



Sıyırıcı Olarak Kullanılan Polimer Boncuklarının ve Farklı Havalandırma Yoğunluklarının Membran Tıkanması Üzerine Sinerjistik Etkisi

Synergistic Effect of Polymer Beads Used as Scraper and Different Aeration Intensities on Membrane Fouling

Bahar Yavuztürk Gül^{1,2*}, **İsmail Koyuncu^{1,2}**

¹ İstanbul Teknik Üniversitesi, İnşaat Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, Ayazağa, İstanbul, TÜRKİYE

² Prof. Dr. Dincer Topacık Ulusal Membran Teknolojileri Uygulama ve Araştırma Merkezi, İTÜ Ayazağa Kampüsü, İstanbul, TÜRKİYE

Sorumlu Yazar / Corresponding Author*: bygul@itu.edu.tr

Geliş Tarihi / Received: 10.11.2022

Kabul Tarihi / Accepted: 28.03.2023

Araştırma Makalesi/Research Article

DOI:10.21205/deufmd.2023257506

Atıf şekli/ How to cite: YAVUZTÜRK GÜL, B., KOYUNCU, İ.(2023). Sıyırıcı Olarak Kullanılan Polimer Boncuklarının ve Farklı Havalandırma Yoğunluklarının Membran Tıkanması Üzerine Sinerjistik Etkisi. DEUFMD, 25(75), 585-595.

Öz

Membran biyoreaktörlerin (MBR) işletimi sırasında karşılaşılan en önemli problemlerden biri biyotıkanma sorunudur. Bu makalede düşük ve yüksek havalandırma yoğunluğunun (150 L/s ve 350 L/s) ve boncuk kullanımının membran biyotıkanması üzerindeki sinerjistik etkisinin belirlenmesi amaçlanmıştır. Bu sorunun çözümüne yönelik olarak, öncelikle biyofilm sıyırıcı etkisinden faydalanmak amacıyla polimer boncukların üretimi ve optimizasyonu yapılmıştır. Seçilen boncuklar ile yüksek ve düşük iki farklı havalandırma yoğunluğunda üç reaktör işletmesi gerçekleştirilmiştir. Optimizasyon sonuçlarına göre %12,5 polivinil alkol (PVA) ve %1 sodyum aljinat (S.A) kullanılarak hazırlanan, 2 saat süre ile %5,5 borik asit-%2 CaCl₂ karışımında ve 15 dakika süre ile 0,3 M fosfat çözeltisi içerisinde bekletilen boncuklar seçilmiştir. 350 L/s ile yapılan 1. MBR işletmesi sonucunda transmembran basıncı (TMP) 280 mbar olarak kaydedilirken havalandırmanın yoğunluğunun yarıya düşürüldüğü ikinci işletme sonunda TMP 440 mbar'a yükselmiştir. Bu sonuçlara göre membran biyotıkanması, düşük havalandırma yoğunluğunda yüksek havalandırma yoğunluğuna göre %57 oranında artış göstermiştir. Kimyasal yıkama sonrası yüksek havalandırma koşulları ile 3. kez işletilen MBR'da işletme sonunda maksimum TMP değeri 350 mbar olarak kaydedilmiştir. Yüksek havalandırma koşullarındaki iki işletme karşılaştırıldığında 1. işletmeye göre 3. işletme sonunda TMP değerinde gözlenen %25 artış membran modülünde meydana gelen geri dönüşümsüz tıkanmanın bir sonucu olarak değerlendirilmiştir. Bu nedenle polimer boncukların yüksek olmayan havalandırma koşulunda da ilave membran sıyırıcı özellikleriyle biyofilm önleme adına ek olumlu etki ortaya koyması kritik öneme sahiptir. Havalandırma koşulları ve polimer boncukların ortak kullanımı ve tasarlanan işletme koşullarına göre optimizasyonu biyotıkanmanın kontrol altına alınması ve havalandırma maliyetlerinde iyileşmeye neden olacaktır.

