilim Dalında hazırlanmıştır.
Kod No:

**Prof. Dr. Mustafa GÖK
Enstitü Müdürü**

**Bu Çalışma Ç. Ü. Araştırma Projeleri Birimi Tarafından Desteklenmiştir.
Proje No: MMF2010D3**

Not: Bu tezde kullanılan özgün ve başka kaynaktan yapılan bildirişlerin, çizelge ve fotoğrafların kaynak gösterilmeden kullanımı, 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunundaki hükümlere tabidir.

ÖZ

DOKTORA TEZİ

BAZI FARMASÖTİK MADDELERİN FARKLI DENEYSEL KOŞULLARDA KOAGÜLASYONLA GİDERİMİNİN ARAŞTIRILMASI

Fatma Elçin ERKURT

ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
ÇEVRE MÜHENDİSLİĞİ ANABİLİM DALI

Danışman : Prof. Dr. Mesut BAŞIBÜYÜK

Yıl : 2016, Sayfa:129

Jüri : Prof. Dr. Mesut BAŞIBÜYÜK

: Prof. Dr. Zeynep B. ZAIMOĞLU

: Prof. Dr. Ramazan BİLGİN

: Doç. Dr. Kevser CIRIK

: Yrd. Doç. Dr. Yakup CUCİ

Bu çalışmada 3 farklı ağrı kesici analjezik grubunda farmasötik etken maddenin (parasetamol, naproksen ve diklofenak) çeşitli koşullar altında içme sularından koagülasyon prosesi ile giderimi araştırılmıştır. Çalışmanın birinci aşamasında 20 °C’de, koagülantlar ($Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$, $MgCl_2 \cdot 6H_2O$, $FeSO_4 \cdot 7H_2O$, $FeCl_3 \cdot 6H_2O$) için en uygun doz ve pH belirlenmiştir. Çalışmanın ikinci aşamasında farmasötiklerin giderimine farmasötik konsantrasyonunun, sıcaklığın ve yardımcı koagülant olarak superfloc A100 ve nano magnetitin etkisi araştırılmıştır. Çalışmanın birinci aşaması için naproksen ve diklofenakın en yüksek giderim verimi pH 5’te, 100 mg/L $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ile sırasıyla; %58,2 ve %57,6 olarak elde edilmiştir. Ayrıca parasetamolün en yüksek giderim verimi pH 11’de, 100 mg/L $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ ile %46 olarak tespit edilmiştir. Çalışmanın ikinci aşamasının sonuçları, sıcaklığın, farmasötiklerin içme sularından koagülasyon prosesi ile giderimi üzerine etkili bir parametre olduğunu göstermiştir. Sıcaklığın artışıyla, farmasötiklerin koagülasyon ile giderim verimlerinin arttığı görülmüştür. Parasetamolün, $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ile 10 °C’de ve 25 °C’de giderim verimleri sırasıyla, %26,8 ve %42,4 olarak bulunmuştur. Çalışmalardan elde edilen sonuçlar başlangıç farmasötik konsantrasyonunun giderim verimleri üzerine etkili olduğunu göstermiştir. İlaç konsantrasyonu azaldıkça giderim veriminin arttığı belirlenmiştir. 0,5 mg/L diklofenak, $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile optimum şartlarda %94 giderilirken, 5 mg/L diklofenak %30 aynı şartlarda giderilmiştir.

Anahtar Kelimeler: İçme suyu, farmasötik, koagülasyon prosesi.

ABSTRACT

PhD THESIS

INVESTIGATION OF THE REMOVAL OF SOME PHARMAUCETICALS BY COAGULATION UNDER DIFFERENT EXPERIMENTAL CONDITIONS

Fatma Elcin ERKURT

**ÇUKUROVA UNIVERSITY
INSTITUTE OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES
DEPARTMENT OF ENVIRONMENTAL ENGINEERING**

Supervisor : Prof. Dr. Mesut BASIBUYUK

Year: 2015, Pages: 129

Jury : Prof. Dr. Mesut BASIBUYUK
: Prof. Dr. Zeynep B. ZAIMOGLU
: Prof. Dr. Ramazan BILGIN
: Asst. Prof. Dr. Kevser CIRIK
: Assoc. Prof. Dr. Yakup CUCI

In this study, the removal of three different groups of analgesic painkiller pharmaceuticals (paracetamol, naproxen, diclofenac) by coagulation from drinking water under different experimental conditions were investigated. In the first stage of the study, the optimum dosage and pH of the coagulants ($\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$, $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) were determined at 20 °C. In the second stage of the study, the effect of pharmaceuticals concentration, temperature and superfloc A100, nano-magnetite as coagulant aids, on removal of pharmaceuticals were investigated. According to the first stage of the study, the highest removal efficiencies of naproxen and diclofenac with 100 mg/L $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ at pH 5 were found 58.2% and 57.6%, respectively. Furthermore, the highest removal efficiency of paracetamol was determined 46% with 100 mg/L $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ at pH 11. The results of the second stage of the study showed that temperature was an effective parameter on removal of pharmaceuticals from drinking water by coagulation process. It was observed that the removal efficiencies of pharmaceuticals were increased with increasing temperature. The removal efficiencies of paracetamol with $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ were found 26.8% and 42.4% at 10 °C and 25 °C, respectively. The results of the study showed that initial pharmaceutical concentration was effective on the pharmaceutical removal efficiencies. It was determined that the removal efficiency was increased with decreasing pharmaceutical concentration. While 0.5 mg/L diclofenac was removed with 94%, 5 mg/L diclofenac was removed 30% with $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ at the optimum conditions.

Key Words: Drinking water, pharmaceuticals, coagulation process.

TEŐEKKÜR

Doktora tez alıőmamda tım desteklerinden dolayı deęerli hocam ve danıőmanım Prof. Dr. Mesut BAŐIBÜYÜK'e teőekkür ederim. Ayrıca bu tezin yapılmasına izin veren ve tım olanakları kullandıran ukurova Üniwersitesi evre Mühendislięi Anabilim Dalı Başkanlıęı'na, tezin yapılmasına maddi destek saęlayan ukurova Üniwersitesi Rektörlüęü Bilimsel Araőtırma ve Projeler Birimi'ne teőekkür ederim. Tez alıőmamda benden desteklerini ve sabırlarını esirgemeyen tım hocalarıma, mesai arkadaşlarıma ve aileme yürekten teőekkürü bir bor bilirim.

İÇİNDEKİLER

SAYFA

ÖZ.....	I
ABSTRACT.....	II
TEŞEKKÜR.....	III
İÇİNDEKİLER	IV
ÇİZELGELER DİZİNİ	X
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	XII
1. GİRİŞ	1
1.1. Farmasötiklerin Sucul Ortamlara Transferi	1
1.2. Farmasötiklerin Arıtma Tesislerindeki ve Sucul Ortamlardaki Davranışları.. .	3
1.2.1. Yüzeysel Sularda FAM	6
1.2.2. İçme Sularında FAM.....	8
1.2.3. İçme Suyu Arıtma Tesislerinde FAM'ların Akibeti	9
1.2.4. Koagülasyon ve Kum Filtreleri ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi	10
1.2.5. Aktif Karbon Adsorpsiyonu ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi	10
1.2.6. Ozonlama ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi	11
1.2.7. Klorlama ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi.....	12
1.2.8. Membran Filtrasyon ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi	13
1.3. Bazı Önemli Farmasötik Grupları ve Çevresel Açından Durumları.....	16
1.3.1. Analjezik ve Anti-inflamatuar.....	16
1.3.2. Antibiyotikler	16
1.3.3. Antiepileptikler.....	17
1.3.4. Beta Blokerlar	17
1.3.5. Lipid Düzenleyiciler.....	17
1.3.6. Sentetik Hormonlar	18
1.4. Koagülasyon Mekanizması	18
1.5. Kolloidal Sistem.....	19
1.6. Koagülant Maddeler	21
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR.....	23

3. MATERYAL VE METOD	29
3.1. Materyal	29
3.1.1. Farmasötik Aktif Maddeler ve Özellikleri	29
3.1.1.1. Parasetamol	29
3.1.1.2. Naproksen	30
3.1.1.3. Diklofenak	31
3.1.2. Koagülantlar ve Özellikleri	32
3.1.3. Koagülant Yardımcıları ve Özellikleri	33
3.2. Metod	33
3.2.1. Stok çözeltilerin ve koagülant yardımcılarının hazırlanması.....	33
3.2.2. Jar Test Deneylei	34
3.2.3. İlaç Etken Madde Ölçümleri	35
3.2.4. Katı Faz Ayırma Metodu.....	39
4. BULGULAR VE TARTIŞMA	41
4.1. Parasetamol Giderim Çalışmaları	41
4.1.1. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi 41	
4.1.1.1. Optimum pH'ın Belirlemesi.....	41
4.1.1.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlemesi.....	41
4.1.1.3. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Parasetamol Giderimine Etkisi.....	42
4.1.1.4. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonunda Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi.....	43
4.1.1.5. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde Sıcaklığın Etkisi	44
4.1.2. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi . 45	
4.1.2.1. Optimum pH'ın Belirlemesi.....	45
4.1.2.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	46
4.1.2.3. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Parasetamol Giderimine Etkisi.....	47
4.1.2.4. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonunda Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi.....	48

4.1.2.5. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde	
Sıcaklığın Etkisi	49
4.1.3. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin	
İncelenmesi	50
4.1.3.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi.....	50
4.1.3.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	51
4.1.3.3. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun	
Parasetamol Giderimine Etkisi.....	52
4.1.3.4. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonunda Yardımcı Kimyasal	
Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi.....	53
4.1.3.5. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde	
Sıcaklığın Etkisi	54
4.1.4. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi	55
4.1.4.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi.....	55
4.1.4.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	56
4.1.4.3. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun	
Parasetamol Giderimine Etkisi.....	57
4.1.4.4. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonunda Yardımcı Kimyasal Olarak	
Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi.....	58
4.1.4.5. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde	
Sıcaklığın Etkisi	59
4.1.5. Parasetamol Giderimi ve Tartışmalar.....	60
4.2. Naproksen Giderim Çalışmaları.....	62
4.2.1. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminin İncelenmesi ..	62
4.2.1.1. Optimum pH Çalışması.....	62
4.2.1.2. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde	
Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	63
4.2.1.3. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun	
Naproksen Giderimine Etkisi.....	64

4.2.1.4. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi.....	64
4.2.1.5. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Sıcaklığın Etkisi	65
4.2.2. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminin İncelenmesi ...	66
4.2.2.1. Optimum pH'ın belirlenmesi	66
4.2.2.2. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	67
4.2.2.3. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Naproksen Giderimine Etkisi.....	68
4.2.2.4. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi.....	69
4.2.2.5. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Sıcaklığın Etkisi	70
4.2.3. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminin İncelenmesi	71
4.2.3.1. Optimum pH Çalışması.....	71
4.2.3.2. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	71
4.2.3.3. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Naproksen Giderimine Etkisi.....	72
4.2.3.4. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi.....	73
4.2.3.5. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Sıcaklığın Etkisi	74
4.2.4. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminin İncelenmesi..	75
4.2.4.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi.....	75

4.2.4.2. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	75
4.2.4.3. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Naproksen Giderimine Etkisi.....	76
4.2.4.4. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi.....	77
4.2.4.5. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Sıcaklığın Etkisi	78
4.2.5. Naproksen Giderimi ve Tartışmalar	79
4.3. Diklofenak Giderim Çalışmaları	81
4.3.1. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminin İncelenmesi .	81
4.3.1.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi.....	81
4.3.1.2. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	81
4.3.1.3. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Diklofenak Giderimine Etkisi	82
4.3.1.4. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi.....	83
4.3.1.5. FeSO ₄ .7H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Sıcaklığın Etkisi	84
4.3.2. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminin İncelenmesi...	85
4.3.2.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi.....	85
4.3.2.2. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi	86
4.3.2.3. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Diklofenak Giderimine Etkisi	87
4.3.2.4. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi	88

4.3.2.5. FeCl ₃ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde	
Sıcaklığın Etkisi	88
4.3.3. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminin	
İncelenmesi	89
4.3.3.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi	89
4.3.3.2. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde	
Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	90
4.3.3.3. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun	
Diklofenak Giderimine Etkisi	91
4.3.3.4. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde	
Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin	
Denenmesi	92
4.3.3.5. Al ₂ (SO ₄) ₃ .18H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde	
Sıcaklığın Etkisi	92
4.3.4. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminin İncelenmesi .	93
4.3.4.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi	93
4.3.4.2. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde	
Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi.....	94
4.3.4.3. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun	
Diklofenak Giderimine Etkisi	95
4.3.4.4. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde	
Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin	
Denenmesi	96
4.3.4.5. MgCl ₂ .6H ₂ O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde	
Sıcaklığın Etkisi	97
4.3.5. Diklofenak Giderimi ve Tartışmalar	98
5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER	101
KAYNAKLAR	111
ÖZGEÇMİŞ	129

Çizelge 1.1. Bazı FAM'ların evsel atıksu arıtma tesislerindeki giderim oranları.....	6
Çizelge 1.2. Bazı ülkelerin yüzeysel sularında tespit edilmiş FAM'lar ve konsantrasyonları	7
Çizelge 1.3. Bazı ülkelerdeki musluk sularında tespit edilmiş FAM'lar ve konsantrasyonları	9
Çizelge 1.4. UF ve NF ile bazı farmasötiklerin 3 farklı nehir suyundan giderim verimleri.....	14
Çizelge 1.5. Koagülant ve kogülant yardımcısı olarak kullanılan bazı kimyasallar.....	22
Çizelge 3.1. Parasetamolün bazı özellikleri	30
Çizelge 3.2. Napsoksenin bazı özellikleri	31
Çizelge 3.3. Diklofenakın bazı özellikleri	32
Çizelge 3.4. Çalışmada kullanılan koagülant maddeler ve özellikleri.....	33
Çizelge 3.5. Çalışmada Kullanılan İlaçların Maksimum Absorbans Yaptığı Dalga Boyları (λ_{max})	36
Çizelge 3.6. HPLC Analiz Şartları.....	37



ŞEKİLLER DİZİNİ

SAYFA

Şekil 1.1. FAM'ların sucul çevreye transferi	3
Şekil 1.2. Negatif yüklü bir parçacığın yük dağılımı	20
Şekil 3.1. Magnetitin Mıknatıs ile Ayrımı.....	34
Şekil 3.2. Jar test düzeneği	35
Şekil 3.3. Çalışmada kullanılan HPLC Cihazı	36
Şekil 3.4. (a) Naproksen İçin Kalibrasyon Eğrisi.....	38
Şekil 3.5. (a) Parasetamol İçin Kalibrasyon Eğrisi.....	38
Şekil 3.6. (a) Diklofenak İçin Kalibrasyon Eğrisi	39
Şekil 4.1. FeSO ₄ .7H ₂ O ile koagülasyonda farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları	41
Şekil 4.2. Farklı FeSO ₄ .7H ₂ O koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları	42
Şekil 4.3. FeSO ₄ .7H ₂ O ile koagülasyonda farklı parasetamol konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	43
Şekil 4.4. Polimer ve nano magnetitin FeSO ₄ .7H ₂ O koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda parasetamol yüzde giderim oranları	44
Şekil 4.5. FeSO ₄ .7H ₂ O ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları	45
Şekil 4.6. FeCl ₃ .6H ₂ O koagülantı ile farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları	46
Şekil 4.7. Farklı FeCl ₃ .6H ₂ O koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları	47
Şekil 4.8. FeCl ₃ .6H ₂ O ile koagülasyonda farklı parasetamol konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	48
Şekil 4.9. Polimer ve nano magnetitin FeCl ₃ .6H ₂ O koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda parasetamol yüzde giderim oranları	49

Şekil 4.10. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları	50
Şekil 4.11. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülantı ile farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları	51
Şekil 4.12. Farklı $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları	52
Şekil 4.13. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı parasetamol konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	53
Şekil 4.14. Polimer ve nano magnetitin $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda parasetamol yüzde giderim oranları	54
Şekil 4.15. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları	55
Şekil 4.16. $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülantı ile farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları	56
Şekil 4.17. Farklı $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları	57
Şekil 4.18. $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı parasetamol konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	58
Şekil 4.19. Polimer ve nano magnetitin $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda parasetamol yüzde giderim oranları	59
Şekil 4.20. $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları	60
Şekil 4.21. Parasetamolün 4 farklı koagülant madde ile optimum şartlarda yüzde giderim verim değerleri	61
Şekil 4.22. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki giderim oranları	63
Şekil 4.23. Farklı $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ koagülantı dozlarında naproksen yüzde giderim oranları	63

Şekil 4.24. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı naproksen konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	64
Şekil 4.25. Polimer ve nano magnetitin $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda naproksen yüzde giderim oranları	65
Şekil 4.26. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki naproksen yüzde giderim oranları	66
Şekil 4.27. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki giderim oranları	67
Şekil 4.28. Farklı $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülantı dozlarında naproksen yüzde giderim oranları	68
Şekil 4.29. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı naproksen konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	69
Şekil 4.30. Polimer ve nano magnetitin $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda naproksen yüzde giderim oranları	70
Şekil 4.31. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki naproksen yüzde giderim oranları	70
Şekil 4.32. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki naproksen giderim yüzdeleri	71
Şekil 4.33. Farklı $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülantı dozlarında naproksen yüzde giderim oranları	72
Şekil 4.34. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı naproksen konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	73
Şekil 4.35. Polimer ve nano magnetitin $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda naproksen yüzde giderim oranları	74
Şekil 4.36. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki naproksen yüzde giderim oranları	74
Şekil 4.37. $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki naproksen giderim yüzdeleri.....	75

Şekil 4.38. Farklı $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülant dozlarında naproksen giderim yüzdeleri	76
Şekil 4.39. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda farklı naproksen konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	77
Şekil 4.40. Polimer ve nano magnetitin $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda naproksen yüzde giderim oranları	78
Şekil 4.41. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki naproksen yüzde giderim oranları	79
Şekil 4.42. Naproksenin 4 farklı koagülant ile koagülasyonunda optimum şartlarda yüzde giderim verimleri	79
Şekil 4.43. $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki diklofenak giderim yüzdeleri.....	81
Şekil 4.44. Farklı $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ koagülantı dozlarında diklofenak giderim yüzdeleri	82
Şekil 4.45. $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ile koagülasyonda farklı diklofenak konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	83
Şekil 4.46. Polimer ve nano magnetitin $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda diklofenak yüzde giderim oranları	84
Şekil 4.47. $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki diklofenak yüzde giderim oranları	85
Şekil 4.48. $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki diklofenak giderim yüzdeleri.....	86
Şekil 4.49. Farklı $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ koagülant dozlarında diklofenak giderim oranları	87
Şekil 4.50. $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ koagülasyonunda farklı diklofenak konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	87
Şekil 4.51. Polimer ve nano magnetitin $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda diklofenak yüzde giderim oranları	88

Şekil 4.52. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonu ile diklofenak gideriminde farklı sıcaklık değerlerine ait giderim yüzdeleri	89
Şekil 4.53. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki diklofenak giderim yüzdeleri	90
Şekil 4.54. Farklı $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülant dozlarında diklofenak giderim oranları	91
Şekil 4.55. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı diklofenak konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	91
Şekil 4.56. Polimer ve nano magnetitin $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda diklofenak yüzde giderim oranları	92
Şekil 4.57. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonu ile diklofenak gideriminde farklı sıcaklık değerlerine ait giderim yüzdeleri	93
Şekil 4.58. $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki diklofenak giderim yüzdeleri.....	94
Şekil 4.59. Farklı $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülant dozlarında diklofenak giderim oranları	95
Şekil 4.60. $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı diklofenak konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları	96
Şekil 4.61. Polimer ve nano magnetitin $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda diklofenak yüzde giderim oranları	97
Şekil 4.62. $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonu ile diklofenak gideriminde farklı sıcaklık değerlerine ait giderim yüzdeleri	98
Şekil 4.63. Diklofenakın 4 farklı koagülant ile koagülasyonunda optimum şartlarda yüzde giderim verimleri	98



1. GİRİŞ

İnsan nüfusunun artışı ve teknolojinin ilerlemesiyle beraberinde tüketimin artması birçok çevresel problemi beraberinde getirmiştir. İçme sularına kontamine olan kirleticiler yıllardır problem olarak karşımıza çıkmaktadır. Temiz ve sağlıklı içme suyuna ulaşmak her bireyin hakkıdır ve bu konuda bilim dünyasında da pek çok çalışma yapılmakta, kirlenmiş sular için çözüm yöntemleri aranmaktadır. Farmasötiklerin günümüzde insan kullanımı ve veteriner amaçlı kullanımının giderek yaygınlaşıp, artması neticesinde kirleticiler arasında önemli ve acil önlem alınması gereken gruplar arasına girmiştir. Farmasötik olarak aktif olan bileşikler (FAM), insan ve hayvanlarda görülebilen bir takım hastalıkların, düzensizliklerin, anormal fiziksel durumların veya bunların semptomlarının teşhisi, tedavisi, hafifletilmesi amacı ile üretilen bir veya birkaç etken madde karışımını ihtiva edebilen bileşiklerdir (Bila ve Dezotti, 2003). Farmasötik terimi geniş bir aralık sınıfında, değişken yapıda, fonksiyonda, davranışta ve aktivitede bileşikleri kapsar (Derksen ve diğ., 2004).

Farmasötiklerin çevresel kirlilik olarak ilk ortaya çıkışı 1970'lere dayanır (Tabak ve Brunch, 1970). 1980'lerde yüzey sularında farmasötik kalıntıları ölçmek için analizler yapılmaya başlanmıştır (Richardson ve Bowron, 1985). Ancak 1990'larda farmasötik kalıntıların sucul ortamlarda $\mu\text{g/L}$ ve ng/L seviyelerindeki konsantrasyonlarını tespit edebilecek teknolojiler geliştirilmiştir (Stan ve Heberer, 1997).

1.1. Farmasötiklerin Sucul Ortamlara Transferi

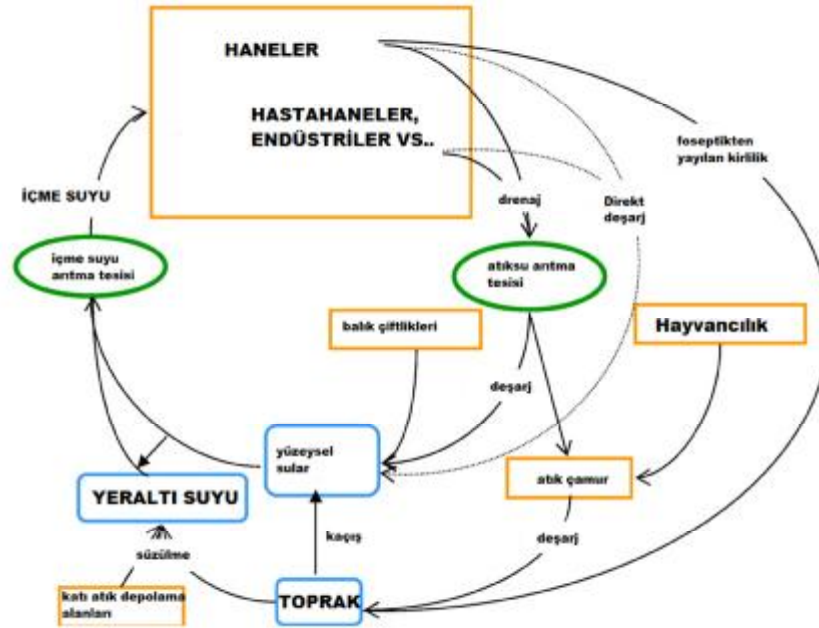
Farmasötikler karaciğer, bağırsak, böbrek, akciğer gibi vücut dokularında bir takım enzimatik transformasyonlara uğrarlar. Vücut kendisine yabancı olan bu maddeleri gidermek ve detoksifikasyon amacıyla metabolize ederek tepki verir. Metabolizmanın önemli bir kısmı karaciğerde gerçekleşir. Her ilaç vücutta, etken maddenin bir kısım veya tüm farmasötik aktivitesini giderecek şekilde farklı seviyelerde daha polar metabolitlerine dönüştürülür. Farmasötiklerin sucul ortamlara geçişindeki en yaygın yol insani tüketim neticesinde vücut tarafından kanalizasyon sistemine atılması buradan atıksu arıtma tesislerine ve neticede yüzey sularına

ulaşmasıdır. FAM'ların vücuttan atılması neticesinde bu kimyasal maddeler veya onların vücut içerisinde oluşan metabolit ürünleri idrar ve dışkı yoluyla su ortamına karışabilmektedir. FAM'lar bu yüzden toprakta, yüzey sularında, dip çamurlarında, evsel atıksularda, arıtma çamurlarında ve yer altı sularında tespit edilmektedir (Halling-Sorensen ve diğ., 1998). Farmasötiklerin vücut tarafından metabolize edilmesi farmasötik türüne göre değişiklik göstermektedir. Örneğin Karbamazepin %97 metabolize olurken bir antibiyotik olan amoksilin %80-90 arasında vücuttan ana formda atılmaktadır (Bound ve Voulvoulis, 2004).

Birçok farmasötik faz 1 ve faz 2 şeklinde metabolize edilip vücuttan atılır. Faz 1 reaksiyonları genelde oksidasyon, redüksiyon ve hidroliz basamaklarından oluşur. Metabolitler esas etken maddeden daha aktif ve toksik olabilir. Faz 2 reaksiyonları, konjugasyon basamağını kapsar böylece madde inaktif bir forma geçer (Halling-Sorensen ve diğ., 1998).

FAM'lar vücutta glukoronidasyon ile inaktif konjuge yapıya geldikleri zaman bu konjuge bağlar *Escherichia Coli* ve bazı diğer bakteriler tarafından tarafından üretilen beta- glukoridaz enzimi sayesinde kanalizasyon şebekelerinde ve arıtma tesislerinde glukonorit konjugeleri kolayca parçalanarak esas etken madde ortama verilmiş olur (Baronti ve diğ., 2000).

FAM kalıntıları içeren atıksuların arazilerde sulama amaçlı kullanılması neticesinde farmasötik kalıntıların yeraltı suyuna transferi söz konusudur. Birleşmiş milletlerde çorak alanların verimli hale getirilmesinde evsel atıksuların kullanımı giderek yaygınlaşmakta ve bunun neticesinde yeraltı sularının kirlenme riski doğmaktadır (Daughton, 2004). Kinney ve arkadaşları 2006'da yaptıkları bir çalışmada atıksu ile sulanan topraklardan aldıkları toprak numunelerinde farmasötik kalıntılar tespit etmişlerdir (Kinney ve diğ., 2006). Karbamazepin ve eritromisin gibi bazı farmasötikler toprakta altı aydan daha uzun sürelerde dirençli olarak kalabilmektedir.



Şekil 1.1. FAM'ların sucul çevreye transferi

1.2. Farmasötiklerin Arıtma Tesislerindeki ve Sucul Ortamlardaki Davranışları

Farmasötik maddeler biyolojik etkiler yaratmak için tasarlanmıştır. Stabil olarak üretilirler ve hücre membranlarından geçebilecek kadar lipofiliktirler. Özellikle ağız yoluyla alınan ilaçlar mide asidinde hidroliz olmaya karşı ve aynı zamanda enzim yapılarına da karşı dirençli bir formda tasarlanırlar. Bu durum farmasötiklerin tiplerine bağlı olarak biyolojik parçalanmaya karşı direnci de oluşturur.

Genel olarak ksenobiyotiklerin atıksu arıtımında üç tip davranış sergileme olasılıkları vardır;

1. Madde tamamen CO_2 ve suya mineralize olur (aspirin).
2. Madde lipofiliktir kolayca parçalanmaz ve maddenin bir kısmı çamura transfer olur.
3. Madde esas lipofilik formdan daha hidrofilik formlara metabolize olur fakat halen dirençlidir ve atıksu arıtma tesisi çıkışına transfer olur (Halling-Sorensen ve diğ., 1998).

Farmasötiklerin sucul ortamlardaki davranışları, akıbetleri ve onların metabolitleri henüz tam olarak tanımlanmamıştır. Atıksu arıtımında iki önemli giderim prosesi vardır. Bunlar atıksudaki katılara (arıtma çamuru) adsorbsiyon ve biyolojik parçalanmadır. Adsorbsiyon, farmasötiklerin partiküllerle ve mikroorganizmalarla hidrofobik ve elektostatik etkileşimlerine bağlıdır. Steroid dışı ateş düşürücü ilaçlar (NSAID) gibi asidik farmasötikler (asetilsalisilik asit, ibuprofen, fenoprofen, ketoprofen, naproksen, diklofenak v.b.) 4,9 ila 4,1 arasında değişen pK_a değerlerine sahiptirler, nötral pH' da iyonlaşırlar ve arıtma çamuruna adsorbsiyon eğilimleri düşüktür. Ancak adsorbsiyon düşük pH' da artar. Negatif yüklü asidik farmasötikler nötral pH' da atıksuda çözülmüş olarak bulunurlar. Bu nedenle farmasötiklerin atıksulardan ve yüzeysel sulardan gideriminde asidik farmasötiklerin arıtma çamuruna sorpsiyonunun çok önemli olmadığı söylenebilir (Urase ve Kikuta, 2005). Arıtma çamurları ve sedimentlerdeki farmasötik konsantrasyonları nispeten düşüktür. Ancak temel farmasötikler ve ikiz iyonlar çamura önemli miktarda adsorblanabilir. Hidrofobik özellikteki EE2 ($\log K_{ow} = 4,0$) nin atıksudan gideriminde arıtma çamuruna sorpsiyonu muhtemelen önemli bir rol oynamaktadır. Burada çamurdaki biyolojik parçalanma önemsiz olarak değerlendirilebilir. EE2'nin arıtma çamurunda 17 ng/g seviyelerine ulaştığı bildirilmiştir (Ternes ve diğ., 2002).

Farmasötiğin atıksuda çözülmüş fazda bulunuşu atıksu arıtımındaki gideriminin büyük oranda biyolojik parçalanma yoluyla gerçekleştiğini gösterir. Bu durum hem aktif çamur arıtımının aerobik (ve anaerobik) bölgelerinde veya hem de arıtma çamurunun anaerobik arıtımında gerçekleşir. Genellikle farmasötiklerinde dahil olduğu mikro kirleticilerin biyolojik ayrışması aktif çamur prosesindeki hidrolik bekletme süresi ve çamur yaşının artmasıyla artar. Örneğin diklofenak çamur bekletme süresinin en az 8 gün olması durumunda önemli ölçüde biyolojik olarak parçalanmıştır (Kreuzinger ve diğ., 2004). Buna karşın Metcalfe ve diğerlerinin (2003) verilerine göre biyolojik olarak zor parçalanabilen nötral ilaç karbamazepin, hidrolik bekletme süresinden bağımsız olarak %10'dan daha az giderilmiştir (Metcalfe ve diğ., 2003a). Arıtma tesislerinden farmasötik maddelerin yüzey sularına verilmesi arıtma tesisinin tipine bağlı olarak değişmektedir.

Konvansiyonel aktif çamur tesislerinde çamur yaşının artırılması mikrobiyal olarak parçalanabilen bezafibrat gibi bazı farmasötiklerin gideriminde artış sağlarken karbamazepin gibi mikrobiyal parçalanmaya karşı dirençli olan farmasötiklerde etkili olmamaktadır (Clara ve diğ., 2004).

Hidrofobik farmasötikler çamura tutunarak sudan ayrılabilir. Örneğin lipofilik farmasötik olan 17 α etinilestradiol atıksudan çamura tutunarak ayrılabilir (Taro ve Kikuta, 2005). Ancak bu çamurların toprak alanlara serilmesi veya gübre amaçlı kullanılması neticesinde yeraltı sularının kirlenmesinde potansiyel bir risk ortaya çıkmaktadır (Dizer ve diğ., 2002).

Farmasötiklerin yüzeysel sularda biyolojik parçalanma ile biyo dönüşümlerinin gerçekleştiği ancak abiyotik dönüşüm reaksiyonlarının daha önemli olduğu söylenebilir. Yüzeysel sularda hidrolizin ilaç giderimi ile ilgili etkileri ihmal edilebilecek seviyede iken su yüzeyinde fotodegradasyon bazen önemli rol oynayabilir. Yüzeysel sularda diklofenak giderim sürecinde fotolizin en önemli giderim süreci olduğu bildirilmiştir (Buser ve diğ., 1998). Laboratuvar ölçekli yapılan çalışmalarda bazı farmasötikler için (sulfamethoksazole, ofloksasin, propranolol) fotolizin doğrudan veya dolaylı önemli bir giderim süreci olduğu görülmüştür (Andreozzi ve diğ., 2003). Fotodegradasyonun verimi maddenin özelliklerine, güneş ışınları şiddetine dolayısıyla coğrafi yerine, iklime ve suda fotosentezi hızlandıran hidroksil radikalleri ve tekli oksijen üreten bileşiklerin varlığına (nitrat ve hümik asitler) bağlıdır. Farmasötiklerin partiküllere adsorpsiyonu gerçekleşebilir. Karbamazepin, diklofenak ve ibuprofenin sorpsiyon özelliklerinin karakterize edilmesi için yapılan laboratuvar ölçekli kesikli çalışmalarda sorpsiyon sabitlerinin genellikle çok düşük olduğu görülmüştür (Scheytt ve diğ., 2005). Diklofenak ve ibuprofen su ve sediment ortamının pH' ında negatif yüklü, pK_a değerleri sırasıyla 4.16 ve 4.52 olan zayıf karboksilik asitlerdir.

Çizelge 1.1'de bazı FAM'ların evsel atıksu arıtma tesislerindeki giderim oranları verilmiştir.

Çizelge 1.1. Bazı FAM'ların evsel atıksu arıtma tesislerindeki giderim oranları

FAM	Giriş Kon. µg/L	Çıkış Kon. µg/L	Giderim, %	Referans
Karbamazepin	0,059	0,05	-	Bahlmann ve diğ., 2014
İbuprofen	0,414	0,053	87	Duan ve diğ., 2013
Klofibrik asit	0,2659	0,0708	-	Kosma ve diğ., 2014
	0,740	0,258	-	Stamatis ve Konstantinou, 2013
	0,25	0,25	0	Tauxe-Wuersch ve diğ., 2005
Diklofenak	0,0954	0,060	35	Duan ve diğ., 2013
	3	2,5	17	Heberer, 2002
Tetrasilin	0,096-1,3	0,18-0,62	7-73	Gulkowska ve diğ., 2008
Keteprofen	0,47	0,18	62	Quintana ve diğ., 2005
Parasetamol	6,9	0	100	Roberts ve Thomas, 2005
Bezalfibrat	2,6	0,24	92	Quintana ve diğ., 2005
Sülfametoksazol	0,6	0,2	67	Carballa ve diğ., 2004
Diazepam	0,59–1,18	0,1–0,66	91-44	Van Der Hoeven,2004
Salisilik asit	57	0,05	99	Metcalfe ve diğ., 2003a
Naproksen	40,7	12,5	66	Ternes, 1998

1.2.1. Yüzeysel Sularda FAM

Genellikle yüzeysel sularda sık rastlanan FAM kalıntıları, evsel artıma tesislerinde giderime karşı dirençli olan bileşiklerdir. Yüzeysel sulardaki FAM konsantrasyonları genellikle düşük ng/L mertebelerindedir (Zwiener, 2007). FAM'lar yüzeysel sulara transferleri neticesinde çeşitli mekanizmalara maruz kalarak değişime uğrar. FAM'lar yüzeysel sulardaki doğal organik maddelere, koloidal maddelere ve sedimentlere adsorbe olabilir (Osenbrück ve diğ., 2007). Bununla birlikte FAM'lar mikrobiyal indirgenmeye karşı dirençli ve kimyasal olarak stabil üretilmelerine karşı yüzeysel sularda biyotik, kimyasal ve fiziko-kimyasal tranformasyonlara uğrayabilir. Bunun yanında FAM'ların yüzeysel sularda ağırlıklı olarak abiyotik giderimi büyük oranda doğrudan veya dolaylı fotodegradasyon reaksiyonları ile gerçekleşir (Sammartino ve diğ., 2008; Khetan ve Collins, 2007). Bazı ülkelerin yüzeysel sularında tespit edilmiş FAM'lar ve konsantrasyonları Çizelge1.2'de verilmiştir.