Anahtar Kelimeler: Biyotıkanma, MBR, havalandırma yoğunluğu, polimer boncuk

Abstract

One of the most important problems encountered during the operation of membrane bioreactors (MBR) is biofouling. The aim of this study is to determine the synergistic effect of low and high aeration intensity (150 L/s and 350 L/s) and the use of beads on membrane biofouling. In order to solve this problem, polymer beads were produced and optimized to take advantage of the biofilm stripping effect. Three MBR operations were carried out with the selected beads at two different aeration densities. According to the optimization results, it was selected to use beads containing 12.5% polyvinyl alcohol (PVA) and 1% sodium alginate (S.A) and soaked in 5.5% boric acid-2% CaCl₂ (2 hours) and 0.3 M phosphate solution (15 min). As a result of the 1st MBR operation with 350 L/s, the transmembrane pressure (TMP) was recorded as 280 mbar, while the TMP increased to 440 mbar at the end of the 2nd operation, in which the intensity of the aeration was reduced by half. According to 1st and 2nd MBR operations, membrane biofouling increased by 57% at low aeration intensity compared to high aeration intensity. The maximum transmembrane pressure (TMP) value was 350 mbar at the 3rd MBR operation, which was operated with the high air flow rate, and the module was used again after chemical washing. When the two operations under high aeration intensity were compared, the 25% increase in biofouling in the 3rd operation compared to the 1st one was evaluated as a result of irreversible fouling of the membrane module under high aeration conditions. For this reason, it is critical that the polymer beads exhibit an additional positive effect on biofilm prevention through membrane stripping properties even in low aeration conditions. The joint use of aeration intensities with polymer beads and their optimization according to the designed operating conditions will lead to an improvement in the control of membrane fouling and aeration costs.

Keywords: Biofouling, MBR, aeration intensity, polymer beads

1. Giriş

Atık su kalitesi ve çamur üretimi özelindeki avantajları nedeniyle, membran biyoreaktörler (MBR), atık su arıtma ve yeniden kullanım için yenilikçi ve gelecek vaat eden bir teknoloji haline gelmiştir [1,2]. Bununla birlikte, membran tıkanması, MBR sistemlerinin işletilmesini sınırlayan öncül bir problemdir. Membran biyolojik kirlenmesi, çamur floklarının adhezyonu ve ardından membran yüzeyinde mikroorganizmaların büyümesi sonucu ortaya çıkmaktadır. Membran yüzeyindeki mikrobiyal büyüme, filtrasyon direncini artıran ve süzüntü akısını önemli ölçüde azaltan ana faktördür [3,4]. Membran biyotıkanmasını kontrol etmek amacıyla, ön arıtma, periyodik geri yıkama, kimyasal temizleme gibi çeşitli uygulanabilir stratejiler benimsenmiştir [1,5].

Biyofilm oluşumunu engellemeye yönelik farklı biyolojik stratejiler de izlenmiştir [6-8]. Daha önce literatürde aljinat kullanılarak üretilen tutunma ortamlarına ek olarak (poly(vinylidene) fluoride (PVDF), polyethersulfone (PES), polysulfone (PSf), polivinil alkol (PVA) gibi polimerler de üretim için kullanılmıştır [9-11]. Yapılan çalışmalarda tutunma ortamları genellikle bakteri, alg vb.

mikroorganizmanın tutunmaları için hazırlanmıştır. Deneylerde kontrol olarak ise boş olarak üretilen tutunma ortamları kullanılmıştır. Kullanılan bu boş tutunma ortamlarının biyofilm tabakası üzerinde ~15% mekanik temizleme etkisi olduğu gösterilmiştir [12]. Böylece biyofilm yüzeyine çarpma şeklinde mekanik olarak gerçekleşen biyofilm temizliği dolaylı olarak EPS üretiminin de azalmasına olanak sağlayabilir.

Havalandırma yoğunluğu batık MBR'de işletme temel koşullarından biridir [13]. Çözünmüş oksijen konsantrasyonu biyoflokülasyon ve mikrobiyal aktivite üzerindeki etkileri nedeniyle mikrobiyal büyüme için önemli parametrelerden biridir. Ayrıca havalandırma yoğunluğu, membran yüzeyindeki sıyrıcı katkısı ile membran tıkanmasını azaltıcı etkiye sahiptir [14]. Buna bağlı olarak membran ömrü de uzamaktadır. Ayrıca, MBR'lerdeki enerji kullanımının yaklaşık %50'si MBR'lere verilen havalandırma ile ilişkilidir [15]. Bu nedenle, biyolojik kirlenmenin azaltılmasında fiziksel temizleme etkisini iyileştirmek ve MBR'lerin işletme maliyetinden tasarruf etmek için havalandırma yoğunluğunun biyotıkanma üzerindeki etkisinin araştırılması gerekmektedir.

Bu bağlamda, bu araştırma, farklı havalandırma yoğunluklarının boş boncuklar ile beraber fiziksel temizleme etkisini belirleyerek en iyi MBR performansı için optimum havalandırma yoğunluğunu bulmayı amaçlamıştır. Bu nedenle düşük ve yüksek havalandırma yoğunluğunun (150 L/s ve 350 L/s) ve boncuk kullanımının membran biyotıkanması üzerindeki sinerjistik etkisi incelenecektir. Bu amaçla biyofilm tabakasını azaltmak için tasarlanan ve optimizasyonu yapılan polimer boncuklar MBR sistemlerinde iki farklı havalandırma yoğunluğu altında test edilmiştir. Membran sisteminin performansını izlemek için AKM ve KOİ konsantrasyonu ölçülmüştür. Transmembran basıncı (TMP) yükselmesi ise membran tıkanmasını izlemek amacıyla sürekli olarak takip edilmiştir.

2. Materyal ve Metot

2.1. Polimer Tutunma Ortamlarının Üretimi ve Optimizasyonu

Aljinat tutunma ortamlarının kısa süreli kullanım süreleri nedeniyle daha uzun ömürlü ve dayanıklı taşıyıcı ortamların üretilmesi amacıyla denemeler yapılmıştır. Daha önce literatürde faz inversiyon metodu kullanılarak aljinat ile üretilen mikro gözenekli membran kaplamaları (poly(vinylidene) fluoride (PVDF), polyethersulfone (PES) ya da polysulfone (PSf)) polivinil alkol (PVA) ile denenmiştir [9-11]. Bu

çalışmada farklı olarak fosforile PVA boncuklar üretilmiş ve optimize edilerek kullanılmıştır.

Fosforile PVA boncuklar toksik olmaması ve düşük maliyeti nedeniyle bakteri hücrelerinin tutunabileceği elverişli bir ortam olarak tasarlanmıştır. Küre şeklindeki PVA boncuklar, doymuş borik asit çözeltisi ile çapraz bağlanmanın ardından fosfat çözeltisi ile sağlanan esterifikasyonla elde edilmiştir. Geçirgenliği arttırmak amacı ile sodyum aljinat kullanılmıştır. Fosforile PVA boncuklarının optimizasyonu için 6 farklı konfigürasyon denenmiştir. Bu konfigürasyonlar Tablo 1'de verilmektedir. Öncelikle PVA-Aljinat çözeltileri hazırlanmıştır. Karışım borik asit-CaCl₂ çözeltisine damlatılmış ve tutunma ortamları elde edilmiştir. Tutunma ortamları 24 saat süresince 4°C'de bekletilmiştir. Fosforile PVA tutunma ortamı üretmek amacıyla 0,3-0,5 M fosfat çözeltisinde 15 dakika bekletilen boncuklar daha sonra distile su ile yıkanmış polimer ortamlar kullanıma hazır hale gelmiştir. Tutunma ortamı olarak farklı koşullarda üretilen boncuklardan SEM analiz sonuçlarına göre seçim yapılmıştır. Seçim yapılırken boncuk yüzeyindeki gözenek yoğunluğu ve boncuk içinde oluşan süngerimsi yapının yoğunluğu Göz önüne alınmıştır. Polimer boncuklarda enine kesitte sünger görümlü yapı oluşumu arttıkça boncuğun dayanıklılığı azaltmaktadır.