Çizelge 1.2. Bazı ülkelerin yüzeysel sularında tespit edilmiş FAM'lar ve konsantrasyonları

FAM	Kons.,ng/L	Ülke	Referans
Parasetamol	395	Fransa	Aminot ve diğ., 2016
Ketoprofen	144	Fransa	Aminot ve diğ., 2016
İbuprofen	1270	İngiltere	Petrie ve diğ., 2015
	143	Kanada	Yu ve diğ., 2007
	790	Kanada	Metcalf ve diğ., 2003b
	1417	Çin	Peng ve diğ., 2008
	115	Romanya	Moldovan, 2006
Naproksen	14	Fransa	Aminot ve diğ., 2016
	59	İngiltere	Petrie ve diğ., 2015
	328	Çin	Peng ve diğ., 2008
	620	Tayvan	Chen ve diğ., 2008
	50	İspanya	Gros ve diğ., 2006
	551	Kanada	Metcalf ve diğ., 2003b
Diklofenak	154	İngiltere	Petrie ve diğ., 2015
	50	Kanada	Metcalf ve diğ., 2003b
	1200	Almanya	Ternes, 1998
	158	İtalya	Loos ve diğ., 2007
	30	Güney Kore	Yoon ve diğ., 2010
Bezalfibrat	200	Kanada	Metcalf ve diğ., 2003b
	3100	Almanya	Ternes, 1998
	77	Japonya	Nakada ve diğ., 2007
Gemfibrozil	112	Kanada	Metcalf ve diğ., 2003b
	790	ABD	Kolpin ve diğ., 2002
	170	İsveç	Bendz ve diğ., 2005
Atenolol	241	İtalya	Zuccato ve diğ., 2005
	46	Japonya	Nakada ve diğ., 2007
Karbamazepin	650	Kanada	Metcalf ve diğ., 2003b
Atrazin	65	Belçika	Benijts ve diğ., 2004
	1793	İspanya	Planas ve diğ., 2006
Trimetoprim	45	Fransa	Tamtam ve diğ., 2008

1.2.2. İçme Sularında FAM

Kullanıma hazır içme sularında FAM'ların mevcudiyetini bildiren sınırlı sayıda çalışma vardır. Bu durum içme sularında bulunabilecek FAM'ların çok düşük ng/L mertebelerinde olmasından dolayı oluşan analitik zorluklardan kaynaklanmaktadır. Bu konsantrasyonlar çoğu zaman tespit limitlerinin altında kalabilmektedir. Musluk sularında FAM'ların bu kadar düşük konsantrasyonda bulunmaları, bu konuyu önemsiz bir duruma getireceği asla düşünülmemelidir. Sıradan bir insanın günde 2 litre su içtiği farz edilirse kalıntı şeklinde alınması mümkün olan ilaç miktarları tedavi amaçlı alınan miktarların çok altında kalmaktadır. Ancak bu kalıntı miktarlarının sürekli alınması ayrıca bir ilaç kokteyli şeklinde alınması da önem arz etmektedir. Burada etken maddelerin birbirleriyle sinerjistik etki sergilemesi söz konusu olabilmektedir. Ayrıca bu durum yetişkinlerin yanında bebek ve çocuklarda daha büyük önem arz etmektedir. FAM'ların içme sularında mevcudiyetinin en önemli nedeni su kaynağında bulunan FAM'ların geleneksel içme suyu arıtma proseslerine karşı dirençli olmasından kaynaklanmaktadır. Bu kimyasallar genellikle; yüksek kimyasal kararlılığa, düşük biyolojik indirgenmeye, suda yüksek oranda çözünme ve düşük sorpsiyon katsayılarına sahiptirler (Zwiener, 2007). Çizelge 1.3'de bazı ülkelerdeki musluk sularında tespit edilmiş FAM'lar ve konsantrasyonları verilmiştir.

Çizelge 1.3. Bazı ülkelerdeki musluk sularında tespit edilmiş FAM'lar ve konsantrasyonları

FAM	Kons., ng/L	Ülke	Referans
Triklosan	1,4	ABD	Padhye ve diğ., 2014
Atrazin	3,7	ABD	Padhye ve diğ., 2014
Karbamazepin	6,7	Çin	Leung ve diğ., 2013
	140	ABD	Stackelberg ve diğ.,2004
	60	Almanya	Heberer ve diğ., 2004
	24	Kanada	Tauber, R., 2003
Klofibrin asit	3,3	Çin	Leung ve diğ., 2013
Azitromisin	11,2	Çin	Leung ve diğ., 2013
Sülfametoksazol	21,3	Çin	Leung ve diğ., 2013
Roksitromisin	15,1	Çin	Leung ve diğ., 2013
Salisilik asit	41,2	Çin	Leung ve diğ., 2013
Meproamat	40	ABD	Benotti ve diğ., 2009
Amitriptilin	1.4	Fransa	Togola ve Budzinski,2008
Ketoprofen	8.0	Finlandiya	Vieno ve diğ., 2005
İbuprofen	8,5	Finlandiya	Vieno ve diğ., 2005
Diklofenak	35	Almanya	Heberer ve diğ., 2004
Fenazon	400	Almanya	Zühlke, 2004
Gemfibrozil	70	Kanada	Tauber, 2003

1.2.3. İçme Suyu Arıtma Tesislerinde FAM'ların Akibeti

Yer altı sularından içme suyu eldesinde geleneksel arıtma süreci sıklıkla havalandırma, flokülasyon, kum filtresi ve dezenfeksiyon basamaklarını içerir. Eğer yüzeysel sudan içme suyu sağlanacaksa daha etkili flokülasyon ve filtrasyon uygulanmaktadır. İleri arıtma içeren süreçlerde ise renk ve koku ve mikro kirletici giderimi, oksidasyon, adsorpsiyon ve membran sistemlerinin bir veya bir kaçını içerebilmektedir. Geleneksel içme suyu arıtma yöntemleri FAM'ların sudan etkili bir şekilde giderilmesinde yetersiz kalmaktadır (Zwiener, 2007).

1.2.4. Koagülasyon ve Kum Filtreleri ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi

Koagülasyon içme sularında doğal organik maddelerin ve bulanıklılığın giderilmesinde etkili bir yöntem olmasından dolayı yaygın kullanılan bir işlemdir (Matilainen ve diğ., 2002). Literatürde yapılan bazı çalışmaların sonucuna göre içme sularında koagülasyon ile ilaçların giderim verimleri genellikle düşük kalmıştır (Westerhoff ve diğ., 2005; Boyd ve diğ., 2003; Ternes ve diğ., 2002). Bu durum büyük olasılıkla ilaçların genellikle düşük hidrofobikliği ve flok içine adsorbe olacak mekanizmanın eksikliğinden kaynaklanmaktadır (Westerhoff ve diğ., 2005). Gerçek arıtma tesisinde yapılan bir çalışmada alum koagülasyonu ve kum filtrelerinin ardından ilaç kalıntılarında önemli bir giderim sağlanmadığı bildirilmiştir. Ancak varfarin, betakzoloil ve hidroklorotiazid, %50 'den yüksek bir giderim göstermiştir. Varfarin ve betakzoloil'un kısmen hidrofobik olması ve $\log K_{ow}$ değerlerinin 2'den yüksek olması bu bileşiklerin giderimlerinin tutunma ile gerçekleştiğini muhtemel kılmaktadır (Huerta-Fontela ve diğ., 2011). Ancak hidroklorotiazidin sıfırdan küçük $\log K_{ow}$ değeri ve hidrofilik oluşu, bu bileşiğin gideriminin tutunma olma ihtimalini düşürmektedir. Bu durum bu bileşiğin koagülasyon işlemi sırasında hidroliz olması şeklinde açıklanmaktadır (Stackelberg ve diğ., 2007). Pilot ölçekli yapılan bir çalışmada koagülasyon ile sadece siprofloksasin %30 giderilirken diğer farmasötikler en fazla %3'e kadar giderilmiştir. Aynı çalışmada koagülasyon sonrası hızlı kum filtresinde sadece bezalfibrat %29 giderilirken, diğer farmasötikler en fazla %10'a kadar giderilmiştir (Niina ve diğ., 2007).

1.2.5. Aktif Karbon Adsorpsiyonu ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi

Aktif karbon yüzeyine adsorpsiyon, yüksüz fonksiyonel ve N-heterosilik yüksüz gruplar içermeyen bileşiklerin non-polar karakteristiğine bağlıdır. Bundan dolayı oktanol-su ayrılımı katsayısı (K_{ow}), FAM'ların adsorpsiyon ile giderim verimlerini tahmin etmede önemli bir bilgi sağlar. Oktanol-su ayrılımı katsayısının logaritması ile giderim verimleri arasında yüksek bir korelasyon olduğu bilinmektedir. 5 mg/L aktif karbon ile $\log K_{ow}$ değerleri 3'den yüksek olan FAM'ların kesikli deneylerde 4 saatlik temas süresi sonunda %75 ile 100 arası giderim verimleri

elde edilmiştir. Klofibrik asit, ibuprofen ve diklofenak gibi karboksil grupları içeren FAM'lar, suda yüksek oranda iyonize olup negatif yükle yüklendiklerinden dolayı aktif karbon ile giderim verimleri daha düşük kalmıştır. Örneğin $\log K_{ow}$ değeri 2,45 olan karbamazepin, $\log K_{ow}$ değeri 0,89 olan sülfametoksazol'a göre aktif karbon yüzeyine sorpsiyonu çok daha hızlı ve etkili bir şekilde gerçekleşmiştir. Bunun yanında bazı düşük $\log K_{ow}$ değerine sahip olan ilaçların, aktif karbon yüzeyine etkili bir şekilde sorpsiyon olduğu bildirilmiştir. Bu durumun, bu ilaçların heterosiklik azot yapılarını içermesinden dolayı protonlanmış fonksiyonel grupları ile aktif karbon yüzeyindeki fonksiyonel grupların spesifik etkileşimlerinden ileri geldiği öne sürülmüştür (Westerhoff ve diğ., 2005).

İçme suyu arıtma tesislerinde genel olarak aktif karbon prosesi, granül aktif karbon (GAK) filtre yatakları şeklinde uygulanmaktadır. Doğal sular doğal organik maddeleri ve geniş aralıkta bileşikleri içerebilmektedir. Bu durumda, GAK yüzeyinde rekabetçi bir adsorpsiyon durumu ortaya çıkmaktadır (Newcombe ve diğ., 1997). Bundan dolayı laboratuvar şartlarında, distile suda spesifik olarak ilaçların aktif karbon yüzeyine adsorpsiyonunu gösteren çalışmalar ile içme suyu arıtma tesislerindeki sonuçlar farklılık gösterebilmektedir.

1.2.6. Ozonlama ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi

Ozonlama işlemi içme sularında organik ve inorganik bileşiklerin oksidasyonunda kullanılan en etkili yöntemdir. Bileşiklerin oksidasyonu direkt olarak ozon ve ozonun suda ayrışması sonucu oluşan hidroksil radikalleri yoluyla gerçekleşir. Ozonlama işlemi çok karmaşık bir olaydır. Ozonun ayrışma oranı sudaki doğal organik madde miktarına ve alkaliniteye bağlıdır. Karbonat ve bikarbobat iyonları ozonun ayrışmasını inhibe eder. Doğal organik madde bir yandan ozonun ayrışmasını artırırken bir yandan da hidroksil radikallerinin tükenmesine neden olur (Guntun, 2003).

Sülfametoksazol, karbamazepin, naproksen ve diklofenak kalıntıları içme suyu arıtma tesislerinden ozonlama işlemi sonucunda etkili ve hızlı bir şekilde giderilmektedir (Boyd ve diğ., 2003; Ternes ve diğ., 2002). Siprofloksasin,

bezalfibrat ve ibuprofenin ozonla reaksiyona girme eğilimleri düşüktür. Pilot ölçekli yapılan bir çalışmada 1,3 mg/L ozon ile siprofloksasin ancak %16 giderilebilmiştir (Niina ve diğ., 2007). İbuprofen ise hidroksil radikalleri tarafından okside olur. İbuprofenin ozonlama ile etkili giderimi, ozon stabilitesinin düşük olduğu düşük alkalinite ve yüksek çözünmüş karbon içeren sularda gerçekleşmektedir (Huber ve diğ., 2005). Örneğin 1 mg/L ozon, distile suda ibuprofenin %10'nunu ancak okside ederken, aynı doz ozon ile 3,2 mg/L çözünmüş organik karbon içeren doğal suda ibuprofenin %50'si okside olabilmektedir (Zwiener ve Frimmel, 2000; Snyder ve diğ., 2006).

Bisoprolol, salbutamol ve betakzalol gibi beta blokerlar içme sularında ozonlama işleminde tamamen giderilebilmektedir. Bu bileşikler muhtemelen ozonlama işleminde reaktif sitler olan ikincil amino gruplarının ve zayıf aromatik halkaların oksidasyonunu içerir. Bunun yanında propanolol, metoprolol, sotalol, atenolol ve asebutolol beta blokerlar spesifik fonksiyonel gruplarından dolayı ozonlama işlemine karşı daha dirençlidirler (Huerta-Fontela ve diğ., 2011).

Ozonun ilaç giderimindeki avantajlarından biri, bileşiğin farmasötik olarak etkenliğinden sorumlu fonksiyonel gruplar ile reaksiyona girebilmesidir. Ancak ozon, siprofloksasin gibi bazı antibiyotiklerin bu fonksiyonel gruplar ile birincil olarak reaksiyona girmemektedir. (Dodd ve diğ., 2006). Bununla birlikte ozonlama sonucunda oluşan bazı yan ürünlerin biyokimyasal etkileri hakkında yeterli bilgi yoktur. Örneğin karbamazepin ve diklofenak gibi ozonlama işlemi ile hızlıca giderilmesi sonucu, etkileri tam bilinmeyen bazı yan ürünler oluşmaktadır (McDowell ve diğ., 2005).

1.2.7. Klorlama ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi

Klorlama işlemi içme sularında dezenfeksiyon ve oksidasyon için kullanılan en yaygın yöntemdir. Klor dioksit ve klor, ozon kadar etkili olmasa da farmasötiklerin oksidasyonunu sağlayabilmektedir (Huber ve diğ., 2005). Amin ve fenol gibi elektronca zengin fonksiyonel grupları içeren bileşikler klor dioksit ve klor ile reaksiyona girmektedir. Diklofenak ve sülfametoksazol, nötral pH'da özellikle

serbest klor ile hızlıca reaksiyona girer. Yapılan bir çalışmada karbamazepin 3,8 mg/L serbest klor dozu ile %90'ın üzerinde giderilebilirken aynı doz ile ibuprofen %25 giderilebilmiştir (Westerhoff ve diğ., 2005). Yapılan başka bir çalışmada gerçek arıtma tesisinde ön klorlama ile amlodipin, tamoksifen, sertalin, oksazepam ve frusemid bileşikleri %99'un üzerinde bir verimle giderilmiştir. Aynı çalışmada beta blokerların da ön klorlama ile giderimi incelendiğinde; labetalol, betaksolol ve doksazosin %80 ile %99 arasında bir verimle giderilirken, atenolol, asetobutolol, bisoprolol ve satolol için %0 ile %5 arasında önemsenmeyecek bir giderim verimi elde edilmiştir. Aynı çalışmada karbamazepin ve onun epoksi metaboliti klorlama ile %5 ile %30 arasında giderilmiştir. Bazı psikiyatrik ilaçların da klorlama ile giderimi farklılık göstermiştir. Örneğin zolbidem %80 giderim verimi gösterirken, diazepam %50 bir verim sergilemiştir (Niina ve diğ., 2007).

1.2.8. Membran Filtrasyon ile FAM'ların İçme Sularından Giderimi

Membran filtrasyon teknolojisi son yıllarda kullanılan avantajlı su arıtma teknolojilerinden biridir. Son yirmi yılda geliştirilen membran prosesleri sayesinde düşük kalite suların güvenilir, emniyetli ve ekonomik olarak kullanımının mümkün olduğu kanıtlanmıştır (Gümüş ve Akbal, 2013).

Membran filtrasyonda kirleticiler, molekül boyutlarına ve membran yüzeyiyle etkileşimlere göre sudan ayrılırlar. Bazı durumlarda organik kirleticiler membran yüzeyine ve/veya sudaki diğer partiküllere adsorbe olarak membran filtreyle tutulurlar. Farmasötiklerin molekül boyutu, yükü ve hidrofobikliği membran filtreler ile etkili bir şekilde giderilmesinde en önemli etkenlerdir. Mikrofiltrasyon (MF) ve ultra filtrasyon (UF), düşük basınçta çalışan membranlar olup farmasötikler genellikle sudaki kolloidlerin veya partiküllerin üzerine adsorbe bir şekilde bu membranlardan giderilirler. Bu membran filtrelerde steroid hormonlarının asidik ilaçların ve beta blokerların giderimi genellikle etkisiz kalmaktadır. Farmasötikler ters ozmoz (TO) ve nanofiltrasyon (NF) gibi membranlarda küçük por çaplarından dolayı oldukça yüksek verimle giderilirler. Örneğin bir çalışmada steroid hormonlarının TO ile gideriminin %90 'ın üzerinde olduğu bildirilmiştir (Huang ve

Sedlak, 2001). Üç farklı nehir suyunda UF ve NF ile bazı farmasötiklerin giderim verimleri Çizelge 1.4’de verilmiştir.

Çizelge 1.4. UF ve NF ile bazı farmasötiklerin 3 farklı nehir suyundan giderim verimleri (Shane ve diğ., 2007)

Etken Madde	% Giderim					
	A		B		C	
	UF	NF	UF	NF	UF	NF
Asetaminofen	64	83	12	14	29	<1
Atrazin	6	65	6	79	70	11
Karbamazepin	<1	60	6	77	66	6
Diazepam	7	76	14	79	78	14
Diklofenak	50	75	2	74	59	<1
Eritromisin	61	78	48	96	93	36
Fluoksetin	98	92	97	1	93	97
İbuprofen	28	77	<1	80	68	8
Naproksen	70	87	<1	17	25	6
Sülfametoksazol	20	71	19	56	20	29
Triklosan	93	96	88	93	92	92
Gemfibrozil	<1	14	<1	82	79	<1
İyopromit	36	90	<1	86	86	38
Benzoaprin	>94	>94	>88	>90	>75	>75
Floarin	>95	>95	89	>93	>94	>94
Dilantin	<1	18	5	69	67	14
Trimetoprim	<1	41	20	76	77	8

A: Kolorado nehri B: Ohio nehri C: Passaic nehri

Çizelge 1.4’de görülen bileşiklerden dilantin, eritromisin, gemfibrozil, ibuprofen, naproksen ve sülfametoksazol suda nötral pH’da amin gruplarının protonlanması veya karboksilik asitin protosuzlaşması sonucunda negatif yüklüdür. Sadece fluoksetin ve trimetoprim tahmin edilen pK_a değerlerine bağlı olarak pozitif

yüklü olabilir. Ancak bu elektriksel yüklerdeki farklılıklar Tablo 5'den görüldüğü gibi her zaman membran ile giderimde etki sağlamadığı görülmektedir. Örneğin $\log K_{ow}$ 2,47 ve molekül ağırlığı 252 dalton olan negatif yüklü dilantinin giderimi, nötral olan, molekül ağırlığı ve $\log K_{ow}$ değerleri oldukça benzerlik gösteren karbamazepin giderimine yakınlık göstermektedir (Shane ve diğ., 2007). Bunun yanında negatif yüklü membranların negatif yüklü bileşikler için giderme verimi daha yüksektir. Örneğin negatif yüklü ilaçlar pozitif yüklü ilaçlara göre negatif yüklü ters ozmoz membranlarında daha etkili bir şekilde giderilmektedir (Xu ve diğ., 2005). Yük özelliklerine dayalı giderim büyük ölçüde suyun pH'ına bağlıdır. Örneğin suyun pH'ı membranın izoelektrik noktasından yüksek ise membran filtre negatif yük ile yüklenecektir. Bu durum negatif yüklü bileşiklerin giderimini, membran yüzeyi ile elektrostatik itme etkileşiminden dolayı arttıracaktır (Redjenovich, 2008). UF'deki giderim sonuçları normal şartlar altında beklenmedik şekilde yüksektir. Tablo 5'deki tüm bileşiklerin moleküler ağırlıkları UF'nin nominal gözenek boyutundan azdır. Üç nehir suyunda da UF membran, hidrofobikliği yüksek bileşikler için giderme eğilimindedir. Bu durum bileşiklerin membran yüzeyine belirli şartlar altında adsorpsiyonu ile mümkün olabilmektedir (Shane ve diğ., 2007).

Verliefde ve arkadaşları (2007), nanofiltrasyon yöntemiyle yüzey sularında 20 farmasötik için giderimini çalışmışlardır. Çalışmalar nanofiltrasyonda farmasötik için gideriminin bileşiğin yüküne ait olduğunu göstermiştir. Pozitif yüklü bileşiklerde düşük rejeksiyon değerleri elde edilirken, negatif yüklü bileşiklerde yüksek rejeksiyon değerleri elde edilmiştir. Nötral bileşikler ise, orta derecede bir giderim sağlamıştır. Yoon ve arkadaşlarının, 2006'da yaptıkları bir çalışmada farmasötiklerin nanofiltrasyonla tutulumunun bileşiğin hidrofobikliğine ve partikül ölçüsüne dayanırken, ultrafiltrasyonda sadece hidrofobikliğe dayandığını bildirmişlerdir.

1.3. Bazı Önemli Farmasötik Grupları ve Çevresel Açından Durumları

1.3.1. Analjezik ve Anti-inflamatuar

Çoğu analjezikler (ağrı kesiciler) anti-inflamatuar ve antipiretik özelliklere sahiptir. Pek çok ağrı kesici ilaç grupları pek çok ülkede çok miktarlarda kullanılıp aynı zamanda reçetesiz olarak satılmaktadır. Parasetamol ve asetilsalisilik asit dünyada en yaygın kullanılan ağrı kesicilerdir. Almanya'da 2001 yılında yıllık asetilsalisilik asit satışı 500 tonun üzerinde olarak hesaplanmıştır. Bunu yanında yine Almanya'da diğer ağrı kesicilerden ibuprofen veya diklofenağın yıllık satış miktarları yaklaşık olarak 75 ve 180 ton olarak hesaplanmıştır. Ternes 1998'de yaptığı çalışmada Asetilsalisilik asit konsantrasyonunun Almanya atıksu arıtma tesisi çıkış sularında yaklaşık olarak 0,22 µg/L olarak saptanmıştır. Yine aynı çalışmada asetilsalisilik asitin konsantrasyonu yüzey suyu örneklerinde tespit limitlerinden altında kalmıştır (Ternes, 1998). Heberer ve arkadaşları yaptıkları bir çalışmada Berlin atıksu arıtma tesisi giriş ve çıkış sularında diklofenak konsantrasyonlarının sırasıyla 3,02 ve 2,51 µg/L olarak tayin etmişlerdir. Bu %17'lik düşük giderim oranı, diklofenağın evsel arıtma tesislerinde giderime karşı dirençli olduğunu göstermektedir (Heberer, 2002).

1.3.2. Antibiyotikler

Antibiyotikler ekosistem üzerinde bakteriyel toksisitelerinden dolayı potansiyel etkiler gösterir (Kümerer, 2001). Sucul ortamlarda antibiyotiklerin düşük konsantrasyonlarda bulunuşu bakterilerin antibiyotik dirençliliği kazanmasında önemli bir faktördür. Witte, 2000 yılında yaptığı bir çalışmada atıksularda ve atık çamurda bulunan mikroorganizmaların antibiyotiklere karşı dirençli hale geldiğini kaydetmiştir (Witte, 2000). Sacher 2001'de yaptığı bir çalışmada Almanya'da yeraltı suyu örneklerinde sülfametoksazol ve dehidroeritromisin konsantrasyonlarını sırasıyla yaklaşık olarak 410 ng/L ve 49 ng/L olarak tespit etmiştir (Sacher ve diğ., 2001).

1.3.3. Antiepileptikler

Bir antiepileptik ilaç olan karbamazepin çevresel ortamlarda sıkça tespit edilmektedir (Ternes, 1998, Ollers ve diğ., 2001) . Ternes 1998 de yüzey sularında 1,1 µg/L, Sacher 2001' de yer altı suyunda 900 ng/L, Ternes 2001'de içme sularında 30 ng/L karbamazepin tespit etmişlerdir (Ternes, 2001). Atıksu arıtma tesislerinde karbamazepinin giderim oranı %7-40 arasında değişmektedir (Sacher ve diğ., 2001).

1.3.4. Beta Blokerlar

Yapılan pek çok çalışmada beta blokerlar (metoprolol, propanolol, betaksolol, bisoprolol ve nadolol) evsel atıksu arıtma tesisi çıkış sularında µg/L seviyelerine kadar tespit edilmiştir (Sedlak ve Pinkston, 2001). Sadece metoprolol, propanolol, bisoprolol yüzey sularında düşük konsantrasyonlarda tespit edilmiştir (Hirsch ve diğ., 1998). Propranolol, bisoprolol ve metoprolol Almanya yüzey sularında sırasıyla 0,59 µg/L, 2,9 µg/L 2,2 µg/L tespit edilmiştir (Ternes, 1998).

1.3.5. Lipid Düzenleyiciler

Lipid düzenleyiciler sucül çevrelerde en çok tespit edilen ilaçlardır klofibrinik asit bir lipid düzenleyici olan klofibratın metaboliti olup Berlin musluk sularında 10-165 ng/L konsantrasyonlarında tespit edilmiştir (Stan ve diğ., 1994).

Lipid düzenleyici ilaç aktif maddeleri; klofibrat, etofilin klofibrat ve etofibratın aktif metaboliti olan klofibrinik asit 1970'lerde ABD' deki bir evsel atıksu arıtma tesisinde tespit edilmiştir (Heberer, 2002).

Klofibrinik asit çok dayanıklıdır ve atıksu arıtımına karşı oldukça direnç gösterir. Yarı ömrü yaklaşık olarak 21 yıldır. Arıtma tesislerinde % 15 – 51 oranlarında giderime uğrar (Stumpf ve diğ., 1999, Zuccato ve diğ., 2000). Klofibrinik asit dışında ayrıca bezafibrat, gemfibrozil ve enofibrinik asit de kanalizasyon çıkış sularında ve yüzeysel su numunelerinde µg/L seviyelerinde saptanmıştır (Ahrer ve diğ., 2001, Farre ve diğ., 2001).

1.3.6. Sentetik Hormonlar

Sentetik hormonlar çok düşük konsantrasyonlarda bile sucul çevrelerde bazı canlı türleri üzerinde potansiyel olumsuz etkilere sahiptirler. Çevresel ortamlarda tespit edilen en önemli sentetik hormon doğum kontrol ilaçlarında kullanılan 17 α etinilestradiol (EE2)'dir. Diğer sentetik hormonlar mestranol gibi çevresel ortamlarda nadiren tespit edilirler. EE2 insanlarda vücuttan inaktif glukonoid konjugeleri olarak atılır (Heberer, 2002). Ancak kanalizasyonda ve arıtma tesislerinde *Escherichia Coli* tarafından kolayca dekonjuge edilirler (Baronti ve diğ., 2000).

EE2'nin önemli olmasındaki en büyük neden çok düşük konsantrasyonlarda bile bazı canlı türlerinin eşey sistemleri üzerinde etkili olmasıdır.

Örneğin 0,1ng/L EE2 bazı alabalık erkek bireylerde dişi yumurta proteini üretmeyi indükleyebilmektedir (Purdum ve diğ., 1994). Baronti ve arkadaşları 2000 yılında yaptıkları bir çalışmada EE2'nin aktif çamur arıtma sisteminde %85 oranında giderildiğini hesaplamışlardır (Baronti ve diğ., 2000). Ancak Ternes 1999'da yaptığı bir çalışmada aerobik kesikli deneysel çalışmasında EE2'nin gideriminde önemli bir oran tespit edememiştir (Ternes ve diğ., 1999).

1.4. Koagülasyon Mekanizması

Bir sıvı içerisinde dispers halinde bulunan katı taneleri genellikle belirli bir yüzey elektrik yüküne ve zeta potansiyeline sahiptir (Çelik ve Ersoy, 2004). Aynı elektrik yükünü taşıyan taneler, elektrostatik olarak birbirini itmekteler ve böylece çökmeden askıda durabilmektedirler. Tanelerin bir araya gelmesine diğer bir engel ise tanelerin yüzeyine adsorplanmış su tabakasıdır. Bu su tabakası da tanelerin birbirlerine iyice yaklaşmasına engel olmakta ve taneler arasındaki Van der Waals çekim kuvvetlerinin etkinliğini azaltmaktadır (Gregory, 1989).

Bazı içme suları, yüzey suları, evsel ve endüstriyel atıksuları içerisinde mikro kirletici maddeler içerirler. Bunu gidermek için çeşitli organik ve/veya inorganik kimyasallar ekleyerek (koagülant, koagülasyona yol açan maddeler) pıhtılaşma oluşumu, bu koagülantlar yardımıyla kolloid parçacıkların durağan

hallerinin bozulması ve sonuçta tek başına çökemeyen bu parçacıkların bir araya gelerek kolayca çökebilen kümeler haline dönüşmesi işleminin bütünü koagülasyon olarak tanımlanır. Yumaklaştırma işlemi ise pıhtılaşmış taneciklerin yumaklar teşkil ederek çökebilir büyüklüğe ulaşmasıdır (Şengül ve Küçükgül, 1995).

Pıhtılaştırma ve yumaklaştırma işlemi su arıtma sistemlerinin esas bileşenlerinden olup, başlıca kullanım amaçları;

- Kirleticileri gidermek,
- Tanecik yüzeyinde adsorplanan toksik bileşenleri gidermek,
- Dezenfeksiyon yan ürünlerinin oluşumuna neden olan bileşenleri gidermek,
- Suyu içilebilir seviyeye getirmek,

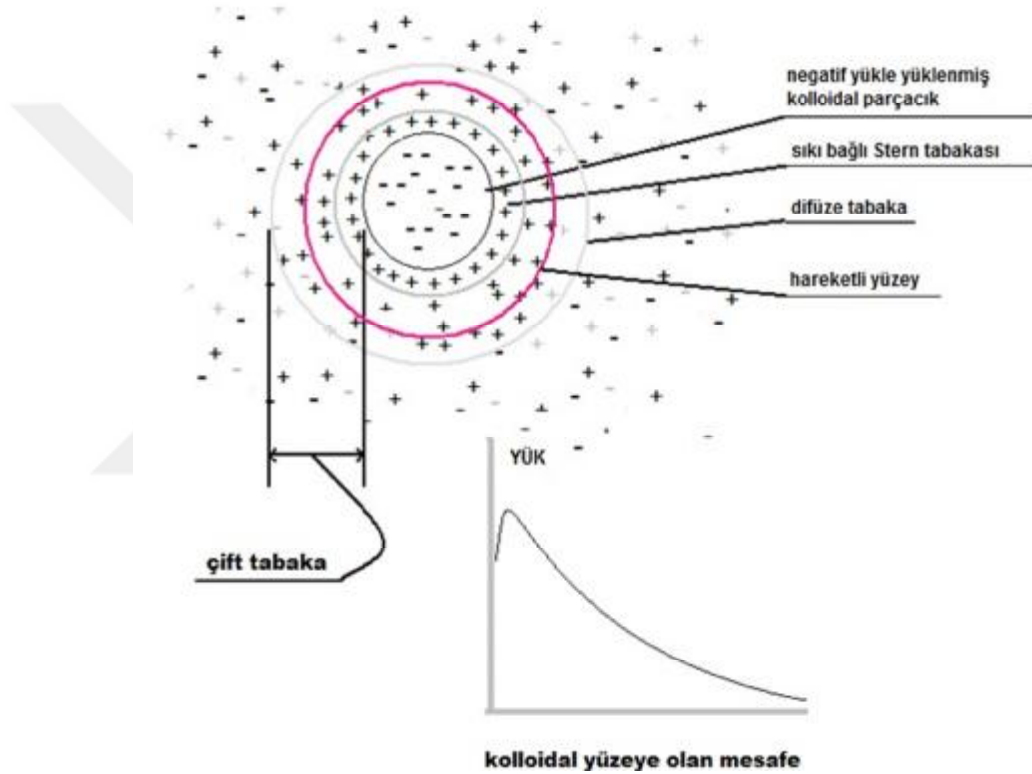
şeklinde sıralanabilir (Davis, 2010).

1.5. Kolloidal Sistem

Kolloidler, hidrofilik (suyu seven) ve hidrofobik (suyu sevmeyen) olmak üzere ikiye ayrılabilir. Hidrofilik kolloidler, suya olan ilgileri nedeniyle kararlı haldedirler. Sabun, sentetik deterjanlar ve kan serumları hidrofilik kolloidlere örnek olarak verilebilir. Yapılan çalışmalara göre koagülantlar, hidrofobik maddeleri, hidrofilik maddelere nazaran çok daha yüksek oranlarda uzaklaştırmaktadır. Sulardaki çözünmüş organik maddeler hidrofobik karakterdedir. Hidrofilik kolloidlerin suya ilgilerinden dolayı çökerek uzaklaştırma işlemi zorlaşmakta, bu nedenle hidrofobik kolloidlere nazaran 10 ya da 20 kat daha fazla koagülant kullanmak gerekmektedir. Hidrofobik kolloidler ise suya ilgi duymadıklarından dolayı kararlılıkları elektrik yüklerinden kaynaklanmaktadır (Hammer ve Hammer, 1996, Sharp ve diğ., 2005).

Kolloidal sistemlerde mevcut olan kuvvetler; Van der Waals, elektrostatik ve adsorbe olan makro moleküllerin meydana getirdiği kuvvetlerdir. Bu kuvvetler, pH, sıcaklık, konsantrasyon gibi ortam koşullarına bağlı olarak, değişik şekilde etkili olmaktadır (Geçkinli, 1991).

Kolloidler tanecik yapıyı oluşturan moleküllerin uç kısmında bulunan reaktif grupların ayrışması veya su ortamında bulunan iyonların tanecik yüzeyinde adsorplanması ile meydana gelen ve birincil yük olarak adlandırılan bir elektriksel yüke sahiptir. Su ve atıksu arıtımında karşılaşılan kolloidlerin çoğunun birincil yükü negatiftir. Yükün işareti ve büyüklüğü sıvı fazın iyon içeriği ve pH ile yakından ilgilidir (Faust ve Aly,1983).



Şekil 1.2. Negatif yüklü bir parçacığın yük dağılımı

Negatif yüklü bir kolloidal taneciğin taşıdığı elektrik yüküne zıt iyonlar tanecik etrafında birikir ve sabit bir tabaka meydana getirir. Bu tabakanın dışında yine aynı iyonlardan oluşan ikinci bir tabaka (Gouy Chapman tabakası) vardır. Bu iki tabakaya çift tabaka denir. Çift tabakada kolloidin yüküne zıt yükler bulunmasına rağmen aynı yüklü iyonlarda bulunur. Tanecik yüzeyinden uzaklaştıkça + ve – yükler denkleşmeye başlar ve belli bir mesafede konsantrasyonlar birbirine eşit olur. Bu noktaya izoelektrik nokta denir ve bu noktada potansiyel sıfırdır. Tanecikler birlikte hareket eden sıvı tabaka ile birlikte hareket etmeyen sıvı tabaka arasındaki yüzeye

kesme yüzeyi denir. Kesme yüzeyindeki elektrostatik potansiyele de zeta potansiyeli denir ve bu yüzey ayrılma düzlemini karakterize eder.

Kolloidlerin stabilizasyonu çeşitli şekillerde olmaktadır;

- Çözeltiye ilave edilen zıt yüklü iyonlar, tanecik etrafındaki çift tabakanın sıkışmasına sebep olur ve itme etkisi azalır.
- Çözeltiye ilave edilen metal iyonları veya organik polimerlerin tanecik yüzeyinde adsorpsiyonu ile tanecik yüzeyindeki potansiyel azalmaktadır.
- Yumaklaştırıcı maddelerin çözeltiye ilavesiyle oluşan metal hidroksitler çökerlerken kolloidleri de bir ağ şeklinde sararak onların da çökmesini temin ederler.
- Organik polimerlerin kullanılması halinde uzun zincirli bu polimerler, kolloidlerin etrafını sararak bir köprü meydana getirir. Böylece kolloidlerin destabilizasyonu sağlanır.

Destabilize bir çözeltide kolloidlerin Brownian hareketleri sebebiyle yumaklaşma olur, bu tip yumaklaşmaya perikinetik yumaklaşma adı verilir. Bu hareket yavaş olduğundan işlemi hızlandırmak için çözeltiye ilave kimyasal maddeler karıştırılır. Bu yumaklaştırmaya ortokinetik yumaklaşma denir (Eroğlu, 2008).

1.6. Koagülant Maddeler

Koagülasyon ve flokülasyonda kullanılan kimyasallar ya birincil koagülantlar veya koagülant yardımcıları olarak adlandırılır. Birincil koagülantlar, partikülleri destabilize etmek ve bir araya getirmek için kullanılır. Koagülant yardımcılarının amacı ise yavaş çökelen floklara yoğunluk vermek için ki bu sayede ilerleyen süreçlerde flokların dağılmasını önler; ve birincil koagülantı şartlandırmak amacıyla kullanılabilir.

Alüminyum ve demir tuzları, verimlilikleri, kısmen düşük maliyetli olmaları, uygulama ve depolama kolaylıkları bakımından su arıtımında en çok tercih

edilen ve en yaygın kullanılan koagülant kimyasallarıdır. Çözünmüş alüminyumun olası olumsuz etkileri hakkındaki düşünceler son günlerde bazı kesimlerde dile getirilse de alüminyum sülfat hala çok yaygın olarak kullanılmaktadır. Özellikle arıtımı zor suların koagülasyonunda alüminyum sülfatın üstünde bazı avantajlar gösteren bir diğer alüminyum tuzu PAK (polialüminyum klorür)'tir.

Demir sülfat ve demir klorür çözeltileri agresif ve korozif asidik sıvılardır. Alüminyum sülfat gibi davransalar da bikorbanat alkalinitesi varlığında demir hidroksit flokları şeklini alırlar.

Sodyum alginatlar ve bazı çözülebilir nişasta ürünleri gibi doğal organik polielektrolitler, uzun zamandır su arıtımında kullanılmaktadır. Yeni sentetik polielektrolitler de artık yaygın olarak bulunmaktadır. Sentetik polielektrolit çözeltileri ve metal tuzlarını içeren ticari koagülantlar da piyasada mevcut bulunmaktadır.

Doğal alkalinitenin koagülantlar ile reaksiyona girmesi yetersiz olduğu yumuşak sularda, alkalinite kireç veya soda olarak eklenebilir (EPA, 2002).

Yaygın olarak kullanılan bazı koagülant ve koagülant yardımcısı kimyasalları Tablo 6'da verilmiştir.

Çizelge 1.5. Koagülant ve koagülant yardımcısı olarak kullanılan bazı kimyasallar

Koagülant madde	Kimyasal formülü
Alüminyum sülfat	$Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$
Sodyum Alüminat	$NaAlO_2$
Demir III Klorür	$FeCl_3 \cdot 6H_2O$
Demir III Sülfat	$Fe_2(SO_4)_3 \cdot 9H_2O$
Sönmemiş Kireç	CaO
Sönmüş Kireç	$Ca(OH)_2$
Polialüminyum klorür	$Al_{12}(OH)_{24}AlO_4(H_2O)_{12}^{7+}$

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Vieno ve arkadaşları 2006'da, bazı farmasötik maddelerin (diklofenak, ibuprofen, bezafibrat, karbamazepin ve sülfametoksazol) kimyasal koagülasyon ile giderimini çalışmışlardır. Jar test analizleri distile suda, göl suyunda ve hümik asit çözeltisinde, alüminyum sülfat (pH 6) ve demir sülfat (pH 4,5) kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Distile suda gerçekleştirilen koagülasyonda diklofenak hariç zayıf giderimler (<%10) gözlenmiştir. Göl suyunda bu değerler demir sülfatla sadece %30'lara kadar ulaşmıştır. Çözünmüş hümik maddenin varlığında ibuprofen ve bezafibratın yanı sıra diklofenak da demir sülfatla giderilebilmiştir. İbuprofen %50 ve bezafibrat %36 giderilirken diklofenak giderimi maksimum %77'ye ulaşmıştır. Bundan dolayı, yüksek molekül ağırlıklı çözünmüş organik maddenin varlığı, iyonlaşabilir farmasötiklerin giderimini artırdığını bildirmişlerdir (Vieno ve diğ., 2006).

Choi ve arkadaşları 2008'de yaptıkları çalışmada, sekiz adet tetrasilin grubu antibiyotiğin koagülasyonla ve granüler aktif karbonla giderimini çalışmışlardır. Sentetik ham su (kaolin ekleyerek 10 NTU bulanıklıkta) ve nehir suyu kullanmışlardır. Her iki yöntemin de bu antibiyotikler için etkili olduğunu ve giderim veriminin antibiyotiğin tipine bağlı olduğunu bildirmişlerdir (Choi ve diğ., 2008).

Choi ve arkadaşları 2006'da yaptıkları çalışmada, endokrin bozucu bazı kimyasalların yaygın olarak kullanılan içme suyu arıtma proseslerindeki giderim verimlerini incelemişlerdir. Özellikle üzerinde çalışılan prosesler; koagülasyon/flokülasyon/sedimentasyon/filtrasyon (geleneksel su arıtma prosesi), toz aktif karbon, granüler aktif karbon, ozonlama ve klorlamadır. Kesikli sorpsiyon testleri, koagülasyon testleri ve ozonla oksidasyon BFA dahil olmak üzere 14 EDC ile yüksek konsantrasyonlarda uygulanmıştır. Geleneksel su arıtma prosesi düşük giderim verimleri (%0-7) göstermiştir. İncelenen kirleticiler için granül aktif karbon prosesinin oldukça etkili olduğu bildirilmiştir (Choi ve diğ., 2006).

Lima ve arkadaşları 2014'te yaptıkları bir çalışmada alüminyum sülfat ve polialüminyum klorür (PACl) koagülantlarının bazı farmasötikleri (diklofenak, sülfametoksazol, EE2, E2, E1, E3 ve bisfenol-A) giderimini adsorpsiyon prosesi ile

birleştirilerek incelemiştir. Koagülant olarak PACl uygulanmasının, alüminyum sülfattan daha etkili olduğu görülmüştür. Koagülant eklenmesinden önce toz aktif karbon kullanılması çoğu mikro kirleticinin giderimini artırdığını belirtmişlerdir (Lima ve diğ., 2014).

Adams ve arkadaşları 2002 yılında yaptıkları çalışmalarında, geleneksel içme suyu arıtma proseslerindeki çeşitli arıtma yöntemlerinin etkinliklerini belirlemek üzere yedi adet antibiyotik giderimini incelemiştir (karbadoks, sülfatiazol, trimetoprim, sülfaklorpiridazin, sülfadimetoksin, sülfamerazin ve sülfametazin). Çalışmalar hem distile suda hem de nehir suyunda ilaç dozlayarak çalışılmıştır. Uygulanan yöntemlerden ozon ve klor oksidasyonu ve toz aktif karbonla sorpsiyon ilaçlar üzerinde oldukça etkili sonuçlar verirken, buna karşılık alümin ve demir tuzlarıyla koagülasyon/flokülasyon/çöktürme işlemi, ultraviyole dezenfeksiyon ve kireç soda yöntemi etkisiz kalmıştır (Adams ve diğ., 2002).

Yang ve arkadaşları 2015’de yaptıkları çalışmada beş adet farmasötik (asetaminofen, karbamazepin, 17 β -estradiol, naproksen ve diklofenak) saf su, çeşme suyu, kaolin içeren su ve hümik asit içeren suda alüminyum sülfat ile koagülasyonunu çalışmışlardır. Sonuçlar göstermiştir ki; ne asetaminofen ne de karbamazepin etkili olarak giderilememiştir (%10’dan az) ve düşük hidrofobikliğe sahip bileşikler koagülasyonla zor giderilmektedir. Saf suda, diklofenak güçlü hidrofobikliğine bağlı olarak, en yüksek giderim verimine ulaşmıştır. Ancak musluk suyunda farmasötiklerin giderim verimleri, (E2 ve CBZ hariç) saf sudaki verimlerinden daha düşüktür. Hümik asit varlığında, asidik farmasötiklerin (NAP ve DCF) giderim verimleri, nötral farmasötiklerinkinden (ACE, CBZ ve E2) özellikle yüksek DHA dozlarında, daha yüksektir. NAP ve DCF’nin maksimum giderim verimleri sırasıyla %61 ve %59’a ulaşmıştır. DHA ve kaolin koagülasyon prosesi sırasında bazı farmasötiklerin giderimini iyileştirmektedir (Yang ve diğ., 2005).

Westerhoff ve arkadaşları 2005’de, içme suyu kaynağı olan üç farklı suya 10-250 ng/L konsantrasyonlarında 62 farklı EDC/PPCP enjekte ederek, bir su arıtma tesisinin her bir arıtma prosesine benzetilen laboratuvar ölçekli deneylerde ölçümler gerçekleştirdi. Alüminyum sülfat ve demir klorür ile koagülasyon bazı poliaromatik hidrokarbonları giderdi ancak çoğu diğer EDC/PPCP’ler %25’den daha az giderildi.

Yüksek toz aktif karbon dozajlarının giderimi artırdığı gözlemlendi. Klasik arıtma (koagülasyon + klorlama) birçok EDC/PPCB'nin gideriminde düşük verimlere sahiptir oysa toz aktif karbon ve/veya ozon ilavesi esasen giderimleri artırmaktadır (Westerhoff ve diğ., 2005)

Simazaki ve arkadaşlarının 2008'de yaptığı çalışmada dokuz adet farmasötik (klofibrin asit, diklofenak, fenoprofen, gemfibrozil, ibuprofen, indometakin, ketoprofen, naproksen ve propifenazon), klorlama, koagülasyon-çöktürme ve toz aktif karbon yöntemleriyle gerçek içme suyu arıtımına yakın şartlarda laboratuvar ölçekli olarak giderimleri incelenmiştir. Polialüminyum klorür kullanarak koagülasyon-çöktürme işleminde farmasötiklerin çoğu zor giderilmiştir (Simazaki ve diğ., 2008).

Ternes ve arkadaşlarının 2002 de yaptıkları bir çalışmada, bazı farmasötiklerin (bezafibrat, klofibrin asit, karbamazepin ve diklofenak) içme suyu arıtma proseslerindeki giderimi laboratuvar ve pilot ölçekli deneylerle incelenmiştir. Su şebekesi çalışmalarında ve laboratuvar ölçekli deneylerde demir 3 klorür ile flokülasyon seçilen farmasötikler için önemli bir giderim verimi sağlamamıştır. Ancak ozonlama bazı durumlarda bu polar bileşiklerin gideriminde etkili olmuştur. Bununla birlikte ozonlamaya granüler aktif karbonla filtrasyon eklendiğinde farmasötiklerin gideriminde oldukça etkili olmuştur (Ternes ve diğ., 2002).

Fontela ve arkadaşlarının 2011'de yaptığı çalışmada, içme suyu sağlamak için kullanılan ham sulara, 55 adet farmasötik madde, hormon ve metabolitlerinin meydana gelişi ve içme suyu arıtımı yoluyla giderimi çalışılmıştır. Çalışma, İspanya'da Llobregat nehrini su kaynağı olarak kullanan bir içme suyu arıtma tesisinde gerçekleştirilmiştir. Alum koagülasyonu, polimer ile flokülasyon ve kum filtrasyonu neticesinde yapılan ölçümlerde farmasötik konsantrasyonunda çok ciddi azalmalar görülmemiştir. Sadece beş bileşik (klordiazepoksit, zolpidem, bromazepam, klopidogrel ve doksazosin) bu adımda tamamen giderilebilmiştir. Warfarin, betaksolol ve hidroklorotiazid %50'den daha yüksek giderimlere ulaşmıştır. Bu bileşiklerden sonuncusu hariç parçalanmayla giderildiklerini gösteren izafi hidrofobik özellikler ($\log K_{ow} > 2$) sergiler. Bu olay hidrofilik olduğu için (\log

$K_{ow} < 0$) hidroklorotiazid'in azalmasını açıklayamaz. Ancak koagülasyon sırasında hidrolize olması giderim sebebi olabilir (Fontela ve diğ., 2011).

Vieno ve arkadaşları 2007'de, kanalizasyon atıklarının döküldüğü bir nehirde dört beta-bloker, bir antiepileptik ilaç, bir lipid düzenleyici ilaç, dört antienflamatuar ve üç fluorokinolonun meydana gelişini çalışmışlardır. Nehir suyu, pilot ölçekli bir içme suyu arıtma tesisinden geçirildi ve farmasötiklerin arıtma sırasındaki giderimleri izlendi. Tesiste uygulanan işlemler; demir tuzuyla koagülasyon, hızlı kum filtrasyonu, ozonlama, iki basamaklı GAC filtrasyonu ve UV dezenfeksiyon. Koagülasyon, çöktürme ve hızlı kum filtrasyonunu takiben, çalışılan farmasötiklerin giderim oranı ortalama %13 civarında tespit edildi. Diğer adımlarda yüksek giderim verimleri gözlemlendi ve bu arıtmayı takiben farmasötik konsantrasyonlarının (siprofloksasin hariç) tespit limitlerinin altına düştükleri gözlemlendi. En fazla hidrofiliğe sahip farmasötikler olan atenolol, sotalol ve siprofloksasin GAC filtrasyonu sırasında tamamen elimine edilmediği tespit edildi (Vieno ve diğ., 2007).

Padhye ve arkadaşları 2014'te yaptıkları çalışmada 30 adet temsili farmasötik, PPCB ve EDC'nin, yerel bir içme suyu arıtma tesisindeki oluşumu ve giderimini bir yıllık bir periyotta incelemişlerdir. Tesisin ön ozonlama-flokülasyon - çöktürme bölümünden sonra alınan numunelerde yapılan ölçümler sonucu sülfametoksazol, karbamazepin, kafein, ibuprofen, klaritromisin, metoprolol, kotinin ve naproksen %50'nin üzerinde giderimler gösterdiği gözlemlenmiştir. Flokülasyon aşamasında alum ve polimer kullanılmıştır (Padhye ve diğ., 2014).

Benotti ve arkadaşları 2009'da yaptıkları kapsamlı çalışmada Amerika'da 19 ayrı su kaynağındaki kaynak suyu, arıtılmış içme suyu ve şebeke suyunu, 51 bileşik için 2006 ve 2007 yılları arasında analizlerini yaparak incelemişlerdir. En sık rastlanan bileşikler; atenolol, atrazin, karbamazepin, estron, gemfibrozil, meprobamat, naproksen, fenitoin, sülfametoksazol, TCEP ve trimetoprimdir (Benotti ve diğ., 2009).

Joseph ve arkadaşları 2013'de yaptıkları çalışmada karbon nano materyalleri (SWCNT ve MWCNT) ve toz aktif karbon kullanarak birleşik koagülasyon-adsorpsiyon arıtımı ile EDC'lerin giderimini çalışmışlardır. Bisfenol-A

ve 17 α -etinil estradiol (EE2) hedef kirletici olarak seçilmiştir. Koagülasyon tek başına kullanıldığında düşük BPA giderimleri ancak buna karşılık daha yüksek EE2 giderim yüzdeleri elde edildi. Bununla birlikte, birleşik koagülasyon-adsorpsiyon yöntemi kullanılarak elde edilen giderim yüzdeleri, sadece adsorban kullanılarak elde edilenlere benzer bulunmuştur (Joseph ve diğ., 2013).

Yu ve arkadaşları 2013 yılında yaptıkları çalışmada, hümik madde ilavesinin düşük sıcaklıkta koagülasyon performansı üzerine etkilerini incelemişlerdir. Suda düşük sıcaklıkta hümik asit varlığının belirgin şekilde yumaklaşmayı artırdığını belirtmişlerdir. Hümik asit varlığında koagülasyon oranının artmakta ve optimum koagülant dozajının azalmakta olduğunu bildirmişlerdir (Yu ve diğ., 2013).

Kang ve Cleasby 1995 yılında yaptıkları çalışmada, sıcaklığın Fe(3) koagülantı kullanılarak yapılan flokülasyon test kinetiklerine etkisini çalışmışlardır. Sonuçlar göstermiştir ki; soğuk su sıcaklığı flokülasyon kinetiği üzerinde belirgin olumsuz etkiye sahiptir (Kang ve Cleasby, 1995).

-Türkiye’de farmasötik çalışmaları;

Komesli ve arkadaşları 2015 yılında yaptıkları çalışmada Türkiye’deki 7 farklı atıksu arıtma tesisinde yaptıkları incelemede giriş ve çıkış sularından aldıkları numunelerde 5 farklı EDC (estron, progesteron, karbamazepin, diltiazem ve asetaminofen) için ölçümler yapmışlardır. Bu çalışmada gözlenen en yüksek EDC konsantrasyonlarının, progesteron, estron, diltiazem, asetaminofen ve karbamazepin için sırasıyla 20, 185, 14,5, 860, 93 ng/L olduğu belirlenmiştir (Komesli ve diğ., 2015).

Güzel, 2015 yılında yaptığı doktora tezinde aşağı Ceyhan Havzasında bazı farmasötiklerin bulunurluğunu ve mevsimsel değişimini incelemiştir. Eylül 2013-Ağustos 2014 arasında, 9 istasyonda, 110 farmasötik madde üzerinde çalışmıştır. Elde edilen sonuçlara göre en yüksek konsantrasyonda elde edilen farmasötik, yüzey sularında suyun indikatörü olarak kullanılan kafeindir (4880 ng/L) (Guzel, 2015).

Sarı ve arkadaşlarının 2014 yılında Türkiye’de iki atıksu arıtma tesisinde bir yıl boyunca yaptıkları çalışmada bir ağrı kesici etken madde olan diklofenakın mevsimsel olarak değişimi ve giderim yüzdesi gözlemlenmiştir. Konvansiyonel

atıksu karakterizasyonu, diklofenak ve konvansiyonel parametreler arasındaki muhtemel ilişkiyi değerlendirmek amacıyla yapılmıştır. Arıtma tesisi giriş ve çıkışlarında diklofenak konsantrasyonu 295-1376 ng/L ve 119-1012 ng/L arasında tespit edilmiştir. Sonuçlar göstermiştir ki her iki atıksu arıtma tesisinde de yaz sezonunda daha yüksek diklofenak giderim verimleri görülmüştür. İlacın arıtma tesislerindeki ana giderim mekanizması çoğunlukla biyolojik (%55), ve bunu takiben UV dezenfeksiyonu (%27) olarak tespit edilmiştir (Sari ve diğ., 2014).

Aydin ve Talinli, 2013 yılında yaptıkları çalışmada; önemli bir içme suyu kaynağı olan İstanbul Büyükçekmece gölüne akan ana nehirlerde aylara göre izleme çalışması yapmışlardır. Bu kapsamda 14 adet ve farklı gruptan ilaç ve hormon incelemişlerdir. Örnekleme mevsimsel değişiklikleri gözlemek amacıyla bir yıl içinde beş farklı zamanda yapılmıştır. En sık tespit edilen bileşiklerin kafein ve antibiyotikler (amoksisilin, siprofloksasin, eritromisin ve sülfametoksazol) olduğunu bildirmişlerdir. En yüksek konsantrasyonları Temmuz ve Ekim ayında tespit etmişlerdir (Aydin ve Talinli, 2013).

Dökmeci ve arkadaşlarının 2013 yılında yaptıkları çalışmada, Tekirdağ-Çorlu atıksuyunda 6 farklı farmasötikğin incelenmesini gerçekleştirmişlerdir (naproksen, ibuprofen, diklofenak, salisilik asit ve kafein). Bu amaçla örnekler 5 ayrı bölgeden yaz ve kış sezonlarında alınmıştır. Diklofenak ve ibuprofen tespit limitlerinin altında kalarak belirlenememiştir. Diğer ilaçlarda belirlenen konsantrasyon aralıkları; naproksen için 2,12-13,58 ng/L, salisilik asit için 15,74-18,74 ng/L ve kafein için 5-121,2 ng/L'dir (Dokmeci ve diğ., 2013).

3. MATERYAL VE METOD

3.1. Materyal

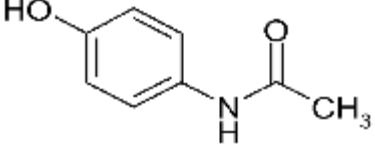
3.1.1. Farmasötik Aktif Maddeler ve Özellikleri

Bu çalışmada farmasötik aktif madde olarak parasetamol, naproksen ve diklofenak kullanılmıştır. Bu farmasötik maddeler, yaygın kullanım alanına sahip ve daha önce yapılan çalışmalarda atıksu arıtma tesisi çıkışlarında, içme sularında ve yüzeysel sularda sıklıkla tespit edilmiş maddelerdir. Saf ilaç etken maddeler Sigma'dan temin edilmiştir.

3.1.1.1. Parasetamol

Parasetamol (asetaminofen), ağrı kesici ve ateş düşürücü etkiye sahip bir ilaç etken maddesidir. Günümüzde analjezik ve antipiretik amaçlı en sık kullanılan ilaçlardan biri olan parasetamol (asetaminofen; para-asetil-amino-fenol) ilk kez 1878 yılında sentezlenmiş, (Morse, 1978) ve 1893 yılında tıbbi kullanıma girmiştir (Von Mering, 1893). Parasetamol özellikle çocuk, yaşlı, gebe gibi özel gruplar başta olmak üzere tıbbi kullanımdaki en güvenilir analjezik/antipiretik ilaçlardan biri olarak kabul edilmektedir ve günümüzde tüm dünyada milyonlarca hasta tarafından kullanılmaktadır (İlkaya ve diğ., 2013). Parasetamolün bazı özellikleri Çizelge 3.1'deki tabloda verilmiştir.

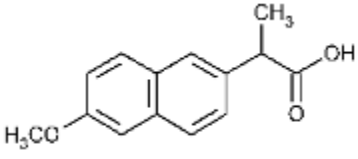
Çizelge 3.1. Parasetamolün bazı özellikleri

PARASETAMOL	
Kimyasal yapısı	
Kimyasal formül	$C_8H_9NO_2$
CAS No	103-90-2
Molekül Ağırlığı	151,2 g/mol
Log K_{ow}	0,46
pK_a	9,4
Diğer isimler	Acetaminophen, N-(4-Hydroxyphenyl) acetamide
Erime Noktası	170 °C(338°F)
Toksosite	LD50: 338 mg/kg (fare)
Yoğunluk	1,3 g/cm ³

3.1.1.2. Naproksen

Naproksen bir non-steroidal anti-enflamatuvar ilaç etken maddesidir. Vücutta ağrı ve enflamasyona neden olan mediatörleri azaltarak çalışır. Naproksen ilk kez 1976'da, reçete ilacı olarak Naprosyn adıyla satılmaya başlandı. Naproksen sodyum ise ilk kez 1980'de Anaprox ismiyle satılmaya başlandı. ABD'deki Food and Drug Administration (FDA - Gıda ve İlaç Dairesi) 1991'de ilacın reçetesiz olarak da satılmasını onaylasa da, Kanada dahil dünyanın diğer birçok ülkesinde ilaç halen reçete ilacıdır. Naproksen ile ilgili bazı özellikler çizelge 3.2'deki tabloda gösterilmiştir.

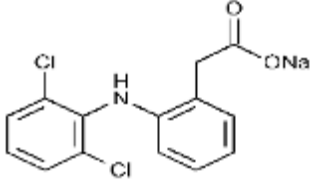
Çizelge 3.2. Naproksenin bazı özellikleri

NAPROKSEN	
Kimyasal yapısı	
Kimyasal formül	C ₁₄ H ₁₄ O ₃
CAS No	22204-53-1
Molekül Ağırlığı	230,2 g/mol
Log K_{ow}	3,18
pK_a	4,15
Diğer isimler	Naproxen sodium, 2-(6-methoxynaphthalen-2-yl)propanoic acid
Erime Noktası	152°C (305,6°F)
Toksosite	LD50: 360 mg/kg (fare)
Yoğunluk	1,20 g/cm ³

3.1.1.3. Diklofenak

Diklofenak insanlar ve hayvanlarda enflamasyonu azaltmak ve ağrıyı dindirmek için artrit ve akut sakatlanmalarda kullanılan bir non-steroidal anti-enflamatuvar ilaç etken maddesidir. Diklofenak için derlenen bazı özellikler çizelge 3.3'deki tabloda verilmiştir. Diklofenak kuyu sularında yaklaşık 2ng/L (Rabiet ve diğ., 2006) ve yeraltı sularında ise maksimum 380 ng/L olarak tespit edilmiştir (Heberer ve diğ., 1998). Küresel olarak yılda 940 ton diklofenak tüketildiği tahmin edilmektedir (Zhang ve diğ., 2008).

Çizelge 3.3. Diklofenakın bazı özellikleri

DİKLOFENAK	
Kimyasal yapısı	
Moleküler formül	C ₁₄ H ₁₁ Cl ₂ NO ₂
CAS No	15307-86-5
Molekül Ağırlığı	296,14 g/mol
Log K_{ow}	4,51
pK_a	4,15
Diğer isimler	o-)2-6-Dichloroanilino) phenylacetic acis, sodium salt
Erime Noktası	284°C (543.2°F)
Toksosite	LD50: 95 mg/kg (fare)
Yoğunluk	0,63 g/cm ³

3.1.2. Koagülantlar ve Özellikleri

Gerek endüstriyel atıksuların arıtılmasında ve gerekse içme suyu arıtımında yaygın olarak kullanılan koagülantlar seçilmiştir. Kullanılan koagülantlar ve bazı özellikleri Çizelge 3.4’de gösterilmiştir.

Çizelge 3.4. Çalışmada kullanılan koagülant maddeler ve özellikleri

Koagülant madde	Kimyasal formülü	Moleküler ağırlığı (g/mol)	Yoğunluk	Erime Noktası
Alüminyum sülfat	$Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$	666,42	2,67 g/cm ³	770 °C
Demir III Klorür	$FeCl_3 \cdot 6H_2O$	270,33	2,9 g/cm ³	306 °C
Demir II Sülfat	$FeSO_4 \cdot 7H_2O$	278,02	1.895 g/cm ³	60-64 °C
Magnezyum Klorür	$MgCl_2 \cdot 6H_2O$	203,30	1.569 g/cm ³	117 °C

3.1.3. Koagülant Yardımcıları ve Özellikleri

Çalışmada koagülasyon ile farmasötik giderimine olan etkisinin incelenmesi açısından anyonik (Superfloc A-100) polimer ve bir nano magnetit demir oksit (Fe_3O_4) koagülasyon yardımcısı olarak denenmiştir.

3.2. Metod

3.2.1. Stok çözeltilerin ve koagülant yardımcılarının hazırlanması

Koagülant yardımcısı olarak kullanılan 0,2 g polimer 100 mL distile suda çözülerek 16 saat boyunca manyetik karıştırıcıda karıştırılmış ve koyu renk şişede günışığından uzak saklanmıştır (Pansu ve Gautheyrou, 2006). Yine koagülant yardımcısı olarak denenen Fe_3O_4 , kimyasal bazik şartlarda çöktürme metoduna göre elde edilmiştir. $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ (1M) ve $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ (2M), 500 mL distile suya eklenip azot gazı altında 50 °C'ye kadar karıştırılarak ısıtılmıştır. pH 11'e gelinceye kadar NaOH (4N) damla damla eklenerek 80 °C'de 4 saat manyetik karıştırıcı ile karıştırılmıştır. Oluşan Fe_3O_4 partikülleri mıknatıs ile ayrılarak NaOH kalıntıları temizlemek için distile su ile yıkanmıştır. 60 °C'de 12 saat kurutulmuştur (Tiana ve diğ., 2011). Muhtemel Fe_3O_4 oluşumu eşitlik 1'de verilmiştir. Şekil 3.1'de mıknatısla magnetit ayrımı gösterilmiştir.

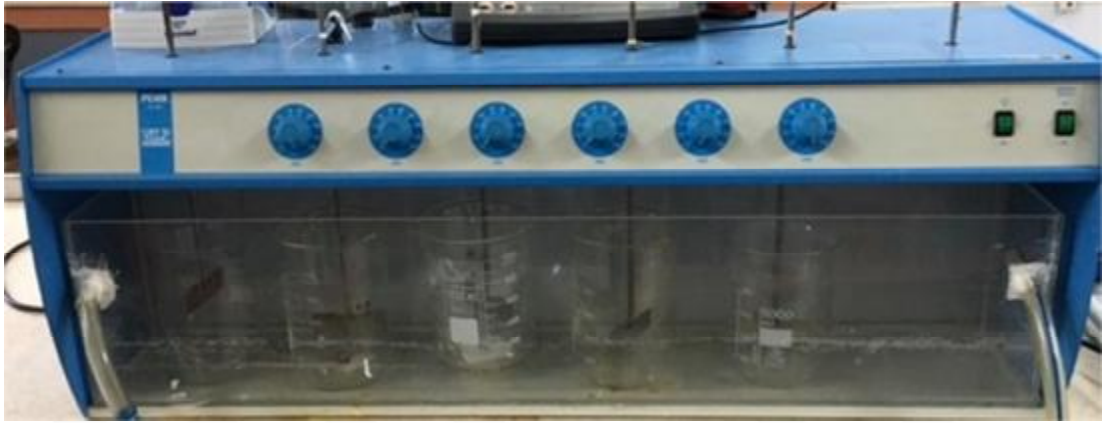


Şekil 3.1. Magnetitin Miknatis ile Ayrımı

3.2.2. Jar Test Deneyleri

Jar test deneyleri, rpm ayarlı, 6'lı jar test düzeneğinde gerçekleştirilmiştir. Jar testi düzeneği Şekil 3.2'de gösterilmiştir. Jar testi deneylerinde giderimi araştırılan ilaç etken maddelerinin her bir koagülant için optimum çalışma şartları belirlenmiştir. Yapılan tüm jar testleri, 100 rpm'de 1 dk hızlı karıştırma, 30 rpm'de 30 dk yavaş karıştırma ve 30 dk çökeltme işlemleri sırasıyla gerçekleştirilmiştir. Çalışmanın birinci aşamasında kullanılan her koagülant için optimum pH değeri belirlenmiştir. Bu aşamada ilaç konsantrasyonları 5 mg/L ve koagülant konsantrasyonları 100 mg/L olarak sabit tutularak farklı pH değerlerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) ilaç giderimi çalışılmıştır. Çalışmanın ikinci aşamasından her ilaç ve koagülant için ayrı ayrı belirlenmiş olan optimum pH değerlerinde optimum koagülant dozu belirleme deneyleri gerçekleştirilmiştir. Bu aşamada ilaç konsantrasyonları 5 mg/L'de sabit tutularak farklı koagülant dozları denenmiştir (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150, 175 mg/L). Çalışmanın üçüncü aşamasında, her ilaç ve koagülant için belirlenmiş olan optimum pH ve koagülant dozları kullanılarak farklı konsantrasyonlarda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5 ve 10 mg/L) ilaç etken maddelerinin giderimi araştırılmıştır. Çalışmanın dördüncü aşamasında optimum şartlarda 5 mg/L ilaç konsantrasyonu giderimi üzerine farklı konsantrasyonlarda polimer (Superfloc A100) dozlarının (5, 10, 20, 30 ve 40 mg/L) etkisi araştırılmıştır. Çalışmanın beşinci

aşamasında optimum şartlarda 5 mg/L ilaç giderimi üzerine farklı konsantrasyonlarda nano-magnetit dozunun (5, 10, 20, 30 ve 40 mg/L) etkisi araştırılmıştır. Yukarıda açıklanan 1-5 deney aşamalarının hepsi 20°C’de gerçekleştirilmiştir. Çalışmanın altıncı aşamasında 5 mg/L ilaç konsantrasyonu için optimum koagülant dozu ve optimum pH değerlerinde, ilaç giderimi üzerine sıcaklığın etkisini araştırmak için farklı sıcaklık değerleri (10, 15, 20 ve 25°C) çalışılmıştır. Sıcaklık ayarlaması su ceketini ile sağlanmıştır.



Şekil 3.2. Jar test düzeneği

3.2.3. İlaç Etken Madde Ölçümleri

Çalışmada ilaç etken maddelerinin ölçümü UV detektöre sahip Perkin Elmer marka HPLC’de (yüksek basınçlı sıvı kromatografisi) yapılmıştır. Ölçümlerde kullanılan HPLC Şekil 3.3’de görülmektedir. Her bir ilaç için dalga boyu taraması yapılmış maksimum adsorbans veren dalga boyları seçilmiş ve bunların literatüre uygunluğu kontrol edilmiştir. Kullanılan ilaçlar parasetamol, diklofenak, naproksenin maksimum adsorbans yaptığı dalga boyları ve bu çalışma için seçilen dalga boyları Çizelge 3.5’de verilmiştir.