Table 1. PVA tutunma ortamlarının optimizasyon şartları

Table 1. Optimization conditions of PVA immobilization

PVA TUTUNMA ORTAMLARININ ÜRETİM VE OPTİMİZASYON KOŞULLARI	
1.	%18 PVA-%2 sodyum aljinat, %2 Borik Asit-%2 CaCl ₂ (24 saat)
2.	%18 PVA-%2 sodyum aljinat, %8 Borik Asit-%2 CaCl ₂ (24 saat)
3.	%12,5 PVA-%1 S.A, %5,5 Borik asit-%2 CaCl ₂ (24 saat)
4.	%12,5 PVA-%1 S.A, %5,5 Borik asit-%2 CaCl ₂ (24 saat) +15 dakika 0,5 M Fosfat çözeltisi
5.	%12,5 PVA-%1 S.A, %5,5 Borik asit-%2 CaCl ₂ (2 saat)
6.	%12,5 PVA-%1 S.A, %5,5 Borik asit-%2 CaCl ₂ (2 saat) +15 dakika 0,3 M Fosfat çözeltisi

2.2. Farklı Havalandırma Koşullarında MBR İşletmeleri

Havalandırma yoğunluğunun biyofilm oluşumuna ve TMP üzerindeki etkisini incelemek için PVA taşıyıcı ortamları ile iki farklı havalandırma yoğunluğunda MBR işletmeleri gerçekleştirilmiştir. Tablo 2'de işletmelerdeki havalandırma koşulları özetlenmiştir. Düşük ve yüksek havalandırma yoğunlukları literatüre göre seçilmiş ve modifiye edilerek kullanılmıştır [19].

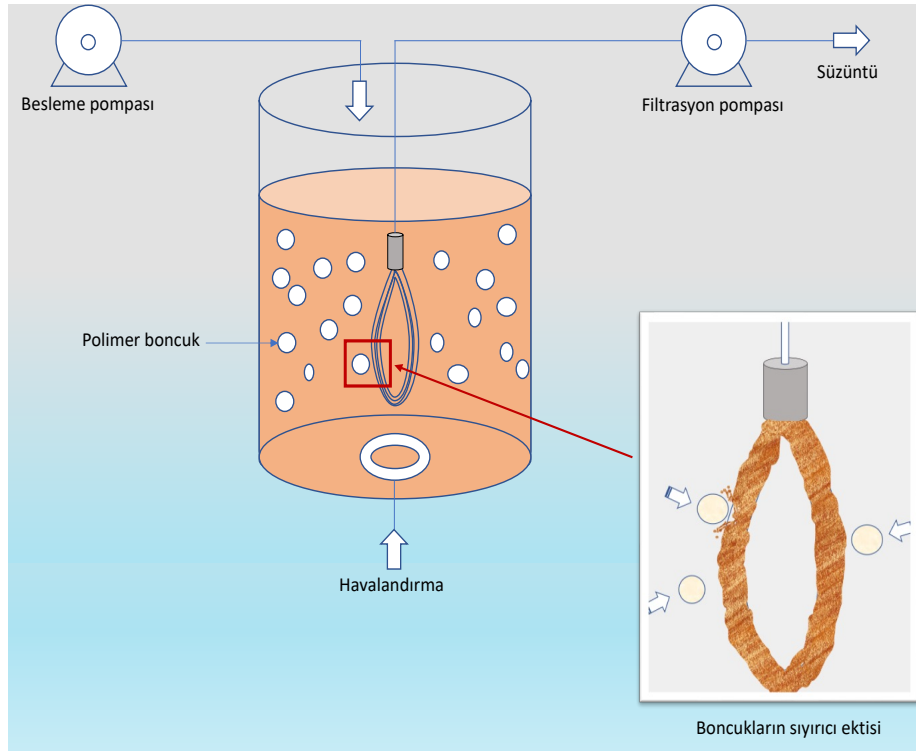
Tablo 2. İşletmelerdeki havalandırma koşulları

İşletme Sayısı	Havalandırma Koşulları
1. Tur	Havalandırma yoğunluğu=350 L/s DO=5,8-6 mg/L, ORP=160-200 mV
2. Tur	Havalandırma yoğunluğu=150 L/s DO= 2,5-3 mg/L, ORP=60-100 mV
3. Tur	Havalandırma yoğunluğu=350 L/s DO=5,8-6 mg/L, ORP=160-200 mV

MBR işletmelerinde, 5 L hacimli MBR reaktörü kurulmuş (Şekil 1) ve atıksu arıtma tesisinden alınan aktif çamur sentetik evsel atıksuya alıştırılarak kullanılmıştır. Sentetik atık suyun içeriği şöyledir (mg/L): glikoz, 500 mg/L; üre, 100 mg/L; (NH₄)₂SO₄, 50 mg/L; KH₂PO₄, 50 mg/L; MgSO₄ 7H₂O, 50 mg/L; NaCl, 50 mg/L; CaCl₂ 2H₂O, 10 mg/L; ve NaCO₃, 100 mg/L.