Şekil 3.3. Çalışmada kullanılan HPLC Cihazı

Çizelge 3.5. Çalışmada Kullanılan İlaçların Maksimum Absorbans Yaptığı Dalga Boyları (λ_{max})

İlaç Adı	Dalga Boyu (nm)	Referanslar
Parasetamol	245-257 (247)*	(Dimitrovska ve ark.,1995) (Parojcic ve ark., 2003) (Liebmann ve Zeibig., 2001)
Diklofenak	254-282 (277)*	(Bucci ve ark., 1998) (Saheb ve ark., 2004) (European Pharmacopoeia, 2005)
Naproksen	240-280 (262)*	(European Pharmacopoeia, 2005)

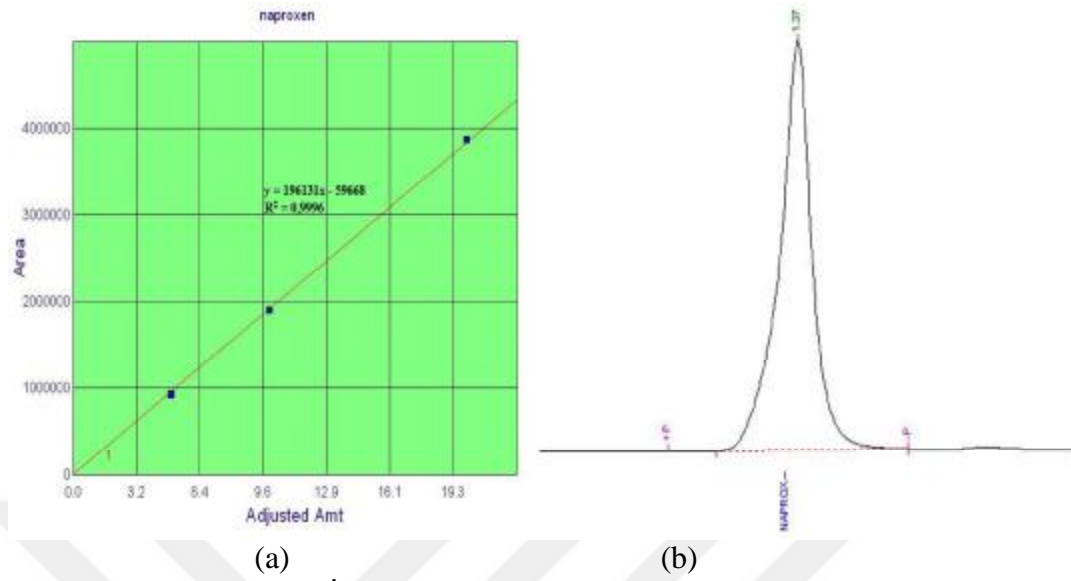
* Bu Çalışmada Seçilen Dalga Boyları

Hazırlanan standart çözeltilerden belirli konsantrasyonlarda (5, 10, 20, mg/L) hazırlanan ilaç etken maddeleri HPLC'de belirlenen dalga boylarında okunarak kalibrasyon eğrileri hazırlanarak ilaç konsantrasyonları ölçülmüştür. Kullanılan ilaç

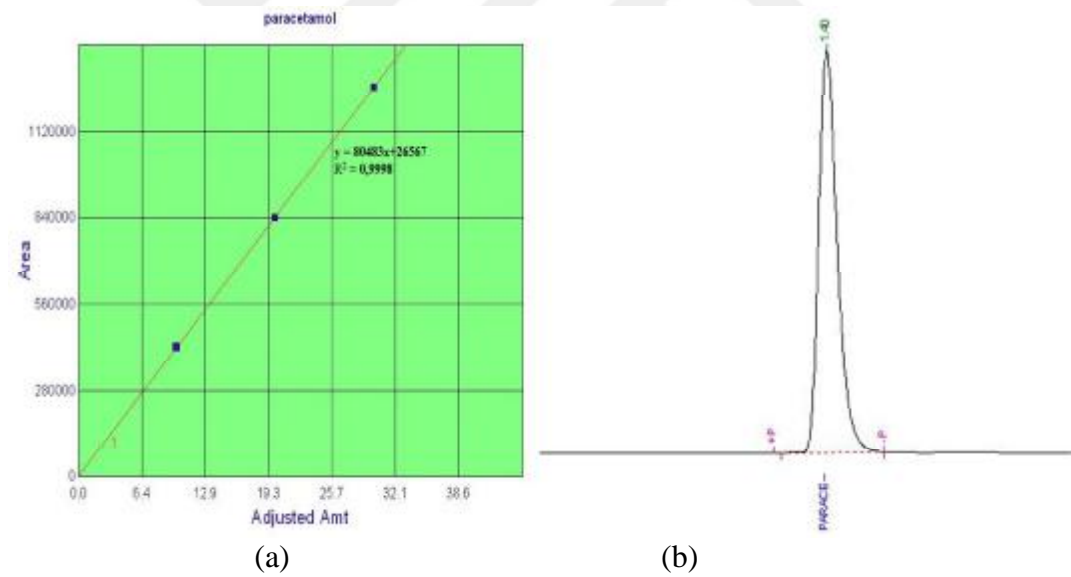
etken maddelerine göre analiz şartları Çizelge 3.6’da verilmiştir. HPLC’de yapılan kalibrasyon çalışmalarından elde edilen kalibrasyon eğrileri ve pikleri Şekil 3.4-6’da gösterilmiştir.

Çizelge 3.6. HPLC Analiz Şartları

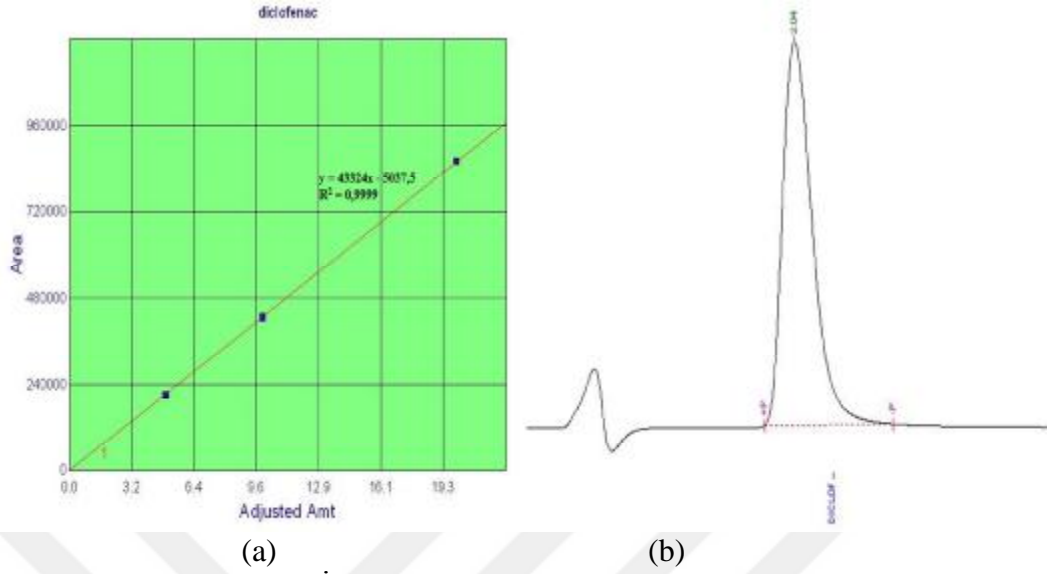
	Naproksen	Diklofenak	Parasetamol
HPLC	Perkin Elmer Series 2000 UV/Vis Detector	Perkin Elmer Series 2000 UV/VisDetector	Perkin Elmer Series 2000 UV/VisDetector
Kolon	Zorbax Eclipse XDB-C18 4,6x150 mm 5 µm	Zorbax Eclipse XDB-C18 4,6x150 mm 5 µm	Zorbax Eclipse XDB-C18 4,6x150mm 5 µm
Enjeksiyon hacmi	10 µl	10 µl	10 µl
Mobil faz	%100 metanol	%80 metanol %20 KH ₂ PO ₄ (pH: 4,5)	%100 metanol
Akış hızı	1.0 ml/dak	1.0 ml/dk	1.0 ml/dk
UVtespit dalga boyu (nm)	230	220	254
Alıkonma zamanı (dk)	1.37	2.04	1.4
LOD	0,255	0,177	0,257
LOQ	0,851	0,592	0,856
RSD(%)	0,852	0,583	0,855



Şekil 3.4. (a) Naproksen İçin Kalibrasyon Eğrisi (b) Naproksen HPLC Piki



Şekil 3.5. (a) Parasetamol İçin Kalibrasyon Eğrisi (b) Parasetamol HPLC Piki



Şekil 3.6. (a) Diklofenak İçin Kalibrasyon Eğrisi (b) Diklofenak HPLC Piki

3.2.4. Katı Faz Ayırma Metodu

HPLC’de analiz öncesi örneklerde katı faz ekstraksiyon teknikleri kullanılarak örnek hazırlama basamağı gerçekleştirilmektedir. Katı faz ekstraksiyonunu kullanmamızın nedeni örneklerin istenmeyen bileşiklerden temizlenmesi ve yoğunlaştırılmasıdır. Temizleme işlemi ile analizin yanlış sonuçlanmasına neden olabilecek, aranan maddenin tespit edilmesini engelleyebilecek veya analiz cihazının kirlenmesine neden olabilecek kirliliklerin uzaklaştırılması sağlamaktır. Numunelerdeki yoğunlaştırma işlemi ise atıksudaki ilaç konsantrasyonlarının HPLC/UV sisteminde doğrudan tespitini mümkün kılmayacak düşük seviyelerde olmasından kaynaklanmaktadır.

Katı faz ekstraksiyonu (solid phase extraction, SPE) yöntemi, sıvı-sıvı ekstraksiyon (liquid-liquid extraction, LLE) yöntemine göre; daha kısa sürede uygulanabilmesi ve daha yüksek geri kazanım oranına sahip olmasından dolayı tercih edilmiştir. HPLC analizlerinden önce numuneler Oasis HLB 3 cc 60 mg SPE kartuşu kullanılarak ekstrakte edilmekte, böylece analizlerde girişim yapacak diğer organik bileşiklerden ve kolonu tıkayabilecek inorganik iyonlardan arındırılmaktadır. Numuneler 1 N hidroklorik asit (HCL) ile pH=2’ye ayarlanmıştır. Seçilen farmasötik bileşikler asidik olduklarından atıksu numunelerinin pH’ını düşürmek bu maddelerin

ekstraksiyon kartuşu üzerinde daha fazla tutunmasını sağlayarak geri kazanımını artırır. Yapılan çalışmalarda asidik ilaçların katı faz ekstraksiyonunda en iyi geri kazanımı pH=2'de sağlanmıştır (Ollers ve ark., 2001, Koutsouba ve ark., 2003).



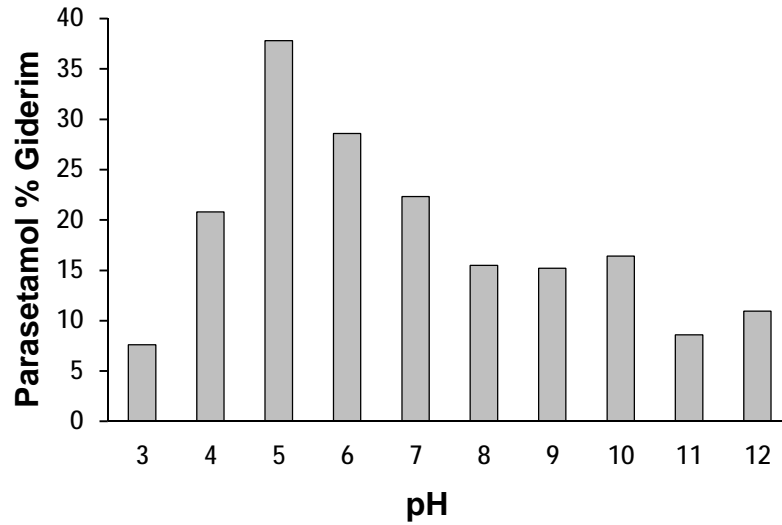
4. BULGULAR VE TARTIŞMA

4.1. Parasetamol Giderim Çalışmaları

4.1.1. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi

4.1.1.1. Optimum pH'ın Belirlemesi

Koagülant olarak FeSO₄.7H₂O kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9,10,11,12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. En yüksek parasetamol yüzde giderim oranı pH 5'de %37,8 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.1'deki grafikte gösterilmiştir.

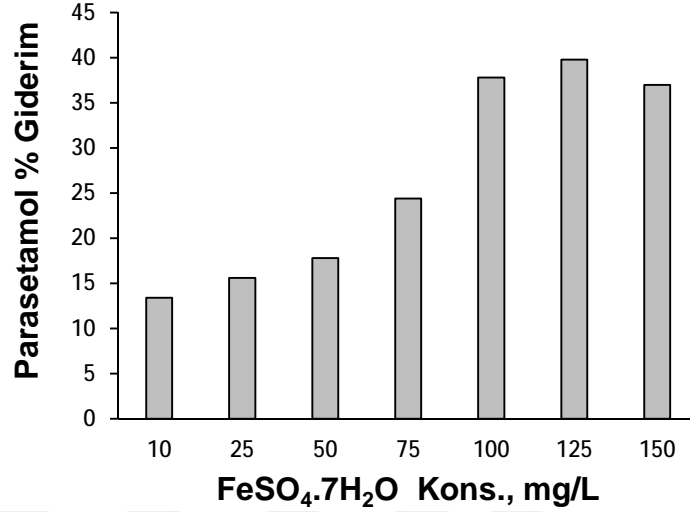


Şekil 4.1. FeSO₄.7H₂O ile koagülasyonda farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.1.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlemesi

Belirlenen optimum pH değerinde (5), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C'de, 7 farklı FeSO₄.7H₂O koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 100 mg/L

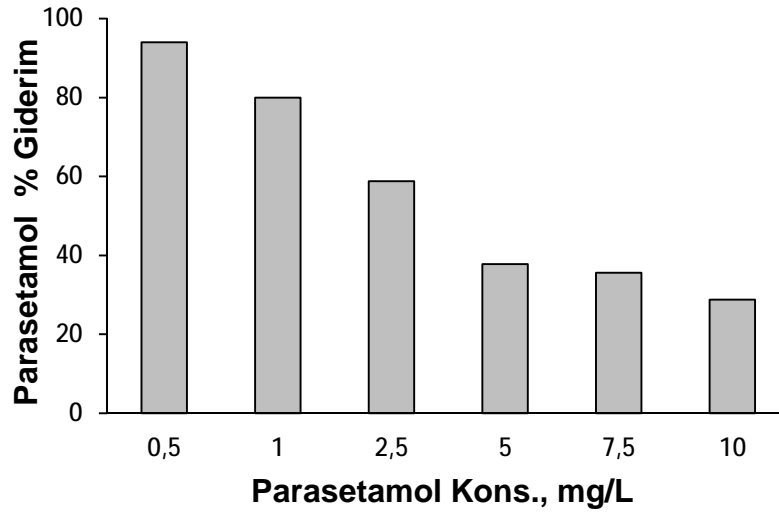
seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozunda parasetamol yüzde giderim oranı % 37,8 olarak hesaplanmıştır.



Şekil 4.2. Farklı FeSO₄.7H₂O koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.1.3. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Parasetamol Giderimine Etkisi

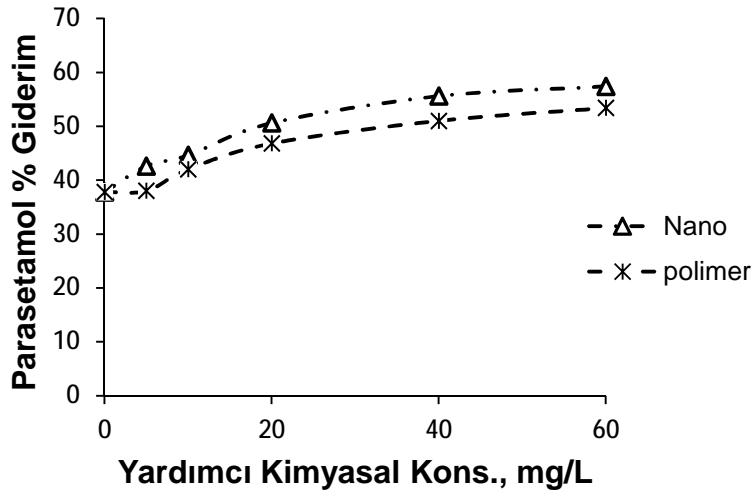
Farklı ilaç konsantrasyonlarındaki giderim oranlarını ortaya koymak amacıyla, belirlenen optimum pH ve koagülant dozu değerlerinde 6 farklı ilaç konsantrasyonunda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5 ve 10 mg/L) jar test deneyleri yapılmıştır. Çalışma sonucunda elde edilen verilerden yüzde giderim oranları hesaplanmıştır. Bulunan değerler grafik halinde şekil 4.3’de gösterilmiştir.



Şekil 4.3. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı parasetamol konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.1.1.4. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonunda Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

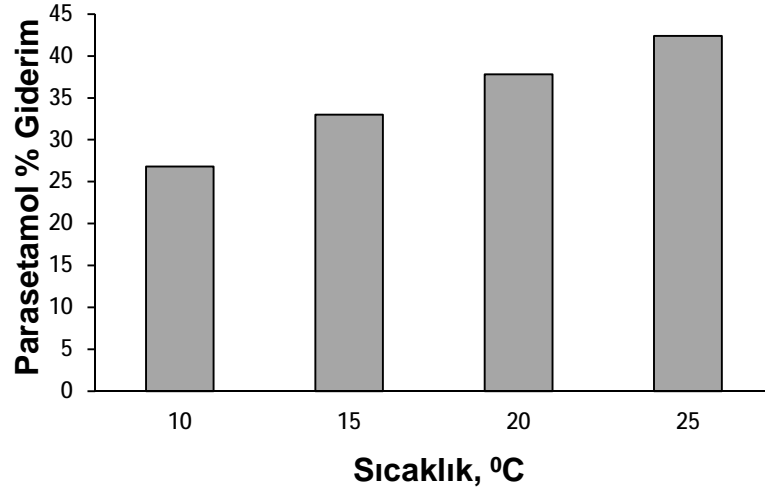
Polimer ve nano magnetitin beş farklı konsantrasyonu (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) ayrı ayrı olmak üzere koagülasyona yardımcı kimyasal olarak eklenmiştir. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonu çalışmasında koagülasyon yardımcısı olarak denenen nano magnetit ile, hali hazırda koagülasyon yardımcısı olarak kullanılan polimerden daha yüksek giderim yüzdeleri elde edildiği gözlenmiştir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.4'teki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.4. Polimer ve nano magnetitin $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.1.5. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda parasetamol giderimine sıcaklığın etkisini araştırmak amacıyla 4 farklı sıcaklık değeri (10, 15, 20 ve 25°C) jar test düzeneğine uygulanarak incelenmiştir. Sıcaklığın artmasıyla giderim yüzdesinin arttığı gözlenmiştir. 4 farklı sıcaklık değerindeki yüzde giderimler şekil 4.5'te grafik olarak gösterilmiştir.

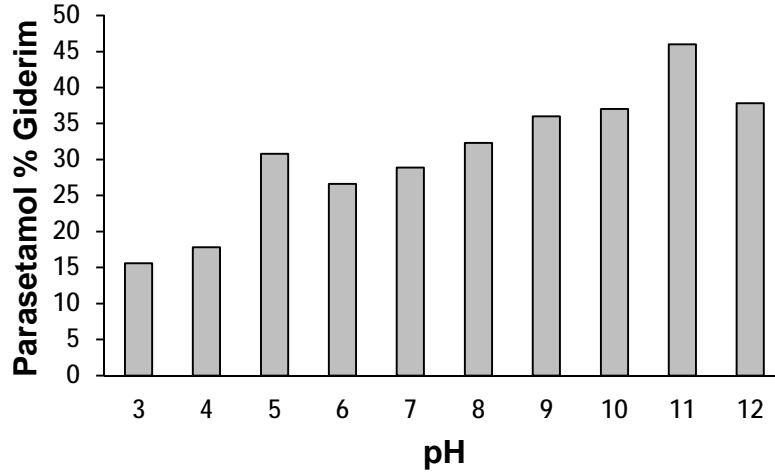


Şekil 4.5. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.2. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi

4.1.2.1. Optimum pH'ın Belirlemesi

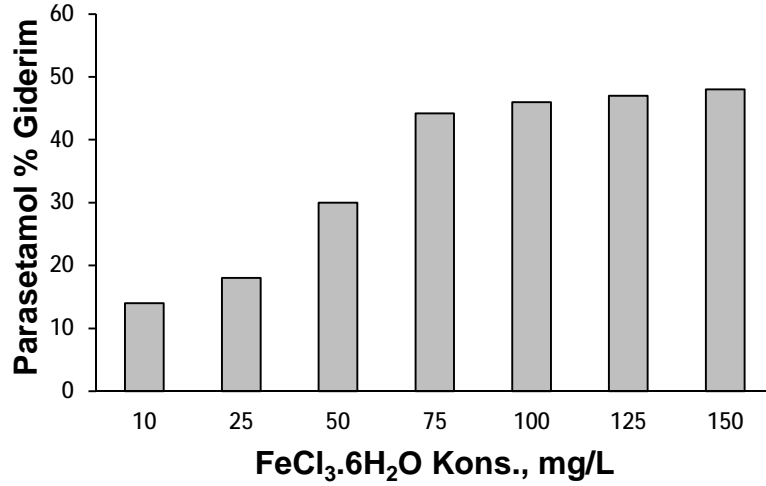
Koagülant olarak $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. En yüksek parasetamol yüzde giderim oranı pH 11'de %46 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.6'daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.6. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülantı ile farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.2.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

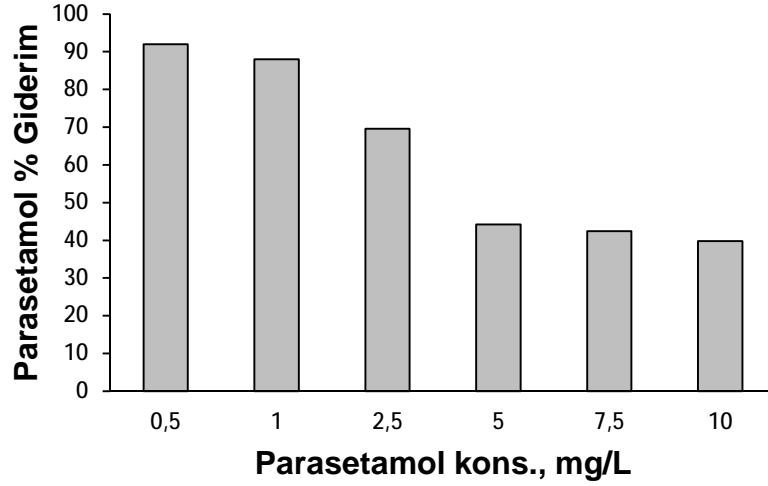
Belirlenen optimum pH değerinde (11), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C’de, 7 farklı $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 100 mg/L seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozunda parasetamol yüzde giderim oranı % 46 olarak hesaplanmıştır. Uygulanan koagülant dozları ve yüzde giderim oranları şekil 4.7’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.7. Farklı FeCl₃.6H₂O koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.2.3. FeCl₃.6H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Parasetamol Giderimine Etkisi

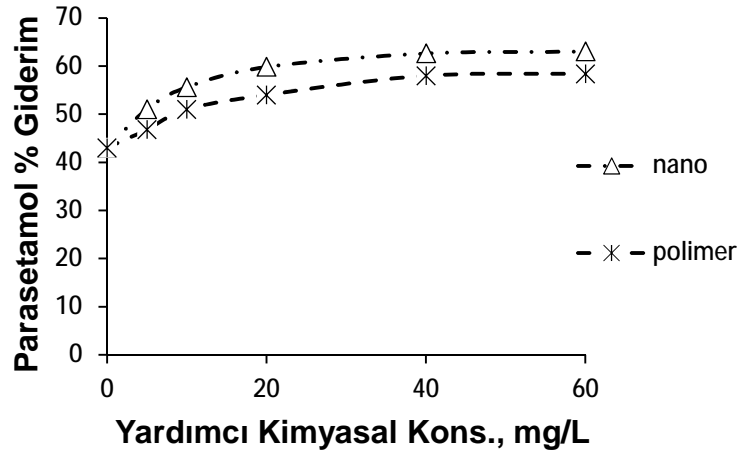
FeCl₃.6H₂O koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon çalışmasında farklı ilaç konsantrasyonlarındaki giderim oranlarını ortaya koymak amacıyla, belirlenen optimum pH ve koagülant dozu değerlerinde 6 farklı ilaç konsantrasyonunda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5 ve 10 mg/L) jar test deneyleri yapılmıştır. Çalışma sonucunda elde edilen verilerden yüzde giderim oranları hesaplanmıştır. Bulunan değerler grafik halinde şekil 4.8’de gösterilmiştir.



Şekil 4.8. FeCl₃.6H₂O ile koagülasyonda farklı parasetamol konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.1.2.4. FeCl₃.6H₂O Koagülasyonunda Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

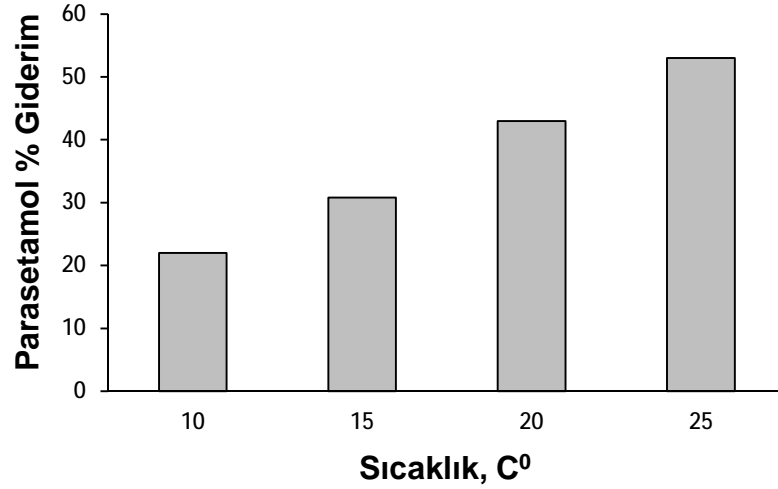
Polimer ve nano magnetitin beş farklı konsantrasyonu (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) ayrı ayrı olmak üzere FeCl₃.6H₂O ile koagülasyona yardımcı kimyasal olarak eklenmiştir. Çalışmada koagülasyon yardımcısı olarak denenen nano magnetit ile, hali hazırda koagülasyon yardımcısı olarak kullanılan polimerden daha yüksek giderim yüzdeleri elde edildiği gözlenmiştir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.9'da grafik ile gösterilmiştir.



Şekil 4.9. Polimer ve nano magnetitin $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.2.5. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

$\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda parasetamol giderimine sıcaklığın etkisini araştırmak amacıyla 4 farklı sıcaklık değeri (10, 15, 20 ve 25°C) jar test düzeneğine uygulanarak incelenmiştir. Sıcaklığın artmasıyla giderim yüzdesinin arttığı gözlenmiştir. 4 farklı sıcaklık değerindeki yüzde giderimler şekil 4.10'daki grafikte gösterilmiştir.

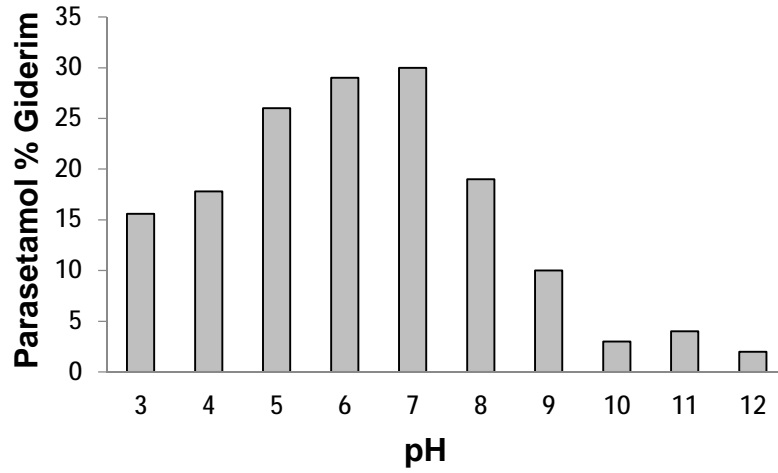


Şekil 4.10. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.3. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi

4.1.3.1. Optimum pH'm Belirlemesi

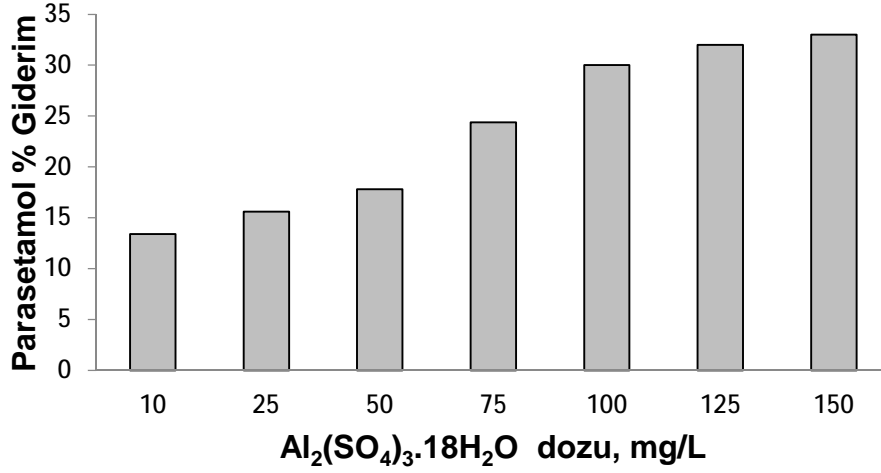
Koagülant olarak $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 20 C°'de, 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda 10 farklı pH değeri (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9,10,11,12) için jar test deneyleri yapılmıştır. En yüksek parasetamol yüzde giderim oranı pH 7'de %30 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.11'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.11. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülantı ile farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.3.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

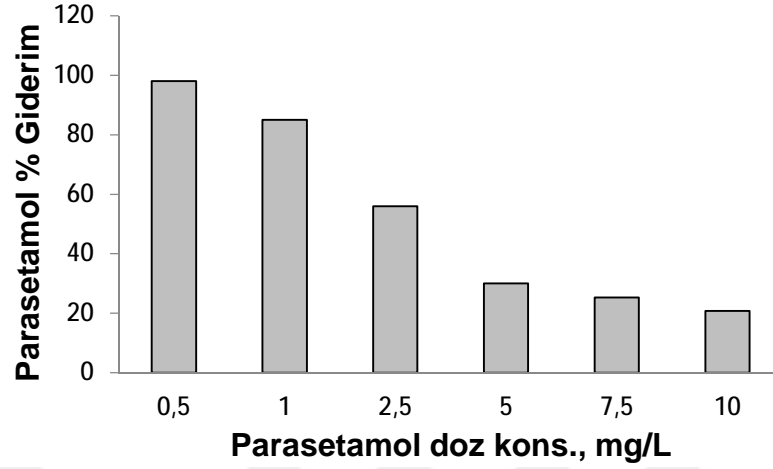
Belirlenen optimum pH değerinde (7), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C’de, 7 farklı $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 100 mg/L seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozunda parasetamol yüzde giderim oranı % 30 olarak hesaplanmıştır. Uygulanan koagülant dozları ve yüzde giderim oranları şekil 4.12’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.12. Farklı $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.3.3. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Parasetamol Giderimine Etkisi

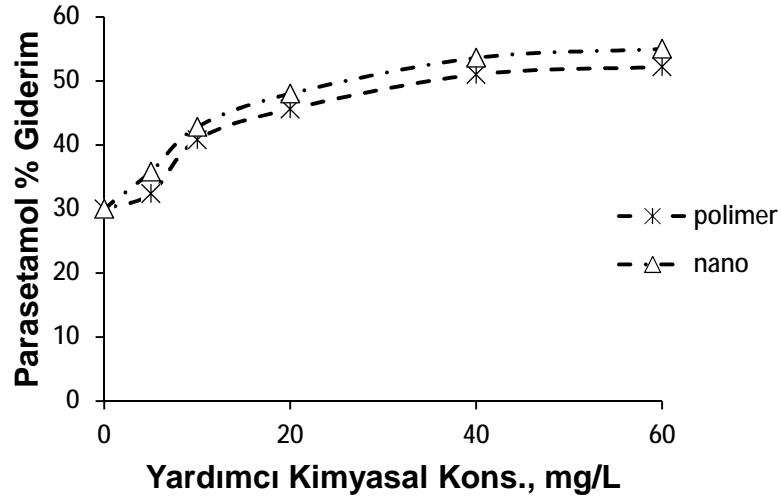
$Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon çalışmasında farklı ilaç konsantrasyonlarındaki giderim oranlarını ortaya koymak amacıyla, belirlenen optimum pH ve koagülant dozu değerlerinde 6 farklı ilaç konsantrasyonunda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5 ve 10 mg/L) jar test deneyleri yapılmıştır. Çalışma sonucunda elde edilen verilerden yüzde giderim oranları hesaplanmıştır. Bulunan değerler grafik halinde şekil 4.13’de gösterilmiştir.



Şekil 4.13. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda farklı parasetamol konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.1.3.4. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonunda Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

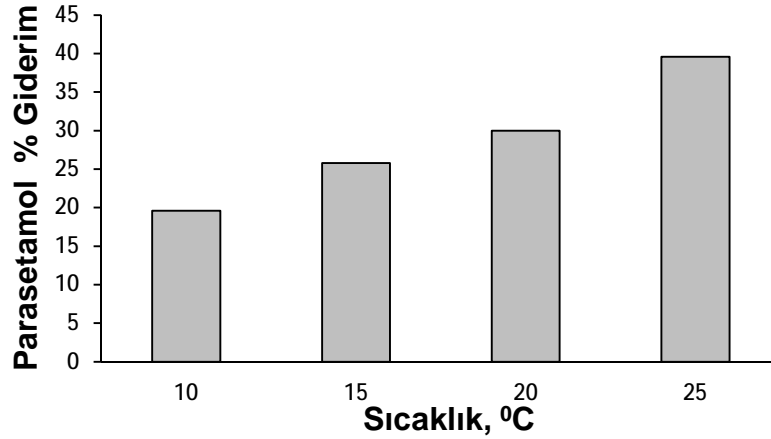
Polimer ve nano magnetitin beş farklı konsantrasyonu (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) ayrı ayrı olmak üzere $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda yardımcı kimyasal olarak eklenmiştir. Çalışmada koagülasyon yardımcısı olarak denenen nano magnetit ile, hali hazırda koagülasyon yardımcısı olarak kullanılan polimerden daha yüksek giderim yüzdeleri elde edildiği gözlenmiştir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.14'da grafik ile gösterilmiştir.



Şekil 4.14. Polimer ve nano magnetitin $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.3.5. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

$Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda parasetamol giderimine sıcaklığın etkisini araştırmak amacıyla 4 farklı sıcaklık değeri (10, 15, 20 ve 25°C) jar test düzeneğine uygulanarak incelenmiştir. Sıcaklığın artmasıyla giderim yüzdesinin arttığı gözlenmiştir. 4 farklı sıcaklık değerindeki yüzde giderimler şekil 4.15'deki grafikte gösterilmiştir.

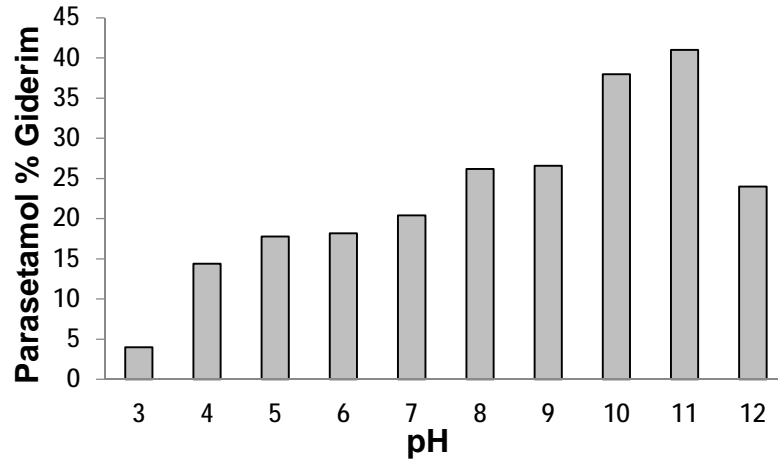


Şekil 4.15. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.4. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminin İncelenmesi

4.1.4.1. Optimum pH'in Belirlemesi

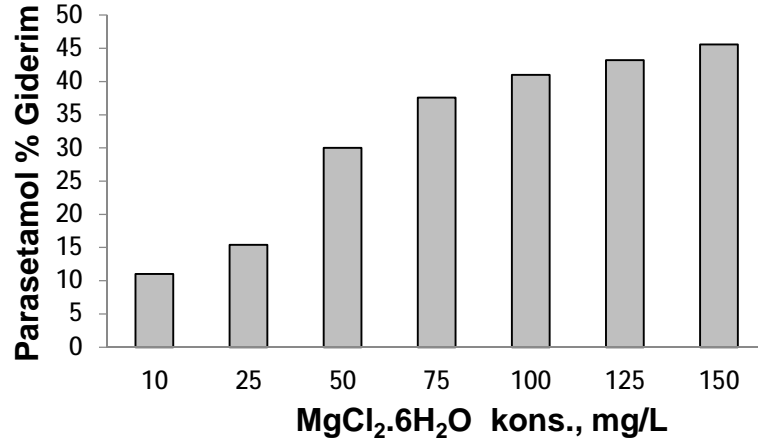
Koagülant olarak $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 20 C°'de, 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda 10 farklı pH değeri (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9,10,11,12) için jar test deneyleri yapılmıştır. En yüksek parasetamol yüzde giderim oranı pH 11'de %41 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.16'daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.16. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülantı ile farklı pH değerlerinde parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.4.2. Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

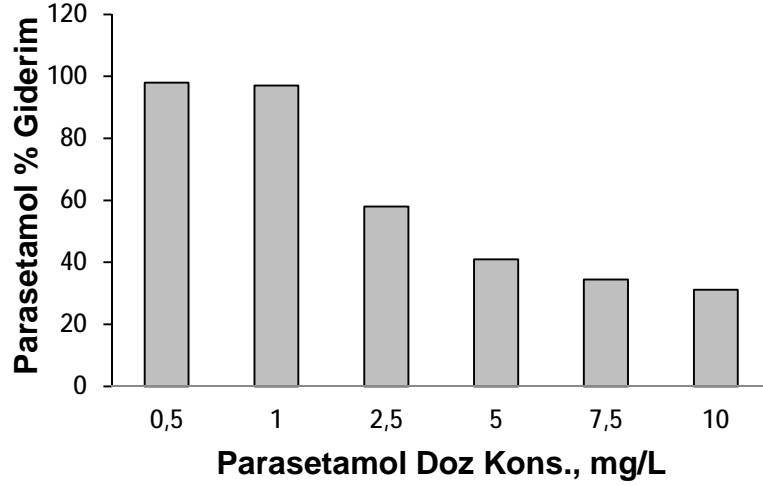
Belirlenen optimum pH değerinde (11), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C’de, 7 farklı $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 100 mg/L seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozunda parasetamol yüzde giderim oranı % 41 olarak hesaplanmıştır. Uygulanan koagülant dozları ve yüzde giderim oranları şekil 4.17’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.17. Farklı MgCl₂.6H₂O koagülantı dozlarında parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.4.3. MgCl₂.6H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Parasetamol Giderimine Etkisi

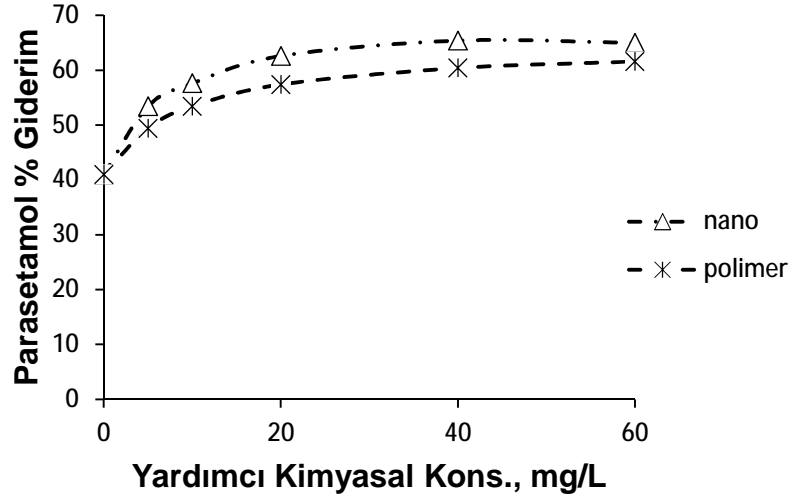
MgCl₂.6H₂O koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon çalışmasında farklı ilaç konsantrasyonlarındaki giderim oranlarını ortaya koymak amacıyla, belirlenen optimum pH ve koagülant dozu değerlerinde 6 farklı ilaç konsantrasyonunda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5 ve 10 mg/L) jar test deneyleri yapılmıştır. Çalışma sonucunda elde edilen verilerden yüzde giderim oranları hesaplanmıştır. Bulunan değerler grafik halinde şekil 4.18’de gösterilmiştir.



Şekil 4.18. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda farklı parasetamol konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.1.4.4. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonunda Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetit Denenmesi

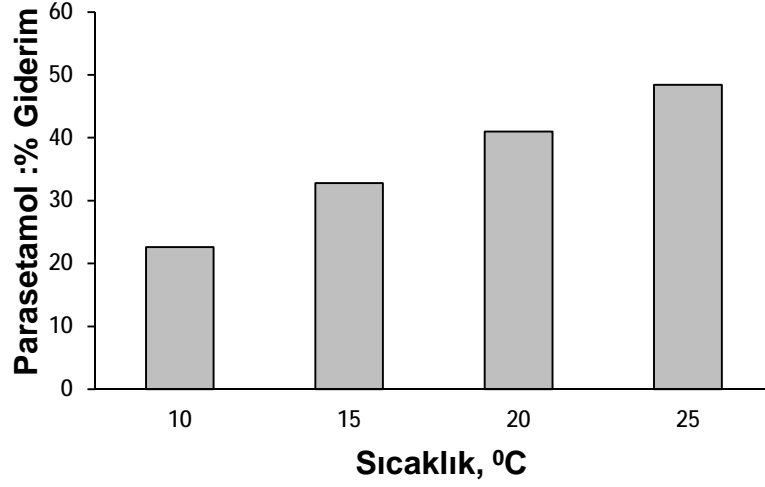
$MgCl_2 \cdot 6H_2O$ 'un koagülant olarak kullanıldığı çalışmalarda polimer ve nano magnetit koagülasyona yardımcı kimyasal olarak denendi. Çalışmada tüm optimum şartlar sabit tutularak her iki malzemenin 5 farklı konsantrasyonunda (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) denemeler yapıldı. Yaygın bir koagülant yardımcısı olarak kullanılan polimerin giderim oranlarının nano magnetit malzemenin giderim oranlarına kıyasla daha düşük olduğu gözlemlendi. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.19'daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.19. Polimer ve nano magnetitin $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.4.5. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonu ile Parasetamol Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

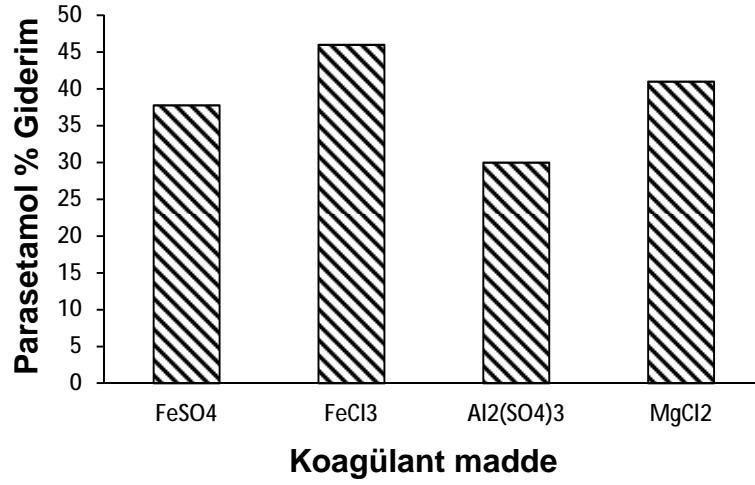
$MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda parasetamol giderimine sıcaklığın etkisini araştırmak amacıyla 4 farklı sıcaklık değeri (10, 15, 20 ve 25°C) jar test düzeneğine uygulanarak incelenmiştir. Sıcaklığın artmasıyla giderim yüzdesinin arttığı gözlenmiştir. 4 farklı sıcaklık değerindeki yüzde giderimler şekil 4.20'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.20. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki parasetamol yüzde giderim oranları

4.1.5. Parasetamol Giderimi ve Tartışmalar

Parasetamol ilaç etken maddesinin 4 farklı koagülant için optimum pH ve dozajları belirlenmiştir. Elde edilen sonuçların karşılaştırabilmesi amacıyla koagülant madde bazında değerlerin grafiksel gösterimi yapılmıştır. Parasetamol ilaç etken maddesinin 4 farklı koagülant için elde edilen optimum pH ve dozda giderim verimleri şekil 4.21'deki grafikte gösterilmiştir. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ve $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda optimum giderim oranına pH 11'de ulaşılmıştır.



Şekil 4.21. Parasetamolün 4 farklı koagülant madde ile optimum şartlarda yüzde giderim verim değerleri

Son yıllarda oktanol/su ayırıştırma katsayısı (K_{ow}) olarak adlandırılan organik kimyasalların çevresel ortamlardaki akıbetleri konusunda yapılan çalışmalarda anahtar parametre haline gelmiştir. K_{ow} değeri, bir maddenin iki fazındaki (n-oktanol ve su fazı) ayrışma katsayısını karakterize etmektedir (Kabak ve Basibuyuk, 2012). Ayrıca farmasötiklerin sudan giderilmesinde hidrofobik ve hidrofilik özellikleri önem taşımaktadır (Westerhoff ve diğ., 2005).

Parasetamol düşük $\log K_{ow}$ değerine sahiptir ve bu sebeple hidrofilik yapıdadır. Buna karşılık parasetamolün pK_a 9,4 olmasından dolayı yüksek pH değerlerinde hidrofobik olabilmektedir. Parasetamolün yüksek pH'larda gideriminin daha yüksek olmasının nedeninin, pK_a değerinin bu pH'lara yakın olmasından dolayı yüksek pH değerlerinde daha az iyonize olduğu ve bu sebeple floklara tutunmasının daha muhtemel olması olduğu düşünülmektedir (Larous ve Meniai, 2016).

İlaç konsantrasyonunun koagülasyonla giderime olan etkisini araştırmak amacıyla 6 farklı parasetamol konsantrasyonunda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5, 10 mg/L) koagülasyon çalışmaları yapılmıştır. İlaç konsantrasyonu arttıkça giderim verimlerinin azaldığı görülmüştür. Düşük konsantrasyonlarda giderim verimi %100'e yakın olarak tespit edilmiştir.

Parasetamol koagülasyon çalışmalarında dört farklı koagülant için dört farklı sıcaklık değerinde yüzde giderim verimleri incelenmiş olup sıcaklığın

artmasıyla giderim verimlerinin arttığı görülmüştür. Xiao ve arkadaşları düşük sıcaklığın yumaklaşma oranına olumsuz etki ettiğini bildirmişlerdir (Xiao ve diğ., 2009). Ayrıca Guan ve arkadaşları yaptığı çalışmada sıcaklığın artması ile bulanıklık gideriminin arttığını görmüşlerdir (Guan ve diğ., 2011). Bu çalışmada parasetamol giderim veriminin sıcaklık artışıyla artmasının, flok yapısının artmasından ve büyümesinden kaynaklandığı düşünülmektedir.

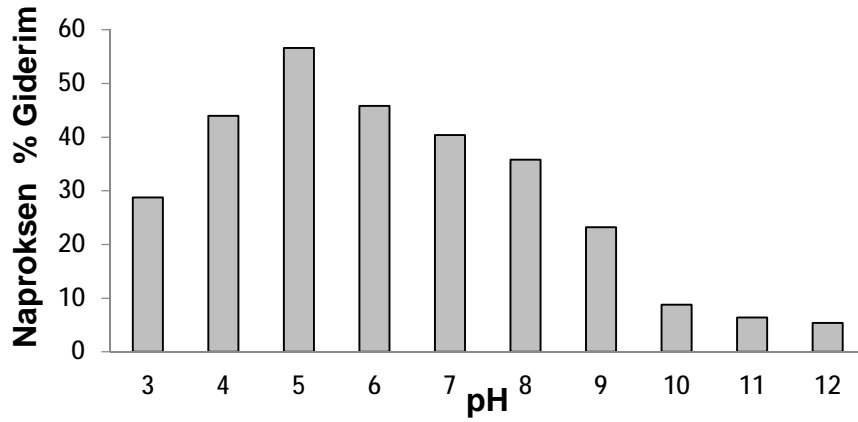
Demir oksit (Fe_3O_4) moleküllerinin (nano magnetit) yüksek spesifik yüzey alanına sahip olduğu bilinmektedir ve bu nedenle çevre mühendisliğinde geniş kullanım alanına sahiptir (Bagheri ve diğ., 2017; Lasheen ve diğ., 2016). Bu çalışmada yardımcı koagülant olarak kullanılan nano magnetit ile ilaç giderim verimlerinin arttığı tespit edilmiştir. Bunun sebebi olarak; ilaç etken maddenin nano magnetitin yüzeyine adsorpsiyon prosesine dayalı olarak tutunduğu düşünülmektedir.

4.2. Naproksen Giderim Çalışmaları

4.2.1. $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminin İncelenmesi

4.2.1.1. Optimum pH Çalışması

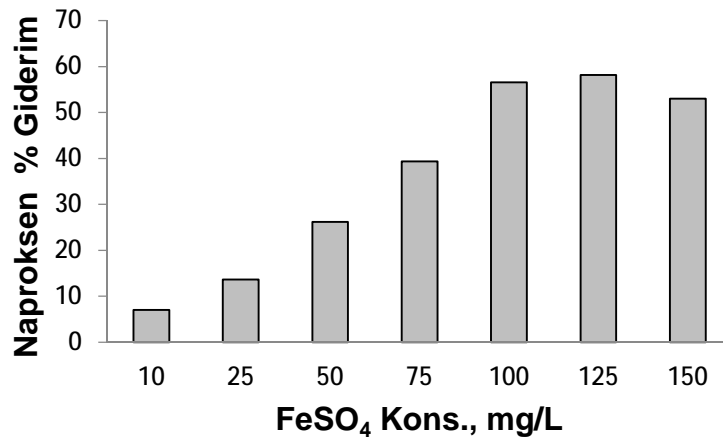
Naproksen gideriminin incelenmesi için yapılan çalışmada koagülant olarak $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. Optimum naproksen yüzde giderim oranı pH 5’de %56,6 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.21’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.22. FeSO₄.7H₂O koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki giderim oranları

4.2.1.2. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

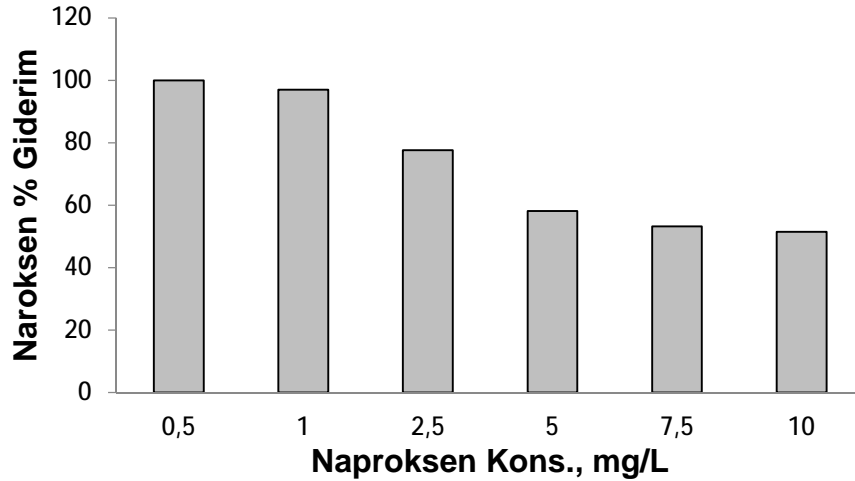
Belirlenen optimum pH değerinde (5), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C’de, 7 farklı FeSO₄.7H₂O koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 125 mg/L seçilmiştir. 125 mg/L koagülant dozunda naproksen yüzde giderim oranı % 58,2 olarak hesaplanmıştır. Uygulanan koagülant dozları ve yüzde giderim oranları şekil 4.22’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.23. Farklı FeSO₄.7H₂O koagülantı dozlarında naproksen yüzde giderim oranları

4.2.1.3. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Naproksen Giderimine Etkisi

FeSO₄.7H₂O koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon çalışmasında farklı ilaç konsantrasyonlarındaki giderim oranlarını ortaya koymak amacıyla, belirlenen optimum pH ve koagülant dozu değerlerinde 6 farklı ilaç konsantrasyonunda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5 ve 10 mg/L) jar test deneyleri yapılmıştır. Çalışma sonucunda elde edilen verilerden yüzde giderim oranları hesaplanmıştır. Bulunan değerler grafik halinde şekil 4.23'de gösterilmiştir.

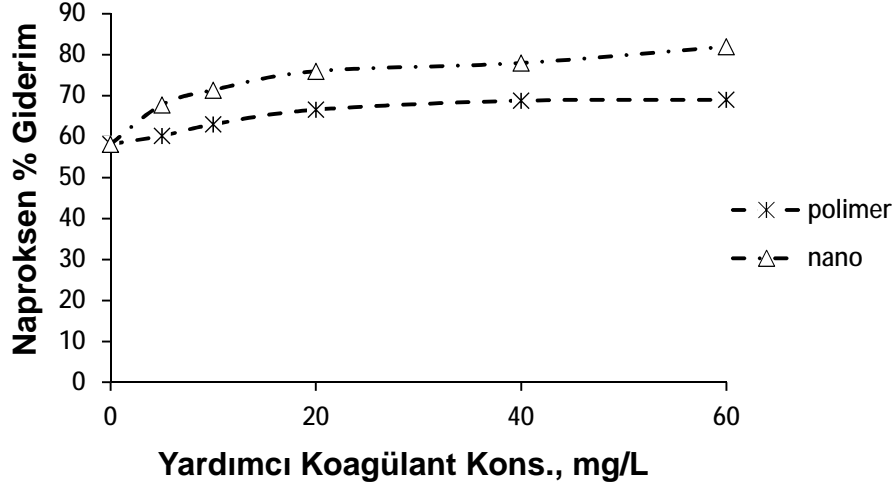


Şekil 4.24. FeSO₄.7H₂O ile koagülasyonda farklı naproksen konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.2.1.4. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

FeSO₄.7H₂O'un koagülant olarak kullanıldığı çalışmada polimer ve nano magnetit koagülasyona yardımcı kimyasal olarak denendi. Çalışmada tüm optimum şartlar sabit tutularak her iki malzemenin 5 farklı konsantrasyonunda (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) denemeler yapıldı. Yaygın bir koagülant yardımcısı olarak kullanılan polimerin giderim oranlarının nano magnetit malzemenin giderim oranlarına kıyasla

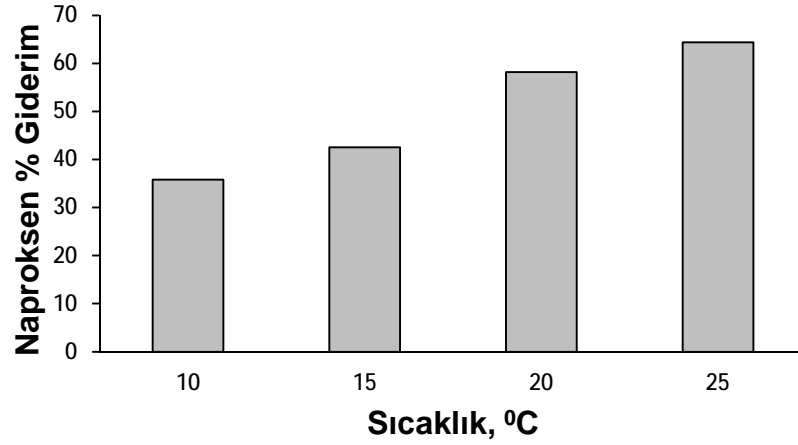
daha düşük olduğu gözlemlendi. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.24'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.25. Polimer ve nano magnetitin $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda naproksen yüzde giderim oranları

4.2.1.5. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

Naproksen giderim çalışmalarında $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda sıcaklığın etkisini ortaya koymak amacıyla elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda 4 farklı sıcaklık (10, 15, 20, 25 °C) çalışılmıştır. Sıcaklığın artması ile yüzde giderim veriminin arttığı gözlenmiştir. Sıcaklık değerlerine karşılık elde edilen yüzde giderim verimleri şekil 4.25'deki grafikte gösterilmiştir.

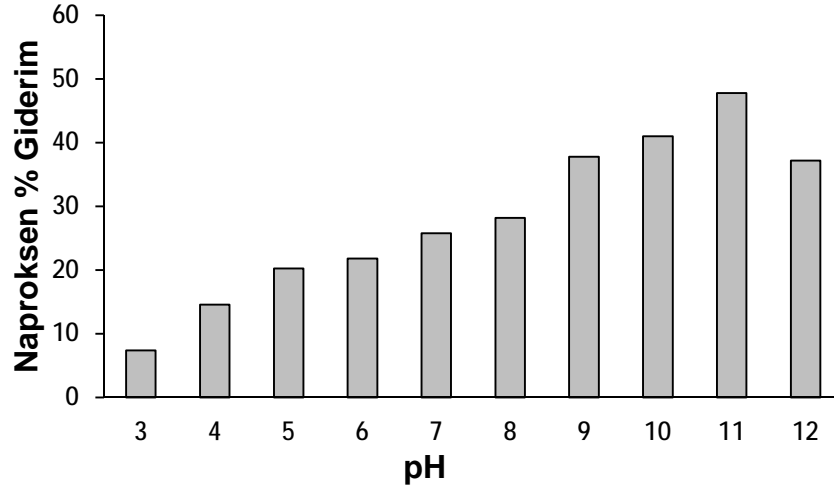


Şekil 4.26. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki naproksen yüzde giderim oranları

4.2.2. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminin İncelenmesi

4.2.2.1. Optimum pH'm belirlenmesi

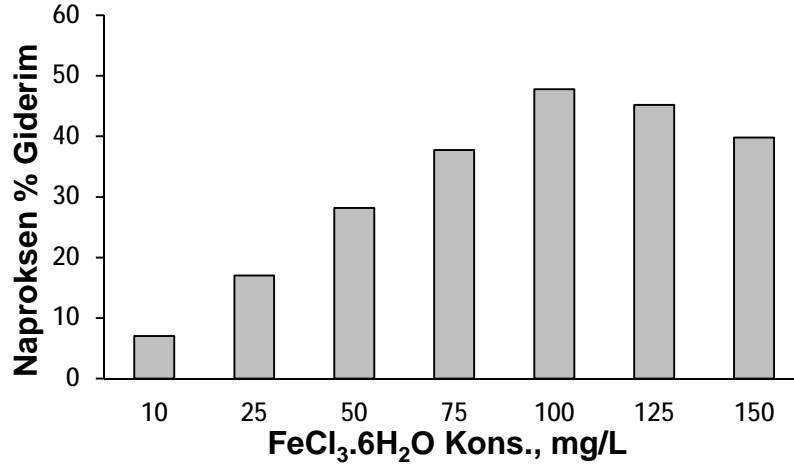
Naproksen gideriminin incelenmesi için yapılan çalışmada koagülant olarak $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. Optimum naproksen yüzde giderim oranı pH 11'de %47,8 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.26'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.27. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki giderim oranları

4.2.2.2. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

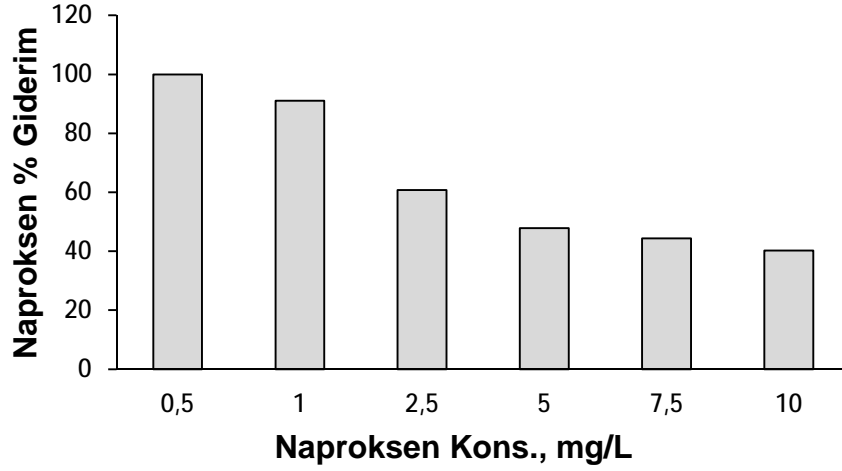
Belirlenen optimum pH değerinde (11), 5 mg/L ilaç konsantrasyonu ve 20°C'de, 7 farklı $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Yapılan çalışma sonucunda optimum koagülant dozu olarak 100 mg/L seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozunda naproksen yüzde giderim oranı % 47,8 olarak hesaplanmıştır. Uygulanan koagülant dozları ve yüzde giderim oranları şekil 4.27'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.28. Farklı FeCl₃.6H₂O koagülantı dozlarında naproksen yüzde giderim oranları

4.2.2.3. FeCl₃.6H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Naproksen Giderimine Etkisi

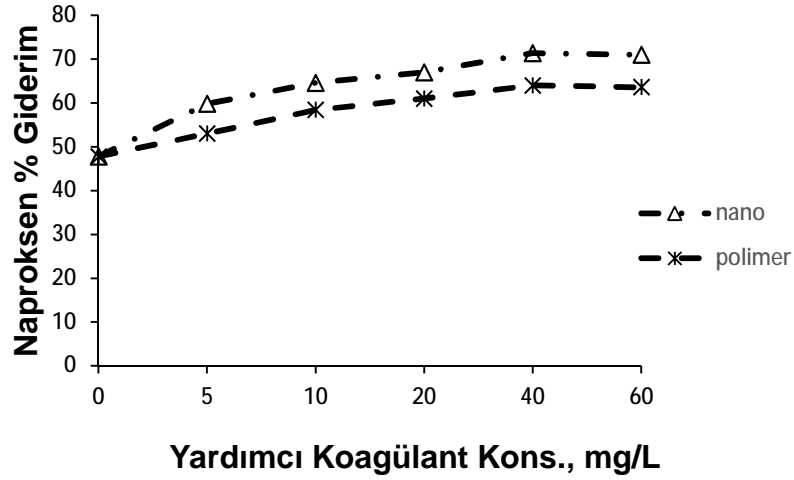
FeCl₃.6H₂O koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon çalışmasında farklı ilaç konsantrasyonlarındaki giderim oranlarını ortaya koymak amacıyla, belirlenen optimum pH ve koagülant dozu değerlerinde 6 farklı ilaç konsantrasyonunda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5 ve 10 mg/L) jar test deneyleri yapılmıştır. Çalışma sonucunda elde edilen verilerden yüzde giderim oranları hesaplanmıştır. Bulunan değerler grafik halinde şekil 4.28’de gösterilmiştir.



Şekil 4.29. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda farklı naproksen konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.2.2.4. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

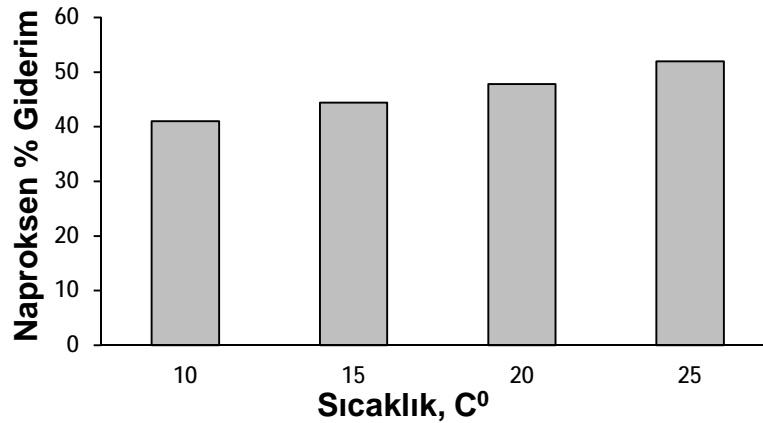
$\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 'un koagülant olarak kullanıldığı çalışmada polimer ve nano magnetit koagülasyona yardımcı kimyasal olarak denendi. Çalışmada tüm optimum şartlar sabit tutularak her iki malzemenin 5 farklı konsantrasyonunda (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) denemeler yapıldı. Yaygın bir koagülant yardımcısı olarak kullanılan polimerin naproksen giderim oranlarının nano magnetit malzemenin giderim oranlarına kıyasla daha düşük olduğu görülmektedir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.29'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.30. Polimer ve nano magnetitin $FeCl_3.6H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda naproksen yüzde giderim oranları

4.2.2.5. $FeCl_3.6H_2O$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

Naproksen giderim çalışmalarında $FeCl_3.6H_2O$ ile koagülasyonda sıcaklığın etkisini ortaya koymak amacıyla elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda 4 farklı sıcaklık (10, 15, 20, 25 °C) çalışılmıştır. Sıcaklığın artması ile yüzde giderim veriminin arttığı gözlenmiştir. Sıcaklık değerlerine karşılık elde edilen yüzde giderim verimleri şekil 4.30'daki grafikte gösterilmiştir.

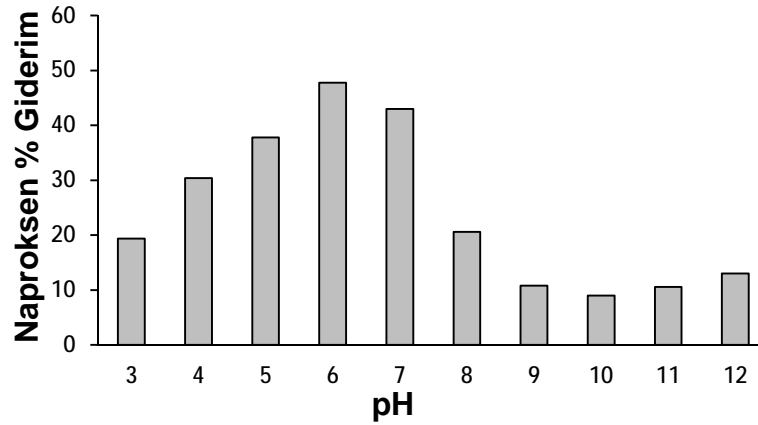


Şekil 4.31. $FeCl_3.6H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki naproksen yüzde giderim oranları

4.2.3. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminin İncelenmesi

4.2.3.1. Optimum pH Çalışması

Naproksen gideriminin incelenmesi için yapılan çalışmada koagülant olarak $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. Optimum naproksen yüzde giderim oranı pH 6'da %47,8 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.31'deki grafikte gösterilmiştir.

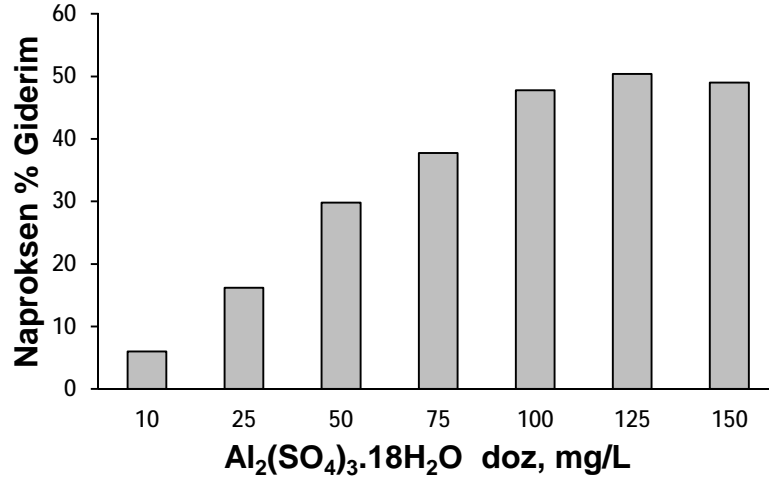


Şekil 4.32. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki naproksen giderim yüzdeleri

4.2.3.2. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

$\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon deneylerinde belirlenen optimum pH değerinde (6), 5 mg/L naproksen konsantrasyonu ve 20°C'de, 7 farklı $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Deneyler sonucunda optimum koagülant dozu 125 mg/L olarak seçilmiştir. 125 mg/L koagülant dozundaki yüzde giderim verimi %50,4 olarak

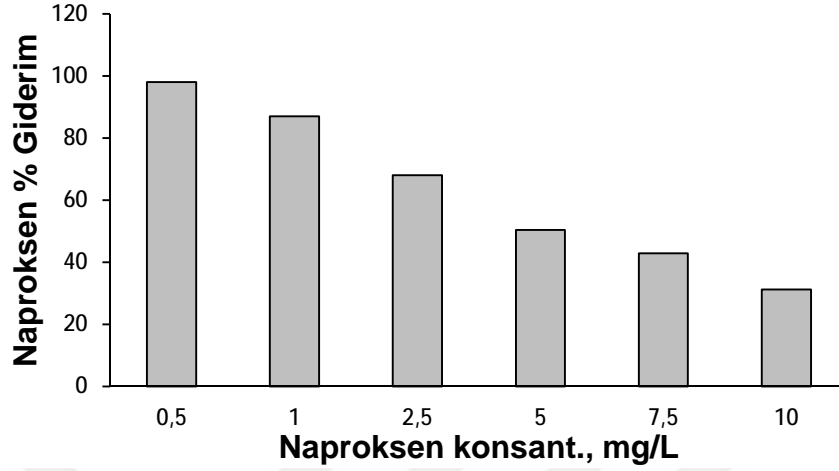
hesaplanmıştır. Koagülant dozlarına karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.32'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.33. Farklı Al₂(SO₄)₃.18H₂O koagülantı dozlarında naproksen yüzde giderim oranları

4.2.3.3. Al₂(SO₄)₃.18H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Naproksen Giderimine Etkisi

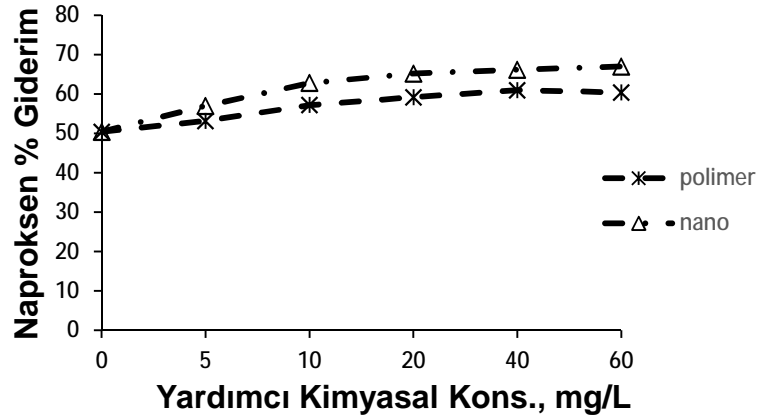
Al₂(SO₄)₃.18H₂O'ın koagülant olarak kullanıldığı naproksen giderim çalışmasında ilaç konsantrasyonunun naproksen giderimine etkisi incelenmiştir. Bu amaçla 6 farklı naproksen konsantrasyonu (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5, 10 mg/L) eklenerek elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda jar test deneyleri yapılmıştır. İlaç konsantrasyonlarına karşılık gelen giderim oranları şekil 4.33'de gösterilmiştir.



Şekil 4.34. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda farklı naproksen konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.2.3.4. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

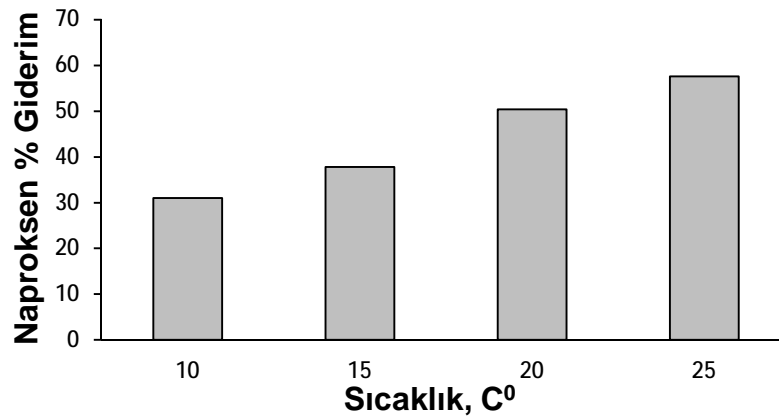
$Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ 'ın koagülant olarak kullanıldığı çalışmada polimer ve nano magnetit koagülasyona yardımcı kimyasal olarak denendi. Çalışmada tüm optimum şartlar sabit tutularak her iki malzemenin 5 farklı konsantrasyonunda (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) denemeler yapıldı. Yaygın bir koagülant yardımcısı olarak kullanılan polimerin naproksen giderim oranlarının nano magnetit malzemenin giderim oranlarına kıyasla daha düşük olduğu görülmektedir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.34'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.35. Polimer ve nano magnetitin $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda naproksen yüzde giderim oranları

4.2.3.5. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

Naproksen giderim çalışmalarında $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda sıcaklığın etkisini ortaya koymak amacıyla elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda 4 farklı sıcaklık (10, 15, 20, 25 °C) çalışılmıştır. Sıcaklığın artması ile yüzde giderim veriminin arttığı gözlenmiştir. Sıcaklık değerlerine karşılık elde edilen yüzde giderim verimleri şekil 4.35'deki grafikte gösterilmiştir.

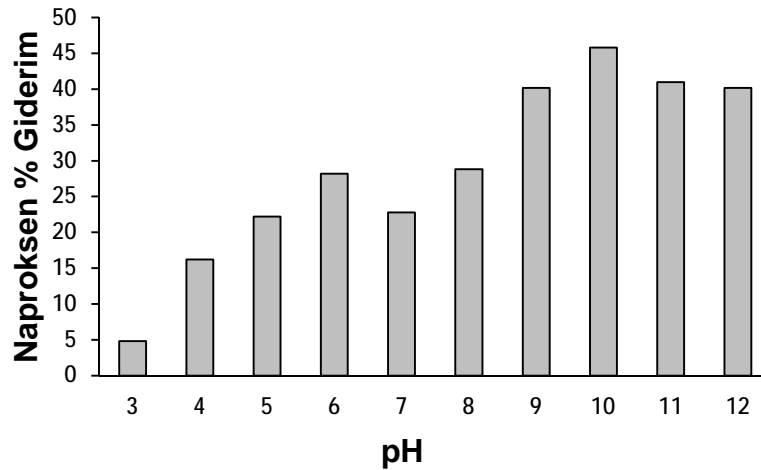


Şekil 4.36. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki naproksen yüzde giderim oranları

4.2.4. MgCl₂.6H₂O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminin İncelenmesi

4.2.4.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi

Naproksen gideriminin incelenmesi için yapılan çalışmada koagülant olarak MgCl₂.6H₂O kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. Optimum naproksen yüzde giderim oranı pH 10'da %45,8 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.36'deki grafikte gösterilmiştir.

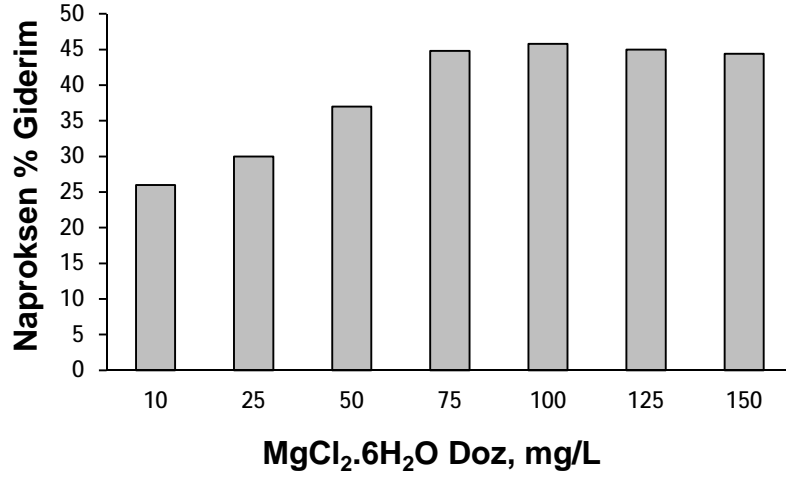


Şekil 4.37. MgCl₂.6H₂O koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki naproksen giderim yüzdeleri

4.2.4.2. MgCl₂.6H₂O Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

MgCl₂.6H₂O koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon deneylerinde belirlenen optimum pH değerinde (10), 5 mg/L naproksen konsantrasyonu ve 20°C'de, 7 farklı MgCl₂.6H₂O koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Deneyler sonucunda optimum koagülant dozu 100 mg/L olarak seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozundaki yüzde giderim verimi %45,8 olarak

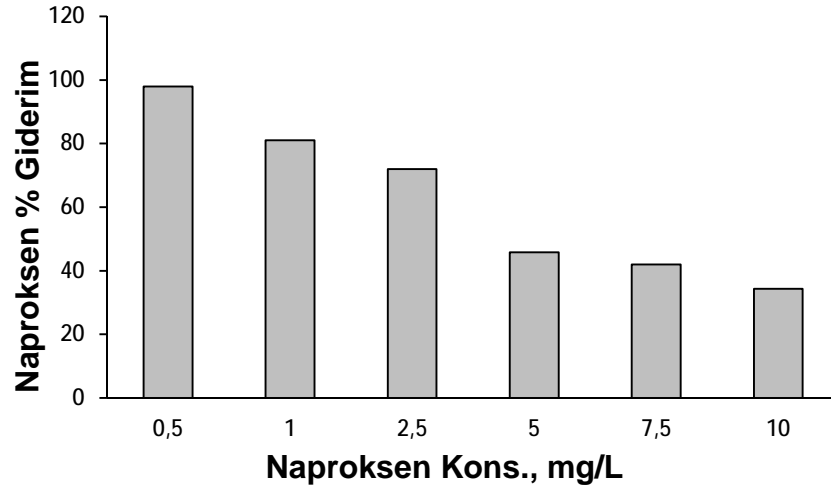
hesaplanmıştır. Koagülant dozlarına karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.37'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.38. Farklı MgCl₂.6H₂O koagülant dozlarında naproksen giderim yüzdeleri

4.2.4.3. MgCl₂.6H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Naproksen Giderimine Etkisi

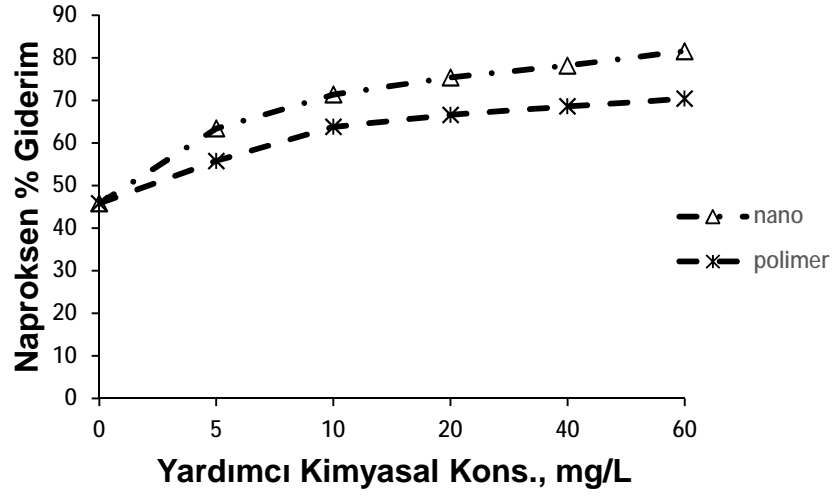
MgCl₂.6H₂O'ın koagülant olarak kullanıldığı naproksen giderim çalışmasında ilaç konsantrasyonunun naproksen giderimine etkisi incelenmiştir. Bu amaçla 6 farklı naproksen konsantrasyonu (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5, 10 mg/L) eklenerek elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda jar test deneyleri yapılmıştır. İlaç konsantrasyonlarına karşılık gelen giderim oranları şekil 4.38'de gösterilmiştir.



Şekil 4.39. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda farklı naproksen konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.2.4.4. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

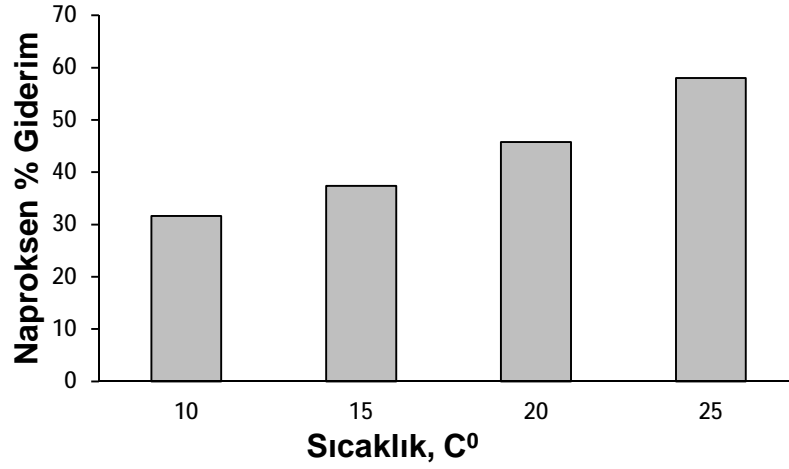
$MgCl_2 \cdot 6H_2O$ 'ün koagülant olarak kullanıldığı çalışmada polimer ve nano magnetit koagülasyona yardımcı kimyasal olarak denendi. Çalışmada tüm optimum şartlar sabit tutularak her iki malzemenin 5 farklı konsantrasyonunda (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) denemeler yapıldı. Yaygın bir koagülant yardımcısı olarak kullanılan polimerin naproksen giderim oranlarının nano magnetit malzemenin giderim oranlarına kıyasla daha düşük olduğu görülmektedir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.39'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.40. Polimer ve nano magnetitin $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda naproksen yüzde giderim oranları

4.2.4.5. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonu ile Naproksen Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

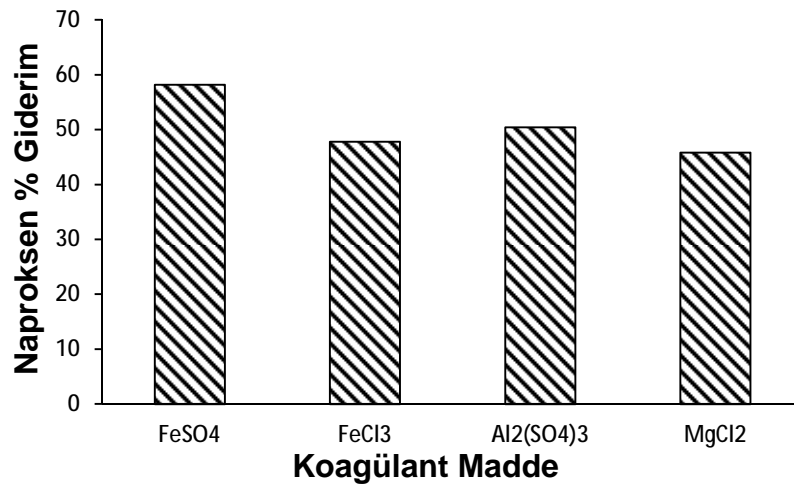
Naproksen giderim çalışmalarında $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda sıcaklığın etkisini ortaya koymak amacıyla elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda 4 farklı sıcaklık (10, 15, 20, 25 °C) çalışılmıştır. Sıcaklığın artması ile yüzde giderim veriminin arttığı gözlenmiştir. Sıcaklık değerlerine karşılık elde edilen yüzde giderim verimleri şekil 4.40'daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.41. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki naproksen yüzde giderim oranları

4.2.5. Naproksen Giderimi ve Tartışmalar

Naproksen ilaç etken maddesinin 4 farklı koagülant için optimum pH ve dozajları belirlenmiştir. Elde edilen sonuçların karşılaştırabilmesi amacıyla koagülant madde bazında değerlerin grafiksel gösterimi yapılmıştır. Naproksen ilaç etken maddesinin 4 farklı koagülant için elde edilen optimum pH ve dozda giderim verimleri Şekil 4.42'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.42. Naproksenin 4 farklı koagülant ile koagülasyonunda optimum şartlarda yüzde giderim verimleri

Naproksen asidik özellikler gösterir ve tipik içme suyu pH değerlerinde anyonik formda mevcut bulunmaktadır (Yu ve diğ., 2008). Bu çalışmada naproksenin 20 °C’de, optimum pH’da en yüksek giderim verimine, 125 mg/L FeSO₄.7H₂O ile ulaşılmıştır. Bu sonuçlara göre pH 5-6 civarında naproksen en iyi giderim verimi göstermektedir. Bunun sebebi pK_a değerlerine yakınlık göstermesinden dolayı bu pH’larda naproksenin daha az iyonize olması olduğu düşünülmektedir. Ayrıca naproksenin log K_{ow} değeri hidrofobikliğin bir göstergesidir. Yüksek K_{ow} değerine sahip mikrokirleticiler suda az çözünürler ve partikül üzerine sorpsiyon eğilimi fazladır (Carballa ve diğ., 2005; Hemond ve Fechner-Levy, 2000).

İlaç konsantrasyonunun koagülasyonla giderime olan etkisini araştırmak amacıyla 6 farklı naproksen konsantrasyonunda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5, 10 mg/L) koagülasyon çalışmaları yapılmıştır. İlaç konsantrasyonu arttıkça giderim verimlerinin azaldığı görülmüştür. Düşük konsantrasyonlarda giderim verimi %100’e yakın olarak tespit edilmiştir.

Naproksen koagülasyon çalışmalarında dört farklı koagülant için dört farklı sıcaklık değerinde yüzde giderim verimleri incelenmiş olup sıcaklığın artmasıyla giderim verimlerinin arttığı görülmüştür. Xiao ve arkadaşları düşük sıcaklığın yumaklaşma oranına olumsuz etki ettiğini bildirmişlerdir (Xiao ve diğ., 2009). Ayrıca Guan ve arkadaşları yaptığı çalışmada sıcaklığın artması ile bulanıklık gideriminin arttığını görmüşlerdir (Guan ve diğ., 2011). Bu çalışmada naproksen giderim veriminin sıcaklık artışıyla artmasının floklaşma yapısının artmasından ve büyümesinden ve böylece daha fazla ilaç etken maddesinin floklara tutunmasından kaynaklandığı düşünülmektedir.

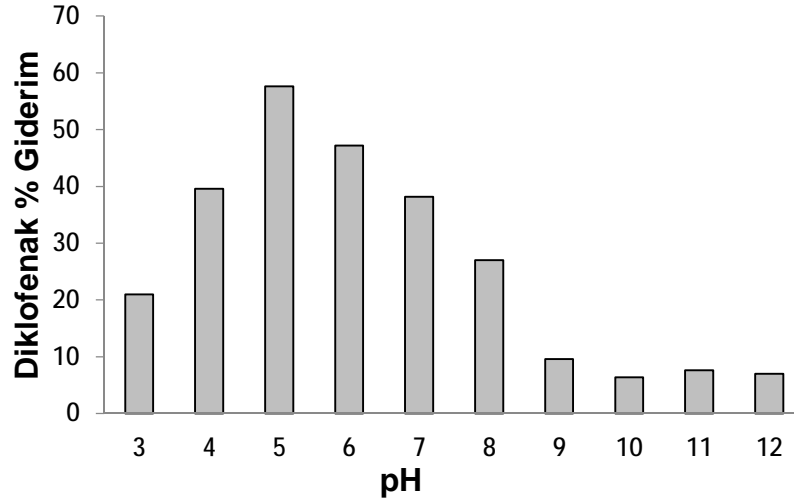
Demir oksit (Fe₃O₄) moleküllerinin (nano magnetit) yüksek spesifik yüzey alanına sahip olduğu bilinmektedir ve bu nedenle çevre mühendisliğinde geniş kullanım alanına sahiptir (Bagheri ve diğ., 2017; Lasheen ve diğ., 2016). Bu çalışmada yardımcı koagülant olarak kullanılan nano magnetit ile ilaç giderim verimlerinin arttığı tespit edilmiştir. Bunun sebebi olarak; ilaç etken maddenin nano magnetitin yüzeyine adsorpsiyon prosesine dayalı olarak tutunduğu düşünülmektedir.

4.3. Diklofenak Giderim Çalışmaları

4.3.1. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminin İncelenmesi

4.3.1.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi

Diklofenak gideriminin incelenmesi için yapılan çalışmada koagülant olarak FeSO₄.7H₂O kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. Optimum diklofenak yüzde giderim oranı pH 5'de %57,6 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.41'deki grafikte gösterilmiştir.

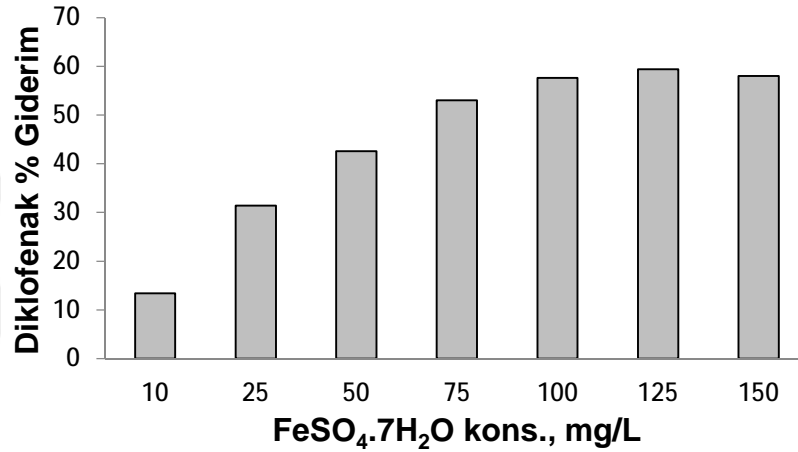


Şekil 4.43. FeSO₄.7H₂O koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki diklofenak giderim yüzdeleri

4.3.1.2. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

FeSO₄.7H₂O koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon deneylerinde belirlenen optimum pH değerinde (5), 5 mg/L diklofenak konsantrasyonu ve 20°C'de, 7 farklı FeSO₄.7H₂O koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L)

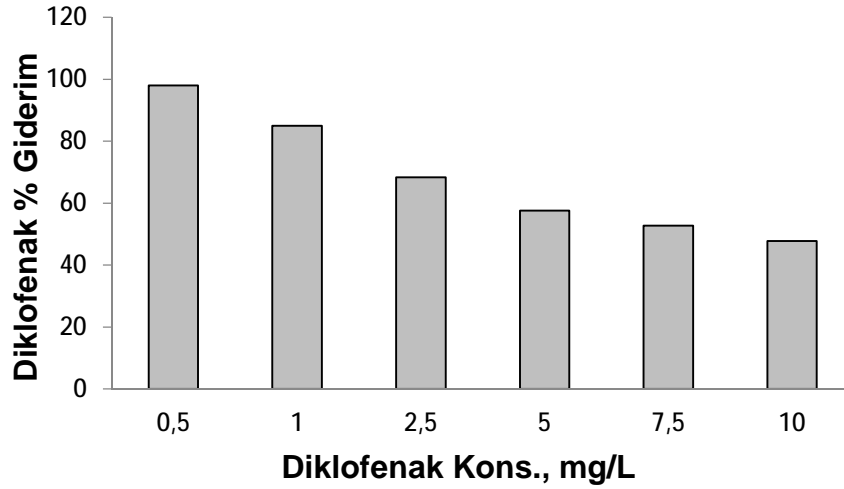
denenmiştir. Deneyler sonucunda optimum koagülant dozu 100 mg/L olarak seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozundaki yüzde giderim verimi %57,6 olarak hesaplanmıştır. Koagülant dozlarına karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.42'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.44. Farklı FeSO₄.7H₂O koagülantı dozlarında diklofenak giderim yüzdeleri

4.3.1.3. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Diklofenak Giderimine Etkisi

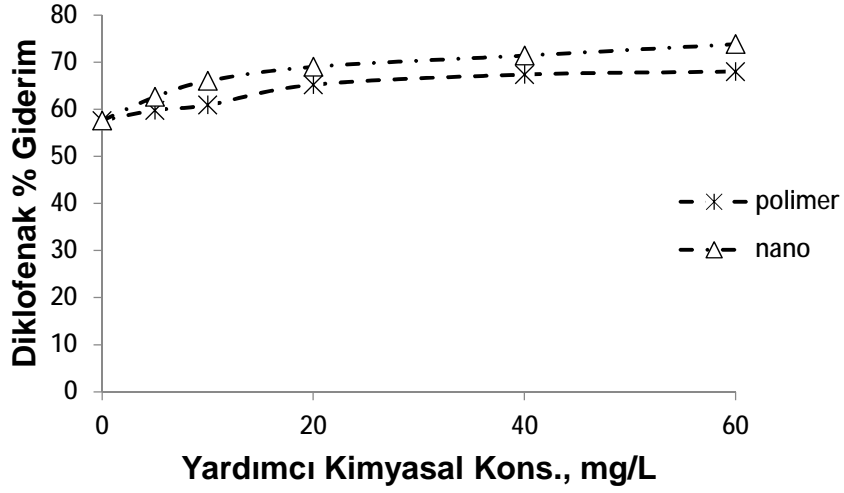
Diklofenak giderimini incelemek için FeSO₄.7H₂O ile yapılan koagülasyon çalışmalarında ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi 6 farklı konsantrasyonda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5, 10 mg/L) incelenmiştir. Farklı diklofenak konsantrasyonlarına karşılık gelen giderim oranları şekil 4.43'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.45. FeSO₄.7H₂O ile koagülasyonda farklı diklofenak konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.3.1.4. FeSO₄.7H₂O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

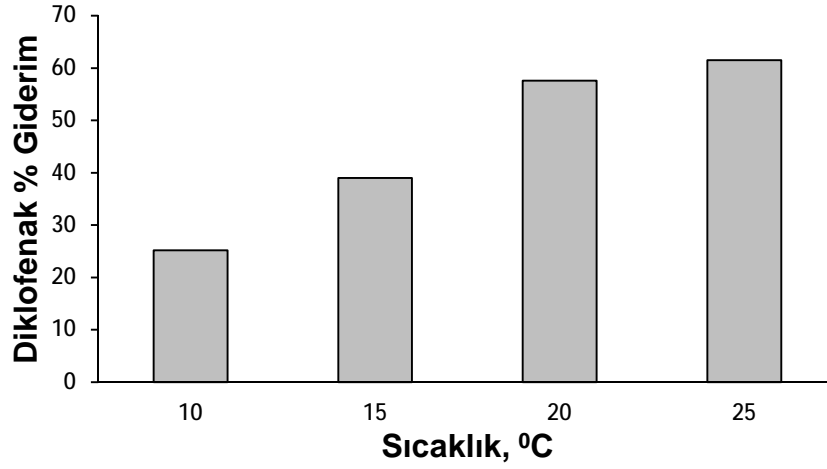
FeSO₄.7H₂O'ın koagülant olarak kullanıldığı çalışmada polimer ve nano magnetit koagülasyona yardımcı kimyasal olarak denendi. Çalışmada tüm optimum şartlar sabit tutularak her iki malzemenin 5 farklı konsantrasyonunda (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) denemeler yapıldı. Yaygın bir koagülant yardımcısı olarak kullanılan polimerin diklofenak giderim oranlarının nano magnetit malzemenin giderim oranlarına kıyasla daha düşük olduğu görülmektedir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.44'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.46. Polimer ve nano magnetitin $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda diklofenak yüzde giderim oranları

4.3.1.5. $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

Diklofenak giderim çalışmalarında $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonda sıcaklığın etkisini ortaya koymak amacıyla elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda 4 farklı sıcaklık (10, 15, 20, 25 °C) çalışılmıştır. Sıcaklığın artması ile yüzde giderim veriminin arttığı gözlenmiştir. Sıcaklık değerlerine karşılık elde edilen yüzde giderim verimleri şekil 4.45'deki grafikte gösterilmiştir.

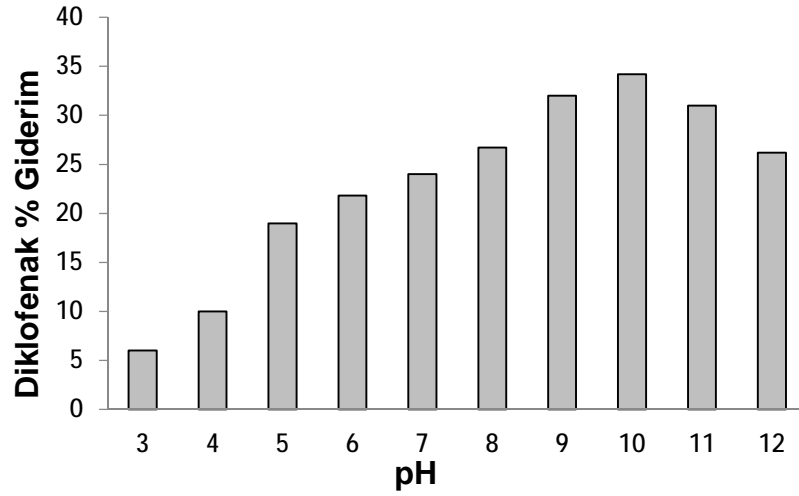


Şekil 4.47. FeSO₄.7H₂O ile koagülasyonda farklı sıcaklık değerlerindeki diklofenak yüzde giderim oranları

4.3.2. FeCl₃.6H₂O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminin İncelenmesi

4.3.2.1. Optimum pH'ın Belirlenmesi

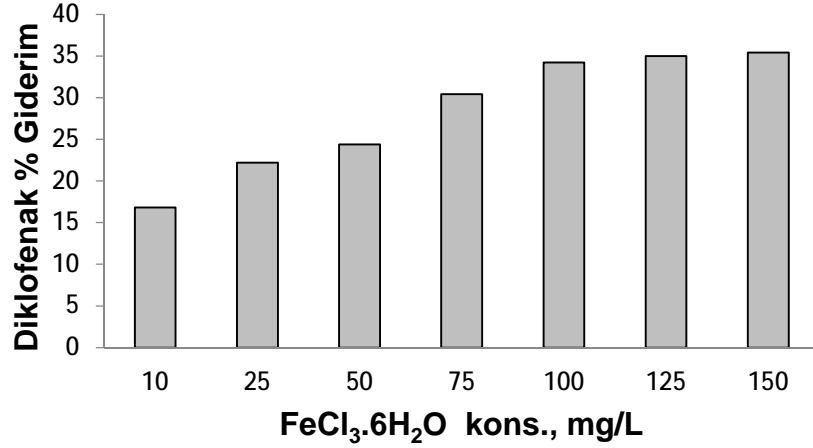
Diklofenak gideriminin incelenmesi için yapılan çalışmada koagülant olarak FeCl₃.6H₂O kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. Optimum diklofenak yüzde giderim oranı pH 10'da %34,2 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.46'daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.48. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki diklofenak giderim yüzdeleri

4.3.2.2. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

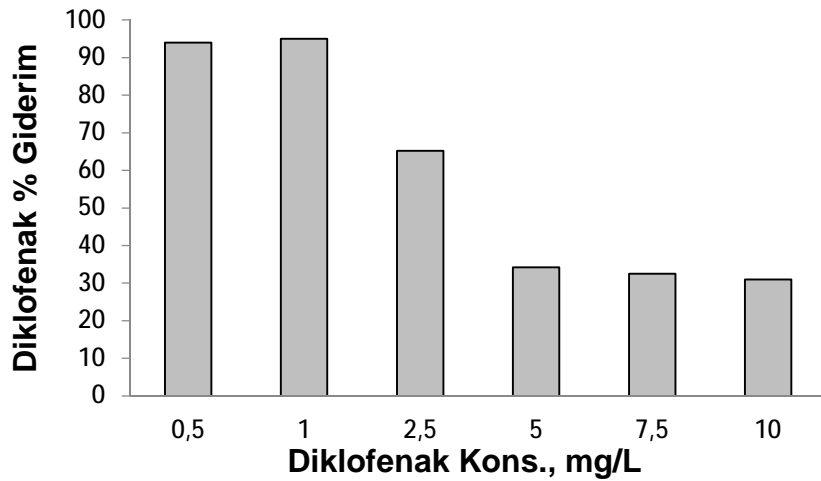
$\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon deneylerinde belirlenen optimum pH değerinde (10), 5 mg/L diklofenak konsantrasyonu ve 20°C’de, 7 farklı $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Deneyler sonucunda optimum koagülant dozu 100 mg/L olarak seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozundaki yüzde giderim verimi %34,2 olarak hesaplanmıştır. Koagülant dozlarına karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.47’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.49. Farklı FeCl₃.6H₂O koagülant dozlarında diklofenak giderim oranları

4.3.2.3. FeCl₃.6H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Diklofenak Giderimine Etkisi

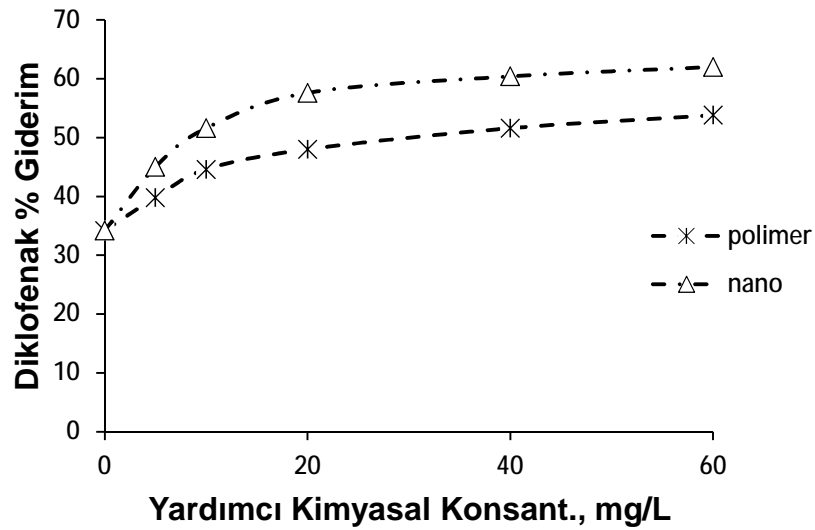
Diklofenak giderimini incelemek için FeCl₃.6H₂O ile yapılan koagülasyon çalışmalarında ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi 6 farklı konsantrasyonda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5, 10 mg/L) incelenmiştir. Farklı diklofenak konsantrasyonlarına karşılık gelen giderim oranları şekil 4.48'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.50. FeCl₃.6H₂O koagülasyonunda farklı diklofenak konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.3.2.4. FeCl₃.6H₂O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

FeCl₃.6H₂O'ün koagülant olarak kullanıldığı çalışmada polimer ve nano magnetit koagülasyona yardımcı kimyasal olarak denendi. Çalışmada tüm optimum şartlar sabit tutularak her iki malzemenin 5 farklı konsantrasyonunda (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) denemeler yapıldı. Yaygın bir koagülant yardımcısı olarak kullanılan polimerin diklofenak giderim oranlarının nano magnetit malzemenin giderim oranlarına kıyasla daha düşük olduğu görülmektedir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.49'daki grafikte gösterilmiştir.

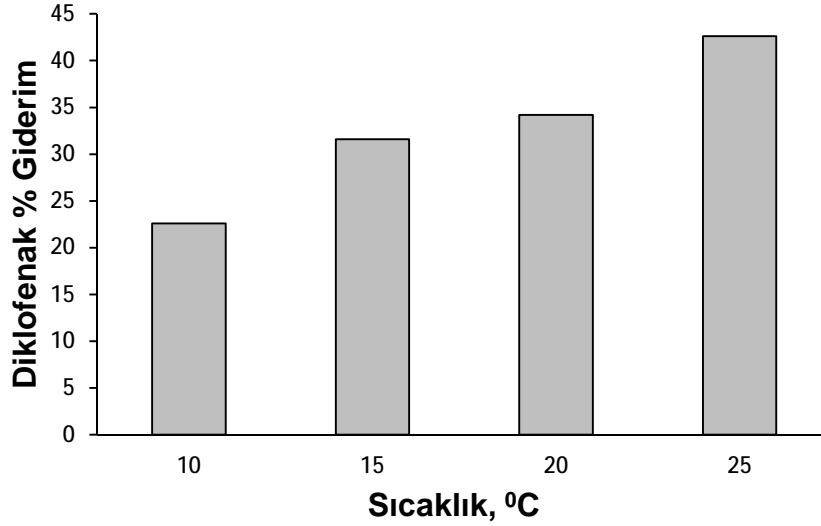


Şekil 4.51. Polimer ve nano magnetitin FeCl₃.6H₂O koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda diklofenak yüzde giderim oranları

4.3.2.5. FeCl₃.6H₂O Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

Diklofenak giderim çalışmalarında FeCl₃.6H₂O ile koagülasyonda sıcaklığın etkisini ortaya koymak amacıyla elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda 4 farklı sıcaklık (10, 15, 20, 25 °C) çalışılmıştır. Sıcaklığın artması ile yüzde giderim

veriminin arttığı gözlenmiştir. Sıcaklık değerlerine karşılık elde edilen yüzde giderim verimleri şekil 4.50'deki grafikte gösterilmiştir.

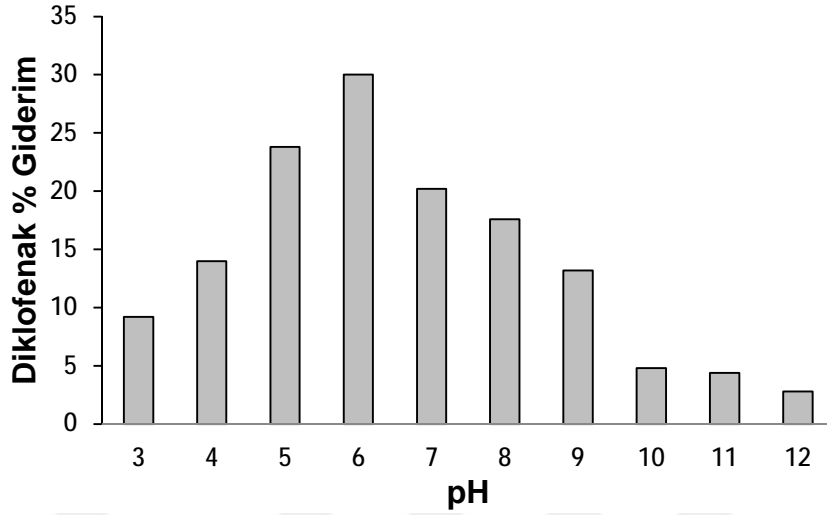


Şekil 4.52. $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonu ile diklofenak gideriminde farklı sıcaklık değerlerine ait giderim yüzdeleri

4.3.3. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminin İncelenmesi

4.3.3.1. Optimum pH'm Belirlenmesi

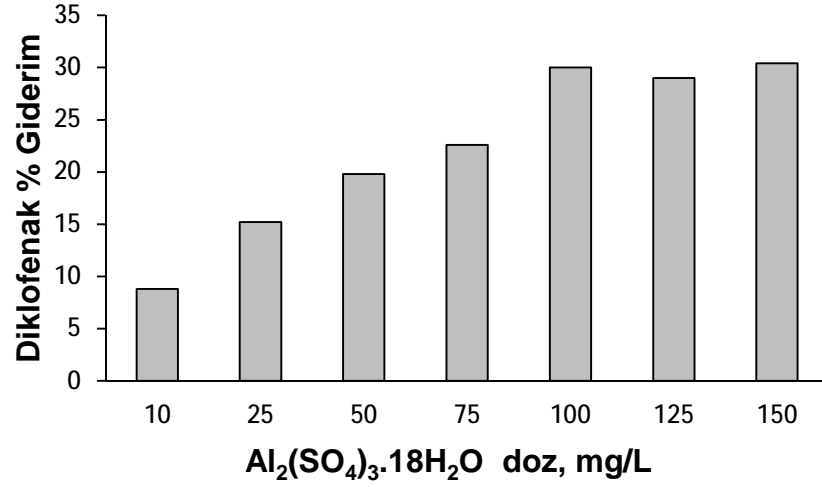
Diklofenak gideriminin incelenmesi için yapılan çalışmada koagülant olarak $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. Optimum diklofenak yüzde giderim oranı pH 6'da %30 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.51'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.53. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki diklofenak giderim yüzdeleri

4.3.3.2. $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

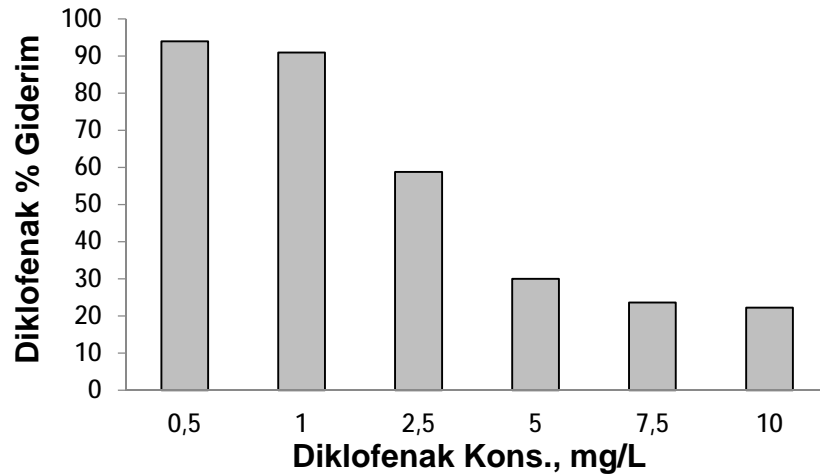
$\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon deneylerinde belirlenen optimum pH değerinde (6), 5 mg/L diklofenak konsantrasyonu ve 20°C'de, 7 farklı $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Deneyler sonucunda optimum koagülant dozu 100 mg/L olarak seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozundaki yüzde giderim verimi %30 olarak hesaplanmıştır. Koagülant dozlarına karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.52'deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.54. Farklı $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülant dozlarında diklofenak giderim oranları

4.3.3.3. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Diklofenak Giderimine Etkisi

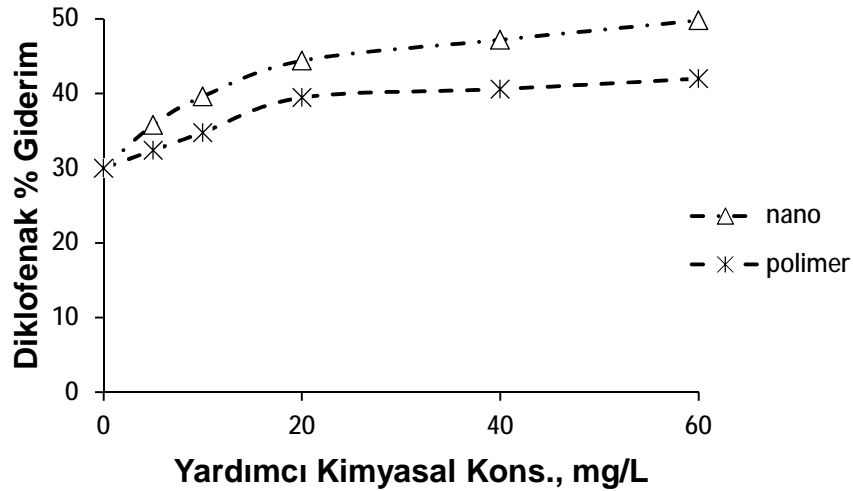
Diklofenak giderimini incelemek için $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile yapılan koagülasyon çalışmalarında ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi 6 farklı konsantrasyonda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5, 10 mg/L) incelenmiştir. Belirlenen optimum pH ve koagülant dozunda ve 20 °C’de farklı diklofenak konsantrasyonlarına karşılık gelen giderim oranları şekil 4.53’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.55. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülasyonunda farklı diklofenak konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.3.3.4. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

$Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ 'ın koagülant olarak kullanıldığı çalışmada polimer ve nano magnetit koagülasyona yardımcı kimyasal olarak denendi. Çalışmada tüm optimum şartlar sabit tutularak her iki malzemenin 5 farklı konsantrasyonunda (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) denemeler yapıldı. Yaygın bir koagülant yardımcısı olarak kullanılan polimerin diklofenak giderim oranlarının nano magnetit malzemenin giderim oranlarına kıyasla daha düşük olduğu görülmektedir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.54'deki grafikte gösterilmiştir.

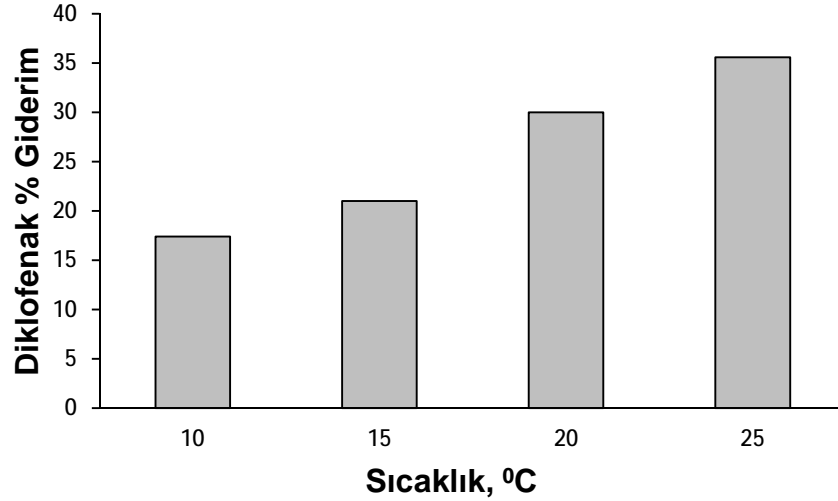


Şekil 4.56. Polimer ve nano magnetitin $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda diklofenak yüzde giderim oranları

4.3.3.5. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

Diklofenak giderim çalışmalarında $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonda sıcaklığın etkisini ortaya koymak amacıyla elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda 4 farklı sıcaklık (10, 15, 20, 25 °C) çalışılmıştır. Sıcaklığın artması ile

yüzde giderim veriminin arttığı gözlenmiştir. Sıcaklık değerlerine karşılık elde edilen yüzde giderim verimleri şekil 4.55'deki grafikte gösterilmiştir.

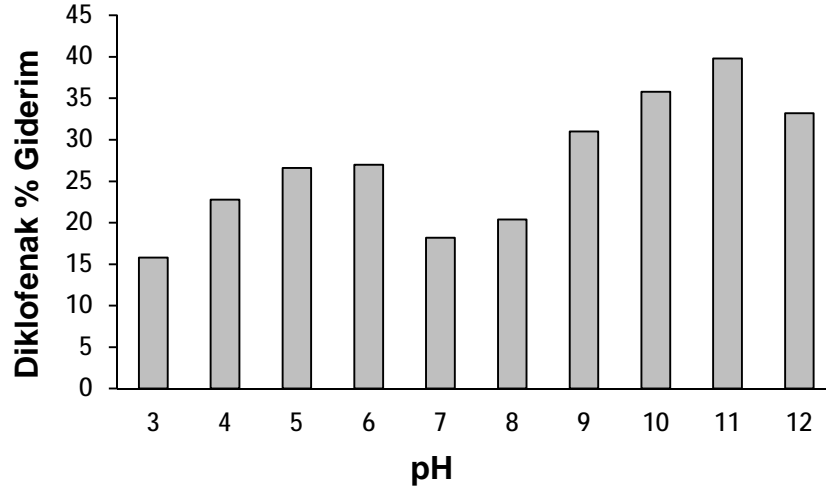


Şekil 4.57. $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ koagülasyonu ile diklofenak gideriminde farklı sıcaklık değerlerine ait giderim yüzdeleri

4.3.4. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminin İncelenmesi

4.3.4.1. Optimum pH'm Belirlenmesi

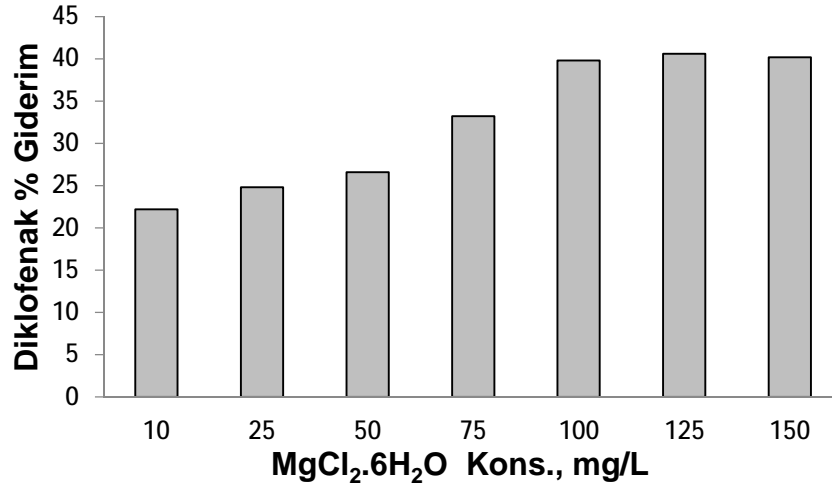
Diklofenak gideriminin incelenmesi için yapılan çalışmada koagülant olarak $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ kullanılarak yapılan optimum pH belirleme çalışmasında 10 farklı pH değerinde (3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12) 100 mg/L koagülant dozu ve 5 mg/L ilaç konsantrasyonunda jar test deneyleri yapılmıştır. Optimum diklofenak yüzde giderim oranı pH 11'de %39,8 olarak elde edilmiştir. Tüm pH değerlerinde elde edilen yüzde giderim oranları şekil 4.56'daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.58. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülasyonunda farklı pH değerlerindeki diklofenak giderim yüzdeleri

4.3.4.2. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Optimum Koagülant Dozunun Belirlenmesi

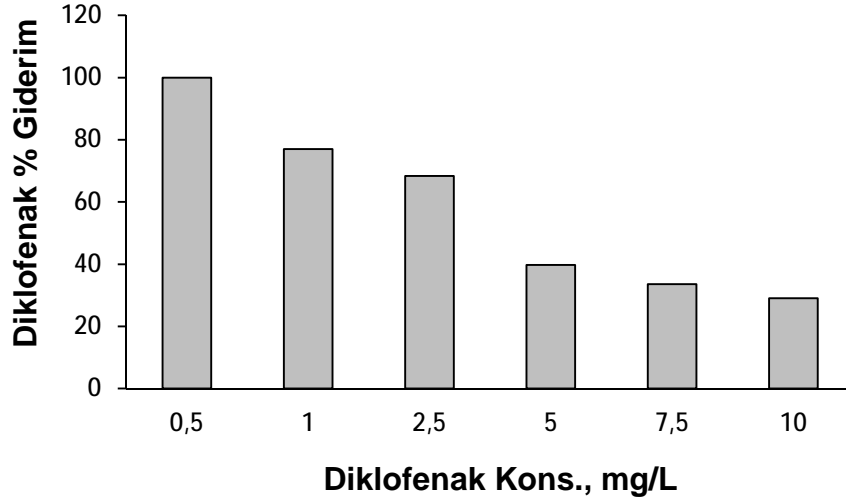
$MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülantı kullanılarak yapılan koagülasyon deneylerinde belirlenen optimum pH değerinde (11), 5 mg/L diklofenak konsantrasyonu ve 20°C’de, 7 farklı $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülant dozu (10, 25, 50, 75, 100, 125, 150 mg/L) denenmiştir. Deneyler sonucunda optimum koagülant dozu 100 mg/L olarak seçilmiştir. 100 mg/L koagülant dozundaki yüzde giderim verimi %39,8 olarak hesaplanmıştır. Koagülant dozlarına karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.57’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.59. Farklı MgCl₂.6H₂O koagülant dozlarında diklofenak giderim oranları

4.3.4.3. MgCl₂.6H₂O Koagülasyonunda İlaç Konsantrasyonunun Diklofenak Giderimine Etkisi

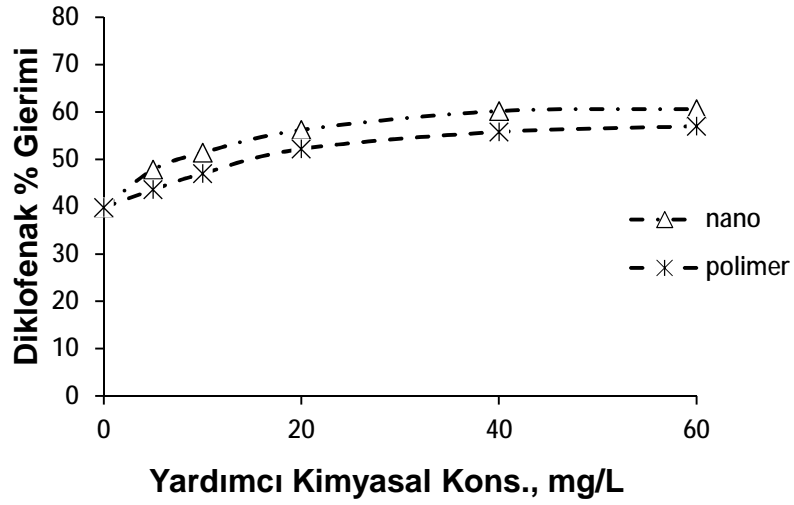
Diklofenak giderimini incelemek için MgCl₂.6H₂O ile yapılan koagülasyon çalışmalarında ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi 6 farklı konsantrasyonda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5, 10 mg/L) incelenmiştir. Belirlenen optimum pH ve koagülant dozunda ve 20 °C’de farklı diklofenak konsantrasyonlarına karşılık gelen giderim oranları şekil 4.58’deki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.60. $MgCl_2.6H_2O$ koagülasyonunda farklı diklofenak konsantrasyonlarında yüzde giderim oranları

4.3.4.4. $MgCl_2.6H_2O$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Yardımcı Kimyasal Olarak Polimer ve Nano magnetitin Denenmesi

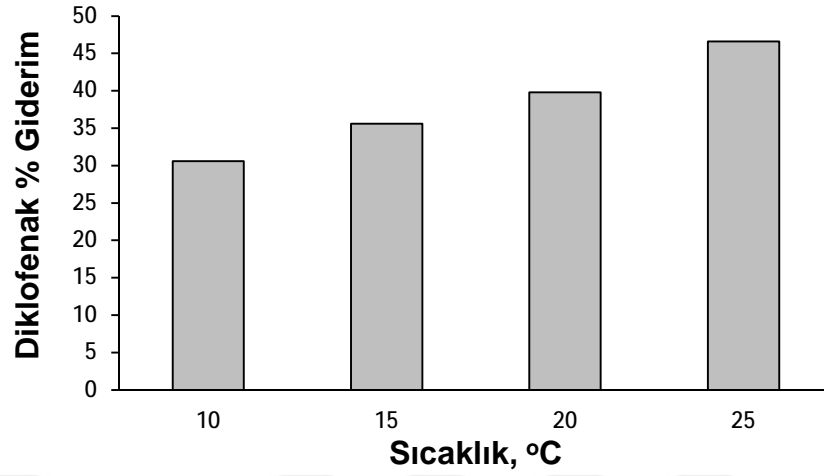
$MgCl_2.6H_2O$ 'ın koagülant olarak kullanıldığı çalışmada polimer ve nano magnetit koagülasyona yardımcı kimyasal olarak denendi. Çalışmada tüm optimum şartlar sabit tutularak her iki malzemenin 5 farklı konsantrasyonunda (5, 10, 20, 40 ve 60 mg/L) denemeler yapıldı. Yaygın bir koagülant yardımcısı olarak kullanılan polimerin diklofenak giderim oranlarının nano magnetit malzemenin giderim oranlarına kıyasla daha düşük olduğu görülmektedir. Yardımcı kimyasal konsantrasyonuna karşılık gelen yüzde giderim oranları şekil 4.59'daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.61. Polimer ve nano magnetitin $MgCl_2.6H_2O$ koagülasyonunda yardımcı kimyasal olarak kullanılması durumunda diklofenak yüzde giderim oranları

4.3.4.5. $MgCl_2.6H_2O$ Koagülasyonu ile Diklofenak Gideriminde Sıcaklığın Etkisi

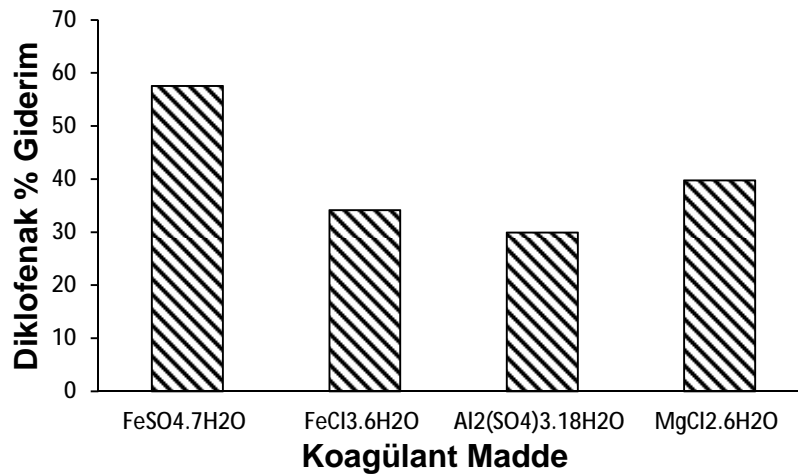
Diklofenak giderim çalışmalarında $MgCl_2.6H_2O$ ile koagülasyonda sıcaklığın etkisini ortaya koymak amacıyla elde edilen optimum pH ve koagülant dozunda 4 farklı sıcaklık (10, 15, 20, 25 °C) çalışılmıştır. Sıcaklığın artması ile yüzde giderim veriminin arttığı gözlenmiştir. Sıcaklık değerlerine karşılık elde edilen yüzde giderim verimleri şekil 4.60'daki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.62. $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ koagülasyonu ile diklofenak gideriminde farklı sıcaklık değerlerine ait giderim yüzdeleri

4.3.5. Diklofenak Giderimi ve Tartışmalar

Diklofenak ilaç etken maddesinin 4 farklı koagülant için optimum pH ve dozajları belirlenmiştir. Elde edilen sonuçların karşılaştırabilmesi amacıyla koagülant madde bazında değerlerin grafiksel gösterimi yapılmıştır. Diklofenak ilaç etken maddesinin 4 farklı koagülant için elde edilen optimum pH ve dozda giderim verimleri şekil 4.63'teki grafikte gösterilmiştir.



Şekil 4.63. Diklofenakın 4 farklı koagülant ile koagülasyonunda optimum şartlarda yüzde giderim verimleri

Diklofenak için 20 °C’de, en yüksek giderim verimi $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile pH 5’te %57,6 olarak elde edilmiştir. Bu sonucun pH’ın pK_a değerine olan yakınlığından ve bu pH değerinde diklofenanın daha az iyonize olmasından kaynaklandığı düşünülmektedir. pH arttıkça ve pK_a değerinden uzaklaştıkça bu diklofenanın suda çözünürlüğüne bağlı olarak adsorpsiyon eğiliminin azalması demektir (Larous ve Meniai, 2016).

İlaç konsantrasyonunun koagülasyonla giderime olan etkisini araştırmak amacıyla 6 farklı diklofenak konsantrasyonunda (0,5, 1, 2,5, 5, 7,5, 10 mg/L) koagülasyon çalışmaları yapılmıştır. İlaç konsantrasyonu arttıkça giderim verimlerinin azaldığı görülmüştür. Düşük konsantrasyonlarda giderim verimi %100’e yakın olarak tespit edilmiştir.

Diklofenak koagülasyon çalışmalarında dört farklı koagülant için dört farklı sıcaklık değerinde yüzde giderim verimleri incelenmiş olup sıcaklığın artmasıyla giderim verimlerinin arttığı görülmüştür. Xiao ve arkadaşları düşük sıcaklığın yumaklaşma oranına olumsuz etki ettiğini bildirmişlerdir (Xiao ve diğ., 2009). Ayrıca Guan ve arkadaşları yaptığı çalışmada sıcaklığın artması ile bulanıklık gideriminin arttığını görmüşlerdir (Guan ve diğ., 2011). Koagülasyonda sıcaklığın artması ile çökme oranı ve arıtma veriminin arttığı yapılan deneylerde gözlenmiş, sıcaklığın artışı ile daha büyük flokların oluştuğu gözlenmiştir (Ozbelge ve diğ., 2002). Bu çalışmada diklofenak giderim veriminin sıcaklık artışıyla artmasının floklaşma yapısının artmasından ve büyümesinden ve böylece daha fazla ilaç etken maddesinin floklara tutunmasından kaynaklandığı düşünülmektedir.

Demir oksit (Fe_3O_4) moleküllerinin (nano magnetit) yüksek spesifik yüzey alanına sahip olduğu bilinmektedir ve bu nedenle çevre mühendisliğinde geniş kullanım alanına sahiptir (Bagheri ve diğ., 2017; Lasheen ve diğ., 2016). Bu çalışmada yardımcı koagülant olarak kullanılan nano magnetit ile ilaç giderim verimlerinin arttığı tespit edilmiştir. Bunun sebebi olarak; ilaç etken maddenin nano magnetitin yüzeyine adsorpsiyon prosesine dayalı olarak tutunduğu düşünülmektedir.



5. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu çalışmada farmasötik etken madde olarak parasetamol, naproksen ve diklofenak'ın farklı koagülantlar ile değişen koşullar altında içme sularından koagülasyonla giderimi araştırılmıştır. Çalışmadan elde edilen sonuçların ana hatları ve öneriler aşağıda verilmiştir;

- Parasetamolün $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 5 optimum koagülant dozu ise 100 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %37,8'dir.
- Parasetamolün $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve 5 farklı ilaç konsantrasyonunda çalışılmıştır. İlaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L parasetamol konsantrasyonunda giderim %80 iken, 5 mg/L parasetamol konsantrasyonunda giderim verimi %37,8'dir.
- Parasetamolün $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %37,8 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %46,8 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %50,6 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.
- Parasetamolün $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %26,8 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C'ye çıkarıldığında yüzde giderim %42,4 olarak tespit edilmiştir.
- Parasetamolün $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda optimum pH 11 ve optimum koagülant dozu 100 mg/L olarak tespit edilmiştir. Bu değerlerde elde edilen yüzde giderim verimi %46'dır.

- Parasetamolün $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı tespit edilmiştir. 1 mg/L parasetamol konsantrasyonunda giderim %88 iken, 5 mg/L parasetamol konsantrasyonunda giderim verimi %44,2'dir.
- Parasetamolün $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %44,2 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %54 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %59,8 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.
- Parasetamolün $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %22 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C'ye çıkarıldığında yüzde giderim %53 olarak tespit edilmiştir.
- Parasetamolün $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 7 optimum koagülant dozu ise 100 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %30'dur.
- Parasetamolün $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiştir ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L parasetamol konsantrasyonunda giderim %85 iken, 5 mg/L parasetamol konsantrasyonunda giderim verimi %30'dur.
- Parasetamolün $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın optimum şartlarda %30 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %45,6 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak

kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %48 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.

- Parasetamolün $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C’de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %19,6 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C’ye çıkarıldığında yüzde giderim %39,6 olarak tespit edilmiştir.
- Parasetamolün $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda optimum pH 11 ve optimum koagülant dozu 100 mg/L olarak tespit edilmiştir. Bu değerlerde elde edilen yüzde giderim verimi %41’dir.
- Parasetamolün $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı tespit edilmiştir. 1 mg/L parasetamol konsantrasyonunda giderim %97 iken, 5 mg/L parasetamol konsantrasyonunda giderim verimi %41’dir.
- Parasetamolün $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %41 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %57,4 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %62,6 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.
- Parasetamolün $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C’de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %22,6 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C’ye çıkarıldığında yüzde giderim %48,4 olarak tespit edilmiştir.
- Parasetamolün farklı koagülantlar ile gideriminde en yüksek giderim verimi $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ ile %46 olarak elde edilmiştir. Bu değer sıcaklık artışı ve yardımcı kimyasal kullanımıyla arttığı tespit edilmiştir.

- Naproksenin $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 5 optimum koagülant dozu ise 125 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %58,2'dir.
- Naproksenin $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim %97 iken, 5 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim verimi %58,2'dir.
- Naproksenin $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %58,2 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %66,6 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %76 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.
- Naproksenin $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %35,8 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C'ye çıkarıldığında yüzde giderim %64,4 olarak tespit edilmiştir.
- Naproksenin $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 11 optimum koagülant dozu ise 100 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %47,8'dir.
- Naproksenin $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim %91 iken, 5 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim verimi %47,8'tür.
- Naproksenin $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar

arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %47,8 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %61 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %67 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.

- Naproksenin $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %41 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C'ye çıkarıldığında yüzde giderim %52 olarak tespit edilmiştir.
- Naproksenin $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 6 optimum koagülant dozu ise 125 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %50,4'dir.
- Naproksenin $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim %87 iken, 5 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim verimi %50,4'dir.
- Naproksenin $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %50,4 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %59,2 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %65,2 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.
- Naproksenin $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %31 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C'ye çıkarıldığında yüzde giderim %57,6 olarak tespit edilmiştir.

- Naproksenin $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 10 optimum koagülant dozu ise 100 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %45,8'dir.
- Naproksenin $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim %81 iken, 5 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim verimi %45,8'dir.
- Naproksenin $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %55,8 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %66,6 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %75,4 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.
- Naproksenin $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %31,6 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C'ye çıkarıldığında yüzde giderim %58 olarak tespit edilmiştir.
- Naproksenin farklı koagülantlar ile gideriminde en yüksek giderim verimi $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ve $Al_2(SO_4)_3 \cdot 18H_2O$ ile sırasıyla %58,2 ve %50,4 olarak elde edilmiştir. Yüzde giderim verimlerinin sıcaklık artışı ve yardımcı kimyasal kullanımıyla arttığı tespit edilmiştir.
- Diklofenakın $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 5 optimum koagülant dozu ise 100 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %57,6'dır.
- Diklofenakın $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L naproksen konsantrasyonunda

giderim %85 iken, 5 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim verimi %57,6'dır.

- Diklofenakın $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %57,6 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %65,2 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %69 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.
- Diklofenakın $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %25,2 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C'ye çıkarıldığında yüzde giderim %61,4 olarak tespit edilmiştir.
- Diklofenakın $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 10, optimum koagülant dozu ise 100 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %47'dir.
- Diklofenakın $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim %95 iken, 5 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim verimi %47'dir.
- Diklofenakın $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %47 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %57,4 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %62 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.

- Diklofenakın $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde $10\text{ }^\circ\text{C}$ 'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %39,6 iken aynı şartlarda sıcaklık $25\text{ }^\circ\text{C}$ 'ye çıkarıldığında yüzde giderim %59,3 olarak tespit edilmiştir.
- Diklofenakın $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 6, optimum koagülant dozu ise 100 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %24'tür.
- Diklofenakın $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim %91 iken, 5 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim verimi %24'tür.
- Diklofenakın $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %24 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %39,4 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %42,2 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.
- Diklofenakın $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3 \cdot 18\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde $10\text{ }^\circ\text{C}$ 'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %17,4 iken aynı şartlarda sıcaklık $25\text{ }^\circ\text{C}$ 'ye çıkarıldığında yüzde giderim %28,6 olarak tespit edilmiştir.
- Diklofenakın $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda optimum pH değeri 11, optimum koagülant dozu ise 100 mg/L olarak elde edilmiştir. Optimum şartlarda ulaşılan giderim verimi %46,6'dır.
- Diklofenakın $\text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ile koagülasyonunda ilaç konsantrasyonunun giderime olan etkisi incelenmiş ve ilaç konsantrasyonu arttıkça giderim veriminin azaldığı görülmüştür. 1 mg/L naproksen konsantrasyonunda

- giderim %77 iken, 5 mg/L naproksen konsantrasyonunda giderim verimi %46,6'tür.
- Diklofenakın $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda yardımcı kimyasal ilavesi ve bunun giderime etkisinin incelendiğinde yüzde giderimi belirli bir miktar arttırdığı tespit edilmiştir. Örneğin yardımcı kimyasal olmaksızın %46,6 giderim verimi elde edilirken 20 mg/L konsantrasyonunda polimer kullanıldığında giderim verimi %58,4 olarak tespit edilmiştir. Aynı şartlarda nano magnetit yardımcı kimyasal olarak kullanıldığında (20 mg/L) giderim verimi %61 olarak elde edilmiştir. Nano magnetit kullanıldığında polimere göre daha yüksek verimler elde edilmiştir.
 - Diklofenakın $MgCl_2 \cdot 6H_2O$ ile koagülasyonunda sıcaklık etkili bir parametredir. Örneğin optimum değerlerde 10 °C'de yapılan koagülasyon çalışmasında ilaç giderimi %30,6 iken aynı şartlarda sıcaklık 25 °C'ye çıkarıldığında yüzde giderim %54,8 olarak tespit edilmiştir.
 - Diklofenakın farklı koagülantlar ile gideriminde en yüksek giderim verimi $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ ile %57,6 olarak elde edilmiştir. Yüzde giderim verimlerinin sıcaklık artışı ve yardımcı kimyasal kullanımıyla arttığı tespit edilmiştir.
- Ø İleriki aşamalarda farmasötiklerin içme sularından koagülasyon prosesi ile gideriminin ortaya koyulmasında, antibiyotikler, lipid düzenleyiciler, beta blokerlar, antidepresanlar, kemoterapi ilaçları gibi farklı gruptaki ilaç etken maddelerinin üzerine yoğunlaşılabilir.
- Ø Ayrıca daha farklı koagülant yardımcı maddelerinin giderim süreçleri üzerine etkisi araştırılabilir.
- Ø Bunun yanında içme suyu kaynaklarında bulanabilen diğer bazı kirleticilerin koagülasyon ile farmasötiklerin giderimi üzerine olan etkileşimlerinin araştırılmasının bu konuya daha kapsamlı bir yön vereceği düşünülmektedir.
- Ø Sucul çevrede yaygın bulunan ilaç etken maddelerin metabolitlerinin gideriminin koagülasyonla incelenmesinin de literatüre katkı sağlayacağı düşünülmektedir.



KAYNAKLAR

- ADAMS, C., ASCE, M., WANG, Y., LOFTIN, K., MEYER, M., 2002. Removal of antibiotics from surface and distilled water in conventional water treatment processes, *J. Environ. Eng.*, 128(3): 253-260.
- AHRER, W., SCHERWENK, E., BUCHBERGER, W., 2001. Determination of drug residues in water by the combination of liquid chromatography or capillary electrophoresis with electrospray mass spectrometry, *J. Chromatogr. A* 919: 69–78.
- AMINOT, Y., MENACH, K.L., PARDON, P., ETCHEBER, H., BUDZINSKI, H., 2016. Inputs and seasonal removal of pharmaceuticals in the estuarine Garonne River, *Marine Chemistry*, In Press.
- ANDREOZZI, R., RAFFAELE, M., NICKLAS, P., 2003. Pharmaceuticals in STP Effluents and their Solar Photodegradation in Aquatic Environment, *Chemosphere*, 50 (10):1319–1330.
- AYDIN, E., VE TALINLI, I., 2013. Analysis, occurrence and fate of commonly used pharmaceuticals and hormones in the Buyukcekmece Watershed, Turkey, *Chemosphere*, 90: 2004-2012.
- BAGHERI, A.R., GHAEDI, M., ASFARAM, A., BAZRAFESHAN, A.A., JANNESAR, R., 2017. Comparative study on ultrasonic assisted adsorption of dyes from single system onto FeO magnetite nanoparticles loaded on activated carbon: Experimental design methodology, *Ultrasonic SonoChemistry*, 34: 294-304.
- BAHLMANN, A., BRACK, W., SCHNEIDER, R.J., KRAUSS, M., 2014. Carbamazepine and its metabolites in wastewater: analytical pitfalls and occurrence in Germany and Portugal, *Water Res.*, 57:104-14.
- BARONTI, C., CURINI, R., D'ASCENZO, G., DI CORCIA, A., GENTILI, A., SAMPERI, R., 2000. Monitoring Natural and Synthetic Estrogens at Activated Sludge Sewage Treatment Plants and in a Receiving River Water, *Environmental Science and Technology*, 34(24):5059-5066.

- BENIJTS, T., LAMBERT, W., DE LEENHEER, A., 2004. Analysis of multiple endocrine disruptors in environmental waters via wide-spectrum solid-phase extraction and dual-polarity ionization LC-ion trap-MS/MS, *Analytical Chemistry*, 76(3): 704-711.
- BENOTTI, M.J., TRENHOLM, R.A., VANDERFORD, B.J., HOLADY, J.C., STANFORDAND, B.D., SNYDER, S.A., 2009. Pharmaceuticals and endocrine disrupting compounds in U.S. drinking water. *Environmental Science & Technology*, 43(3):597-603
- BILA, D.M., DEZOTTI, M., 2003. Pharmaceuticals Drugs in the Environment. *Quim. Nova*, 26:523-530.
- BOUND, J.P., VOULVOULIS, N., 2004, Pharmaceuticals in the Aquatic Environment a Comparison of Risk Assessment Strategies. *Chemosphere*, 56:1143-1155.
- BOYD, G.R., REEMTSMA, H., GRIMM, D.A., MITRA, S., 2003. Pharmaceuticals and personal care products (PPCPs) in surface and treated waters of Louisiana, USA and Ontario, Canada. *Science of the Total Environment*, 311(13): 135-149.
- BUCCI, R., MAGRI, A.D., MAGRI, A.L., 1998. Determination Of Diclofenac Salts In Pharmaceutical Formulations. *Fresenius Journal Of Analytical Chemistry* , 362:7-8.
- BUSER, H-R., POIGER, T., MULLER, M.D., 1998. Occurrence and Fate of the Pharmaceutical Drug Diclofenac in Surface Waters: Rapid Photodegradation in a Lake, *Environ. Sci. Technol.*, 32(22): 3449-3456.
- CARBALLA, M., OMIL, F., LEMA, J.M., 2005. Removal of cosmetic ingredients and pharmaceuticals in sewage primary treatment, *Water Research*, 39: 4790-4796.
- CARBALLA, M., OMIL, F., LEMA, J.M., LLOMPART, M., GARCIA-JARES, C., RODRÍGUEZ, I., GOMEZ, M., TERNES, T., 2004. Behavior Of Pharmaceuticals, Cosmetics And Hormones In A Sewage Treatment Plant. *Water Res.*, 38 (12): 2918-2926.

- CELIK, M., ERSOY, B., 2004, Mineral Nanoparticles Electrokinetics, Dekker Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology, 207-216.
- CHEN, H.C., WANG, P.L., DING, W.H., 2008. Using liquid chromatography-ion trap mass spectrometry to determine pharmaceutical residues in Taiwanese rivers and wastewaters, *Chemosphere*, 72(6): 863-869.
- CHOI, K.J., KIM, S.G., KIM, S-H, 2008. Removal of antibiotics by coagulation and granular activated carbon filtration, *Journal of Hazardous Materials* 151: 38-43.
- CHOI, K.J., KIM, S.G., KIM, C.W., PARK, J.K., 2006. Removal efficiencies of endocrine disrupting chemicals by coagulation/flocculation, ozonation, powdered/granular activated carbon adsorption, and chlorination, *Korean J. Chem. Eng.*, 23(3), 399-408.
- CLARA, M., STRENN, B., KREUZINGER, N., 2004. Carbamazepine as a Possible Anthropogenic Marker in the Aquatic Environment: Investigations on the Behavior of Carbamazepine in Wastewater Treatment and during Groundwater Infiltration. *Water Research*, 38:947-954.
- DAUGHTON, C.G., 2004. Non-regulated water contaminants: emerging research. *Environmental Impact Assessment Review*, 24 (7-8): 711-732.
- DAVIS, M.L., 2010. *Water and Wastewater Engineering, Design Principles and Practice*, Mc Graw Hill Companies.
- DERKSEN, J.G.M., RIJS, G.B.J., JONGBLOED, R.H., 2004. Diffuse Pollution of Surface water by Pharmaceutical Products. *Water Sci. Technol*, 49:213–221.
- DIEGO, R. S., LIMA, BRUNO, E.L., BAETA, SERGIO, F., AQUINO, MARCELO, L., ROBSON J.C.F., AFONSO, 2014. Removal of Pharmaceuticals and Endocrine Disruptor Compounds from Natural Waters by Clarification Associated with Powdered Activated Carbon, *Water Air Soil Pollut*, 225:2170.
- DIMITROVSKA, A., SUZANA T-J., AMALIJA, N., MIROSLAVA I., 1995. Determination Of Propyphenazone, Paracetamol, Caffeine And Codeine Phosphate With Thin Layer Chromatography. *Bulletin of the Chemists And Technologists Of Macedonia*, 14: 39-41.

- DIZER, H., FISCHER, B., SEPULVEDA, I., LOFFREDO, E., SENESI, N., SANTANA, F., 2002. Estrogenic Effect of Leachates and Soil Extracts from Lysimeters Spiked with Sewage Sludge and Reference Endocrine Disrupters. *Environmental Toxicology*, 17:105-112.
- DODD, M.C., BUFFLE, M.O. AND VON GUNTEN, U., 2006. Oxidation of antibacterial molecules by aqueous ozone: Moiety-specific reaction kinetics and application to ozone-based wastewater treatment. *Environmental Science and Technology*, 40(6), 1969-1977.
- DOKMECI A.H., SEZER, K., DOKMECI, I., IBAR, H., 2013. Determination Of Selected Acidic Pharmaceuticals and Caffeine in Ergene Basin, in Turkey, *Global Nest Journal*, Vol 15, No 4, Pp 431-439.
- DUAN, Y-P., MENG X-Z, WEN Z-H, CHEN, L., 2013. Acidic pharmaceuticals in domestic wastewater and receiving water from hyper-urbanization city of China (Shanghai): environmental release and ecological risk, *Environ Sci Pollut Res.*, 20:108-116.
- ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY (EPA), 2002. *Water Treatment Manuals, Coagulation, Flocculation and Clarification*.
- EROGLU, V., 2008. Su Tasfiyesi. İTÜ İnşaat Fakültesi Matbaası, 314s.
- EUROPEAN PHARMACOPOEIA 5.0; 2005. 1421, 2184.
- FARRE, M., FERRER, I., GINEBREDÀ, A., FIGUERAS, M., OLIVELLA, L., TIRAPU, L., VILANOVA, M., BARCELO, D., 2001. Determination of drugs in surface water and wastewater samples by liquid chromatography–mass spectrometry: methods and preliminary results including toxicity studies with *Vibrio fischeri*. *J. Chromatogr., A* 938:187–197.
- FAUST, S.D. ve ALY, O.M., 1983. *Chemistry of Water Treatment*, Butterworth Publishers, 723p.
- GECKINLI, A.E., 1991. “İleri Teknoloji Malzemeleri” , Teknik Üniversite Matbaası, İstanbul, 10-15.
- GREGORY, J., 1989. Fundamental of Flocculation, *Critical Reviews in Environmental Controls*, *J.Colloid Interface Sci.*, 19(3), 185-230.

- GROS, M., PETROVIC, M., BARCELO, D., 2006. Development of a multi-residue analytical methodology based on liquid chromatography-tandem mass spectrometry (LC-MS/MS) for screening and trace level determination of pharmaceuticals in surface and wastewaters. *Talanta*, 70(4): 678-690.
- GUAN, D., ZHANG, Z., LI, X., LUI, H., 2011. Effect of pH and temperature on coagulation efficiency in a North-China water treatment plant, *Advanced Materials Research*, 243-249:4835-4838.
- GULKOWSKA, A., LEUNG, H.W., SO, M.K., TANIYASU, S., YAMASHITA, N., YEUNG, L.W.Y., RICHARDSON, B.J., LAM, P.K.S., 2008. Removal of antibiotics from wastewater by sewage treatment facilities in Hong Kong and Shenzhen, China. *Water Res.*, 42:395-403
- GUMUS D., AKBAL F., 2013. İçme Sularında Doğal Organik Madde Giderimi Ve Trihalometan Oluşumunun Önlenmesi. *Sigma* 31, 529-553.
- GUNTEN, V.U., 2003. Ozonation of drinking water: Part I. Oxidation kinetics and product formation. *Water Research*, 37(7): 1443-1467.
- GUZEL, E., 2015. Aşağı Ceyhan Havzasında Bazı Farmasötik Maddelerin Bulunurluğu ve Mevsimsel Değişimi, Ç.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü Su Ürünleri Temel Birimler Anabilim Dalı Doktora Tezi, ADANA.
- HALLING-SORENSEN, B., NORS NIELSEN, S., LANZKY, P.F., INGERSLEV, F., LUTZHOFT, H.C., JORGENSEN, S.E., 1998. Occurrence, Fate and Effects of Pharmaceutical Substances in the Environment a Review. *Chemosphere*, 36:357-93.
- HAMMER, M.J., HAMMER JR., M.J., 1996. "Water and Wastewater Technology, 3rd Edition", Prentice Hall, New Jersey, 21-22.
- HEBERER, T., 2002. Occurrence, Fate, and Removal of Pharmaceutical Residues in the Aquatic Environment: a review of recent research data. *Toxicol. Letters*, 131 (1/2):5-17.
- HEBERER, T., 2002. Tracking Persistent Pharmaceutical Residues from Municipal Sewage to Drinking Water. *Journal of Hydrology*, 266:175-189.

- HEBERER, T., MECHLINSKI, A., FANCK, B., KNAPPE, A., MASSMANN, G., PEKDEGER, A., 2004. Field studies on the fate and transport of pharmaceutical residues in bank filtration. *Ground Water Monit Remediat*, 24(2):70-7.
- HEBERER, T., SCHMIDT-BAUMLER, K., STAN, H.J., 1998. Occurrence and distribution of organic contaminants in the aquatic system in Berlin. Part I: Drug residues and other polar contaminants in Berlin surface and groundwater. *Acta Hydroch Hydrob*, 26: 272-8.
- HIRSCH, R., TERNES, T., HABERER, K., KRATZ, K.L., 1999. Occurrence of antibiotics in the aquatic environment. *Science of the Total Environment*, 225(1-2): 109-118.
- HIRSCH, R., TERNES, T.A., HABERER, K., MEHLICH, A., BALLWANZ, F., KRATZ, K.L., 1998. Determination of antibiotics in different water compartments via liquid chromatography– electrospray tandem mass spectrometry. *J. Chromatogr. A* 815:213–223.
- HUANG, C.H., SEDLAK, D. L., 2001. Analysis of estrogenic hormones in municipal wastewater effluent and surface water using enzyme-linked immunosorbent assay and gas chromatography/tandem mass spectrometry. *Environ. Toxicol. Chem.*, 20(1), 133-139.
- HUBER, M.M., KORHONEN, S., TERNES, T.A., AND VON GUNTEN, U., 2005. Oxidation of pharmaceuticals during water treatment with chlorine dioxide. *Water Research*, 39(15), 3607-3617.
- HUERTA-FONTELA, M., GALCERAN, M.T., VENTURA, F., 2011. Occurrence and removal of pharmaceuticals and hormones through drinking water treatment. *Water Research*, 45, 432-442.
- ILKAYA, F., YILMAZ, M.Z., KARAKUS, O., 2013. Parasetamol ve siklooksijenaz enzim inhibisyonu, *J. Exp. Clin. Med.*, 30: 9-14.

- JOSEPH, L., BOATENG, L.K, FLORA, J.R.V., PARK Y-G, SON A., BADAWEY, M., YOON, Y., 2013. Removal of bisphenol A and 17 α -ethinyl estradiol by combined coagulation and adsorption using carbon nanomaterials and powdered activated carbon, *Separation and Purification Technology*, 107, 37-47.
- KABAK, H., BASIBUYUK, M., 2012. Diklofenak ve Parasetamol'ün Aktif Çamur Tarafından Adsorbsiyonu, *Ekoloji* 21, 85, 41-48.
- KANG, B. L-S., CLEASBY, J.L., 1995. Temperature Effects on Flocculation Kinetics Using Fe(III) Coagulant, *J. Environ. Eng.*, 121(12): 893-901.
- KHETAN, S.K., COLLINS, T.J., 2007. Human pharmaceuticals in the aquatic environment: a challenge to green chemistry. *Chem Rev.*, 107: 2319–64.
- KINNEY, C.A., FURLONG, E.T., WERNER, S.L., CAHIL, D., 2006. Presence and Distribution of Wastewater-Driven Pharmaceuticals in Soil Irrigated with Reclaimed Water. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 25(2):317-326.
- KOMESLI, O.T., MUZ, M., AK, M.S., BAKIRDERE, S., GOKCAY, C.F., 2015. Occurrence, fate and removal of endocrine disrupting compounds (EDCs) in Turkish wastewater treatment plants. *Chemical Engineering Journal* 277, 202–208.
- KOSMA, C.I., LAMBROPOULOU, D.A., ALBANIS, T.A., 2014. Investigation of PPCPs in wastewater treatment plants in Greece: occurrence, removal and environmental risk assessment. *Sci Total Environ*, 466-467:421-38.
- KOUTSOUBA, V., HEBERER, T.H., FUHRMANN, B., SCHMIDT-BAUMLER, K., TSIPI, D., HISKIA, A., 2003. Determination of polar pharmaceuticals in sewage water of Greece by gas chromatography–mass spectrometry, *Chemosphere* 51, 69–75
- KREUZINGER, N., CLARA, M., STRENN, B., KROISS, H., 2004. Relevance of the Sludge Retention Time (SRT) as Design Criteria for Wastewater Treatment Plants for the Removal of Endocrine Disruptors and Pharmaceuticals from Wastewater. *Water Science and Technology*, 50(5): 149-156.

- KUMMERER, K., 2001. Drugs In The Environment: Emission of Drugs, Diagnostic Aids and Disinfectants into Wastewater by Hospitals in Relation to Other Sources - A Review. *Chemosphere*, 45:957-969.
- LAROUS, S., MENIAI, A-H., 2016. Adsorption of Diclofenac from aqueous solution using activated carbon prepared from olive Stones, *International Journal of Hydrogen Energy* 41: 10380-10390.
- LASHEEN, M.R., EL-SHERIF, I.Y., TAWFIK, M.E., EL-WAKEEL, S.T., EL-SHAHAT, M.F., 2016. Preparation and adsorption properties of nano magnetite chitosan films for heavy metal ions from aqueous solution, *Materials Research Bulletin*, 80: 344-350.
- LEUNG, H.W., JIN, L., WEI, S., TSUI, M.M., ZHOU, B., JIAO, L., CHEUNG, P.C., CHUN, Y.K., MURPHY, M.B., LAM, P.K., 2013. Pharmaceuticals in tap water: human health risk assessment and proposed monitoring framework in China. *Environ Health Perspect.*, 121(7): 839-46.
- LIEBMANN, A., ZEIBIG, C., 2001. Pharmaceutical Applications For UV VIS Spectroscopy. *G.I.T. International* 2/2001
- LOOS, R., WOLLGAST, J., HUBER, T., HANKE, G., 2007. Polar herbicides, pharmaceutical products, perfluorooctanesulfonate (PFOS), perfluorooctanoate (PFOA), and nonylphenol and its carboxylates and ethoxylates in surface and tap waters around Lake Maggiore in Northern Italy. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 387(4): 1469-1478
- MATILAINEN, A., LINDQVIST, N., KORHONEN, S. AND TUHKANEN, T., 2002. Removal of NOM in the different stages of the water treatment process. *Environment International*, 28(6): 457-465.
- MCDOWELL, D.C., HUBER, M.M., WAGNER, M., VON GUNTEN, U. AND TERNES, T., 2005. Ozonation of carbamazepine in drinking water: Identification and kinetic study of major oxidation products. *Environmental Science and Technology*, 39(20), 8014-8022.

- METCALFE, C.D., KOENIG, B.G., BENNIE, D.T., SERVOS, M., TERNES, T.A., HIRSCH, R., 2003a. Occurrence of neutral and acidic drugs in the effluents of Canadian sewage treatment plants. *Environ. Toxicol. Chem.* 22 (12), 2872–2880.
- METCALFE, C.D., MIAO, X.S., KOENIG, B.G., STRUGER, J., 2003b. Distribution of acidic and neutral drugs in surface waters near sewage treatment plants in the lower Great Lakes Canada. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 22(12): 2881-2889.
- MOLDOVAN, Z., 2006. Occurrences of pharmaceutical and personal care products as micropollutants in rivers from Romania. *Chemosphere* 64(11): 1808- 1817.
- MORSE, H.N., 1978. Ueber eine neue Darstellengsmethode der Acetylamidophenole. *Ber. Deutscher. Chem. Ges.* 11, 232-233. □
- NAKADA, N., KOMORI, K., SUZUKI, Y., KONISHI, C., HOUWA, I., TANAKA, H., 2007. Occurrence of 70 pharmaceutical and personal care products in Tone River basin in Japan. *Water Science and Technology*, 56(12): 133-140.
- NEWCOMBE, G., DRIKAS, M., ASSEMI, S. AND BECKETT, R., 1997. Influence of characterised natural organic material on activated carbon adsorption: I. Characterisation of concentrated reservoir water. *Water Research*, 31(5):965-972.
- NIINA, M.V., HELIHA, R., TUULA, T., padhyeTEIF, K., 2007. Occurrence of Pharmaceuticals in River Water and Their Elimination in a Pilot-Scale Drinking Water Treatment Plant. *Environ. Sci. Technol.*, 41, 5077-5084.
- OLLERS, S., SINGER, H.P., FASSLER, P., MULLER, R.S., 2001. Simultaneous quantification of neutral and acidic pharmaceuticals and pesticides at the low-ng/l level in surface and waste water. *J. Chromatogr. A* 911:225–234.
- OSENBRUCK, K., GLASER, H.R., KNOLLER, K., WEISE, S.M., MODER, M., WENNRICH, R., 2007. Sources and transport of selected organic micropollutants in urban groundwater underlying the city of Halle (Saale), Germany. *Water Res.*, 41: 3259–70.

- OZBELGE, T.A., OZBELGE, O.H., BASKAYA, S.Z., 2002. Removal of phenolic compounds from rubber textile wastewaters by physicochemical methods, *Chemical Engineering and Processing*, 41: 719-730.
- PADHYE, L.P., YAO, H., KUNG'U, F.T., HUANG, C.H., 2014. Year-long evaluation on the occurrence and fate of pharmaceuticals, personal care products, and endocrine disrupting chemicals in an urban drinking water treatment plant. *Water Res.* 51, 266–276.
- PANSU M., GAUTHEYROU J., 2006. *Handbook of Soil Analysis, Mineralogical, Organic and Inorganic Methods*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- PAROJCIC, J., KATARINA K-R., ZORICA D., MILICA J., SVETLANA I., 2003. Development Of The Second-Order Derivative UV Spectrophotometric Method For Direct Determination Of Paracetamol In Urine Intended For Biopharmaceutical Characterisation Of Drug Products. *Biopharmaceutics & Drug Disposition* Volume 24 Issue 7, Pages309-314
- PENG, X., YU, Y., TANG, C., TAN, J., HUANG, Q., WANG, Z., 2008. Occurrence of steroid estrogens, endocrine-disrupting phenols, and acid pharmaceutical residues in urban riverine water of the Pearl River Delta, South China. *Science of the Total Environment* 397(1-3): 158-166.
- PETRIE, B., BARDEN, R., KASPRZYK-HORDERN, B., 2015. A review on emerging contaminants in wastewaters and the environment: Current knowledge, understudied areas and recommendations for future monitoring, *Water Research*, 72: 3-27.
- PLANAS, C., PUIG, A., RIVERA, J., CAIXACH, J., 2006. Analysis of pesticides and metabolites in Spanish surface waters by isotope dilution gas chromatography/mass spectrometry with previous automated solid-phase extraction: estimation of the uncertainty of the analytical results. *Journal of Chromatography, A* 1131(1-2): 242-252.
- PURDOM, C.E., HARDIMAN, P.A., BYE, V.J., ENO, N.C., TYLER, C.R., SUMPTER, J.R., 1994. Estrogenic effects of effluents from sewage treatment works, *Chemical Ecology*, 8:275-285.

- QUINTANA, J.B., WEISS, S., REEMTSMA, T., 2005. Pathways and Metabolites of Microbial Degradation of Selected Acidic Pharmaceutical and their Occurrence in Municipal Wastewater Treated by a Membrane Bioreactor, *Water Res*, 39:2654–2664.
- RABIET, M., TOGOLA, A., BRISSAUD, F., SEIDEL, J.L., BUDZINSKI, H., ELBAZ-POULICHET, F., 2006. Consequences of treated water recycling as regards pharmaceuticals and drugs in surface and ground waters of a medium-sized Mediterranean catchment. *Environ Sci Technol*, 40:5282–8.
- RADJENOVIC, J., PETROVIC M., VENTURA F., BARCELO D., 2008. Rejection of pharmaceuticals in nanofiltration and reverse osmosis membrane drinking water treatment. *Water Res.*, 42(14), 3601-3610.
- RICHARDSON, M.L., BOWRON, J.M., 1985. The Fate of Pharmaceutical Chemicals in The Aquatic Environment, *Journal of Pharmacy and Pharmacology*, 37:1-12.
- ROBERTS, P.H., THOMAS, K.V., 2005. The Occurrence of Selected Pharmaceuticals in Wastewater Effluent and Surfacewaters of the Lower Tyne Catchment. *Sci. Total Environ*, 356(1/3):143-153
- SACHER, F., LANGE, F.T., BRAUCH, H.J., BLANKENHORN, I., 2001. Pharmaceuticals in groundwaters. Analytical 19 B. methods and results of a monitoring program in Baden- Wurtemberg, Germany. *Journal of Chromatography A*, 938:199-210.
- SAHEB, D. JALE, E.L., REDDY RAMI. N., CHAKRAVARTHY, I.E., 2004. Simultaneous Determination Of Paracetamol And Diclofenac Sodium From Combined Dosage Forms By Absorbance Difference Method. *Asian Journal Of Chemistry*. Vol. 16, No. 2, 767-772.
- SAMMARTINO, M.P., BELLANTI, F., CASTRUCCI, M., RUIU, D., VISCO, G., ZOCCARATO, T. 2008. Ecopharmacology: deliberated or casual dispersion of pharmaceutical principles, phytosanitary, personal health care and veterinary products in environment needs a multivariate analysis or expert systems for the control, the measure and the remediation. *Microchem. J.*, 88: 201–9.

- SARI, S., OZDEMIR, G., YANGIN-GOMEÇ, C., ZENGİN, G.E., TOPUZ, E., AYDIN, E., PEHLIVANOĞLU-MANTAS, E., TAS, D.O., 2014. Seasonal variation of diclofenac concentration and its relation with wastewater characteristics at two municipal wastewater treatment plants in Turkey, *Journal of Hazardous Materials* 272, 155–164.
- SCHEYTT, T., MERSMANN, P., LINDSTADT, R., HEBERER, T., 2005. Determination of Sorption Coefficients of Pharmaceutically Active Substances Carbamazepine, Diclofenac, and Ibuprofen, in Sandy Sediments. *Chemosphere*, 60 (2):245–253.
- SEDLAK, D.L., PINKSTON, K.E., 2001. Factors affecting the concentrations of pharmaceuticals released to the aquatic environment. *Water Resources Update*, 56–64.
- SENGUL, F., KUCUKGUL, E.Y., 1995. Çevre Mühendisliğinde Fiziksel Kimyasal Temel İşlemler ve Süreçler, Dokuz Eylül Üniversitesi Mühendislik Fak. Yayınları, İzmir, No.153.
- SHANE, A.S., ERIC, C.W., HONGXIA, L., PAUL, W., YEOMIN, Y., 2007. Removal of EDCs and Pharmaceuticals in Drinking and Reuse Treatment Processes. Awwa Research Foundation, West Quincy Avenue, Denver, CO 80235-3098.
- SHARP, E.L., PARSONS, A., JEFFERSON, B., 2006 “Seasonal variations in natural organic matter and its impact on coagulation in water”, *Science of the Total Environment*, 363:183-194.
- SIMAZAKI, D., FUJIWARA, J., MANABE, S., MATSUDA, M., ASAMI, M., KUNIKANE, S., 2008. Removal of selected pharmaceuticals by chlorination, coagulation–sedimentation and powdered activated carbon treatment, *Water Science & Technology*, Vol 58 No 5 pp 1129-1135.
- SNYDER, S.A., WER, E.C., REXING, D.J., ZEGERS, R.E., DRURY, D.D., 2006. Ozone oxidation of endocrine disruptors and pharmaceuticals in surface water and wastewater, *Ozone Science and Engineering*, 28(6), 445-460.

- STACKELBERG, P.E., FURLONG, E.T., MEYER, M.T., ZAUGG, S.D., 2004. Hendersond AK, Reissmand DB. Persistence of pharmaceutical compounds and other organic wastewater contaminants in a conventional drinking-water-treatment plant. *Sci Total Environ*, 329:99-113.
- STACKELBERG, P.E., GIBS, J., FURLONG, E.T., MEYER, M.T., ZUG, S.D., LIPPINCOTT, L., 2007. Efficiency of conventional drinking-watertreatment processes in removal of pharmaceuticals and other organic compounds. *Sci. Total Environ.*, 377: 255-272.
- STAMATIS, N.K., KONSTANTINOOU, I.K., 2013. Occurrence and removal of emerging pharmaceutical, personal care compounds and caffeine tracer in municipal sewage treatment plant in Western Greece. *J Environ Sci Health B.*, 48:800-13.
- STAN, H.J., HEBERER, T., LINKERHAGNER, M., 1994. Occurrence of clofibric acid in the aquatic system-- is the use in human medical care the source of the contamination of surface, ground and drinking water? *Vom Vasser*, 79:57-68.
- STAN, H.J., HEBERER, T.H., 1997. Pharmaceuticals in the Aquatic Environment: Water Analysis. *Analysis* 25: pp20-23.
- STUMPF, M., 1996. Determination of drugs in sewage treatment plants and river water (in German). *Vom Wasser* 86: 291–303.
- STUMPF, M., TERNES, T.A., WILKEN, R.D., SILVANA VIANNA RODRGUES BAUMANN, W., 1999. Polar Drug Residues in Sewage and Natural Waters in the State of Rio De Janeiro. Brazil. *Sci. Total Environ*, 225 (1/2):135–141.
- TABAK, H.H., BRUNCH, R.L., 1970. Steroid Hormones as Water Pollutants I. Metabolism of Natural and Synthetic Ovulation Inhibiting Hormones by Microorganisms of Activated Sludge and Primary Settled Sludges. *Developments in Industrial Microbiology*, 11: 367-376
- TAMTAM, F., MERCIER, F., LE BOT, B., EURIN, J., TUC DINH, Q., CLÉMENT, M., CHEVREUIL, M., 2008. Occurrence and fate of antibiotics in the Seine River in various hydrological conditions. *Science of the Total Environment*, 393(1): 84-95.

- TARO, U., KIKUTA, T., 2005. Separate Estimation of Adsorption and Degradation of Pharmaceutical Substances and Estrogens in the Activated Sludge Process. *Water Research*, 39:1289-1300.
- TAUBER, R., 2003. Quantitative Analysis of Pharmaceuticals in Drinking Water from Ten Canadian Cities. Enviro-Test Laboratories, Xenos Division, Ontario, Canada.
- TAUXE-WUERSCH, A., DE ALENCASTRO, L.F., GRANDJEAN, D., TARRADELLAS, J., 2005. Occurrence of Several Acidic Drugs in Sewage Treatment Plants in Switzerland and Risk Assessment. *Water Res*, 39:1761–1772.
- TERNES, T.A., 1998. Occurrence of drugs in German sewage treatment plants and rivers. *Water Research*, 32(11): 3245-3260
- TERNES, T.A., 2001. Pharmaceuticals and metabolites as contaminants of the aquatic environment. In C. G. Daughton & T. L. Jones-Lepp (Eds.), *Pharmaceuticals and personal care products in the environment: Scientific and regulatory issues* (pp. 39-54). Washington: American Chemical Society.
- TERNES, T.A., ANDERSEN, H., GILBERG, D., BONERZ, M., 2002. Determination of estrogens in sludge and sediments by liquid extraction and GC/MS/MS. *Anal. Chem*, 74 (14):3498–3504.
- TERNES, T.A., MEISENHEIMER, M., MCDOWELL, D., SACHER, F., BRAUCH, H.J., HAIST-GULDE, B., PREUSS, G., WILME, U. AND ZULEI-SEIBERT, N., 2002. Removal of pharmaceuticals during drinking water treatment. *Environmental Science and Technology*, 36(17): 3855-3863
- TERNES, T.A., STUMPF, M., MUELLER, J., HABERER, K., WILKEN, R.D., SERVOS, M., 1999. Behavior and Occurrence of Estrogens in Municipal Sewage Treatment Plants. Investigations in Germany, Canada and Brazil. *Sci. Total Environ*, 225 (1/2):81–90.
- TIANA, Y., WUA, M., LINB, X., HUANG, P., HUANGA, Y., 2011. Synthesis of magnetic wheat straw for arsenic adsorption, *Journal of Hazardous Materials* 193, 10-16.

- TOGOLA, A., BUDZINSKI, H., 2008. Multi-residue analysis of pharmaceutical compounds in aqueous samples. *J Chromatogr A*, 1177:150–8.
- URASE, T., KIKUTA, T., 2005. Separate estimation of adsorption and degradation of pharmaceutical substances and estrogens in the activated sludge process. *Water Res*, 39 (7): 1289–1300.
- VAN DER HOEVEN, N., 2004. Current issues in statistics and models for ecotoxicological risk assessment. *Acta Biotheor.*, 52 (3): 201–217.
- VERLIEFDE A.R.D., HEIJMAN S.G.J., CORNELISSEN E.R., AMY G., VAN DER BRUGGEN B., VAN DIJK J.C., 2007. Influence of electrostatic interactions on the rejection with NF and assessment of the removal efficiency during NF/GAC treatment of pharmaceutically active compounds in surface water. *Water Research*. 41: 3227- 3240.
- VIENO, N.M, TUHKANEN, T., KRONBERG, L., 2006. Removal Of Pharmaceuticals in Drinking Water Treatment: Effect Of Chemical Coagulation, *Environmental Technology*, Vol. 27. pp 183-192.
- VIENO, N.M., TUHKANEN, T., KRONBERG, L., 2005. Seasonal variation in the occurrence of pharmaceuticals in effluents from a sewage treatment plant and in the recipient water. *Environ Sci Technol*, 39:8220-6.
- VON, MERING, J., 1893. Beitrage zur Kenntniss der Antipyretica. *Ter Monatsch.* 7, 577-587.
- WAGGOT, A., 1981. Trace organic substances in the River Lee (Great Britain). In *Chemistry in Water Reuse*, (1st edn): 55–99
- WESTERHOFF, P., YOON, Y., SNYDER, S. AND WERT, E., 2005. Fate of endocrine-disruptor, pharmaceutical, and personal care product chemicals during simulated drinking water treatment processes, *Environmental Science and Technology*, 39(17): 6649-6663.
- WITTE, W., 2000. Ecological impact of antibiotic use in animals on different complex microflora: environment, *International Journal of Antimicrobial Agents*, 14: 321- 325.

- XIAO, F., HUANG, J-C. H., ZHANG, B., CUI, C., 2009. Effects of low temperature on coagulation kinetics and floc surface morphology using alum, *Desalination* 237 201-213
- XU, P., DREWES, J.E., BELLONA, C., AMY, G., KIM, T.U., ADAM, M., HEBERER, T., 2005. Rejection of emerging organic micropollutants in nanofiltration-reverse osmosis membrane applications. *Water Environ Res.*, 77(1):40-8.
- YANG, W., WU, Y., ZHANG, L., JIANG, J., FENG, L., 2015. Removal of five selected pharmaceuticals by coagulation in the presence of dissolved humic acids and kaolin, *Desalination and Water Treatment*, 54, 1134-1140.
- YOON, Y., RYU, J., OH, J., CHOI, B.G., SNYDER, S.A., 2010. Occurrence of endocrine disrupting compounds, pharmaceuticals, and personal care products in the Han River (Seoul, South Korea). *Science of the Total Environment*, 408(3): 636-643.
- YOON, Y., WESTERHOFF, P., SNYDER, S.A., WERT, E.C., 2006. Nanofiltration and ultrafiltration of endocrine disrupting compounds, pharmaceuticals and personal care products. *Journal of Membrane Science*. 270: 88-100.
- YU, W-Z., GREGORY, J., LI, G-B., QU, J-H., 2013. Effect of humic acid on coagulation performance during aggregation at low temperature, *Chemical Engineering Journal*, 223, 412–417.
- YU, Z., PELDSZUS, S. & HUCK, P.M., 2007. Optimizing gas chromatographic-mass spectrometric analysis of selected pharmaceuticals and endocrine disrupting substances in water using factorial experimental design. *Journal of Chromatography, A* 1148(1): 65-77.
- YU, Z., PELDSZUS, S., HUCK, P.M., 2008. Adsorption characteristics of selected pharmaceuticals and an endocrine disrupting compound—Naproxen, carbamazepine and nonylphenol—on activated carbon, *Water Research*, 42: 2873-2882.
- ZHANG, Y., GEISSEN, S.U., GAL, C., 2008. Carbamazepine and diclofenac: removal in wastewater treatment plants and occurrence in water bodies. *Chemosphere*, 73:1151–61.

- ZUCCATO, E., CALAMARI, D., NATANGELO, M., FANELLI, R., 2000. Presence of therapeutic drugs in the environment, *The Lancet*, 355:1789-1790.
- ZUHLKE, S., 2004. Detection and identification of phenazone-type drugs and their microbial metabolites in ground and drinking water applying solid-phase extraction and gas chromatography with mass spectrometric detection. *Journal of Chromatography A*, 1050:201–209.
- ZWIENER, C., 2007. Occurrence and analysis of pharmaceuticals and their transformation products in drinking water treatment. *Anal Bioanal Chem.*, 387:1159–1162.
- ZWIENER, C., FRIMMEL, F.H., 2000. Oxidative treatment of pharmaceuticals in water. *Water Research*, 34(6), 1881-1885.



ÖZGEÇMİŞ

15 Temmuz 1980 tarihinde Osmaniye’de doğdu. Lisans eğitimine 1998 yılında Çukurova Üniversitesi Çevre Mühendisliği bölümünde başlayarak 2003 yılında mezun oldu. Aynı yıl Çukurova Üniversitesi Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı’nda yüksek lisans programına başladı. Yüksek lisans öğrenimi devam ederken 2006 yılında Çukurova Üniversitesi Çevre Mühendisliği bölümünde araştırma görevlisi olarak göreve başladı. 2007 yılında Çukurova Üniversitesi Çevre Mühendisliği Anabilim Dalı’nda doktora programına başladı.