MBR sistemi, üretilen polimer boncuklarla 18 L/m²/saat sabit akı ve 11.000-12.400 mg/L askıda katı madde (AKM) konsantrasyonunda çalıştırılmıştır. Her iki reaktörde de 75 cm² etkin alana sahip PVDF içi boş fiber mikrofiltrasyon membran modülü kullanılmıştır (Philos Co. Ltd, Güney Kore).

MBR işletmeleri süresince AKM ve KOİ analizleri Standart Metotlara göre yapılmıştır [16]. Polimer boncuklar SEM analiziyle incelenmiştir. TMP değerleri online olarak devamlı kayıt altına alınmıştır.



Şekil 1. Lab-ölçekli MBR kurulumunun ve boncukların sıyrıcı etkisinin şematik gösterimi

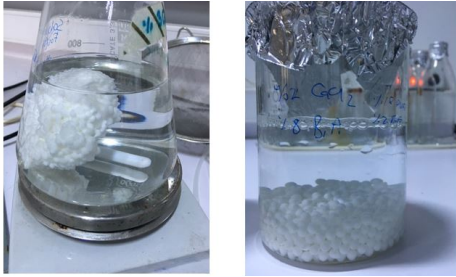
Figure 1. Schematic representation of the lab-scale MBR setup and the stripping effect of the beads

3. Bulgular

3.1 PVA Tutunma Ortamı Üretimi ve Optimizasyonu

3.1.1. %18 PVA-%2 sodyum aljinat ve %2 Borik Asit-%2 CaCl₂ (24 saat)

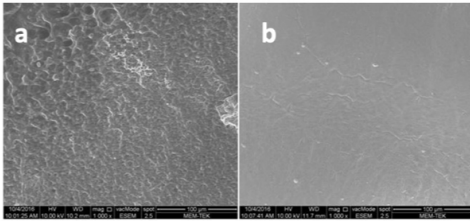
Dayanıklılığı arttırmak amacıyla literatürde de kullanılan yüksek PVA konsantrasyonu öncelikli olarak denenmiştir. Oluşan boncukların birbirine yapıştığı gözlenmiştir. Tam sertleşmeyen boncukların yeterince çapraz bağ kuramadığı düşünülerek bunu sağlamak amacıyla doymuş borik asit kullanılmaya karar verilmiştir. Şekil 2'de üretilen boncuklardaki yapışma sorununu ve problem çözüldükten sonra boncukların durumunu gösteren görseller sunulmuştur.



Şekil 2. Boncuklardaki yapışma sorunu
Figure 2. Adhesion issue in beads

3.1.2. %18 PVA-%2 sodyum aljinat ve %8 Borik Asit-%2 CaCl₂ (24 saat)

Aşırı doymuş borik asit çözeltisi kullanılmış ve yapışma sorunu giderilmiştir. Elde edilen boncuklardan SEM incelemesi yapılmıştır. Şekil 3'te kesit ve yüzey görüntüleri görülebilir. SEM görüntülerine göre %18 PVA'nın kullanıldığı bu deneme şartlarının gözenek içeriği çok düşük bir yüzey yapısı oluşturduğu görülmüştür.

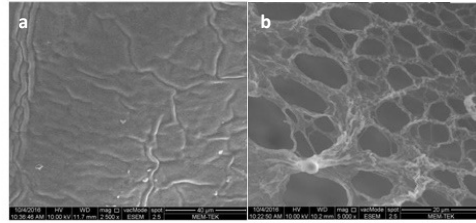


Şekil 3. %18 PVA-%2 sodyum aljinat ve %8 Borik Asit-%2 CaCl₂ (24 saat) denemesine ait kesit (a) ve yüzey (b) SEM görüntüleri

Figure 3. SEM images of cross-section (a) and surface (b) for the 18% PVA - 2% sodium alginate and 8% boric acid - 2% CaCl₂ (24 h)

3.1.3. %12,5 PVA-%1 S.A, %5,5 Borik asit-%2 CaCl₂ (24 saat)

Sünger benzeri yapı oluşumunu arttırmak amaçlanmış bu nedenle PVA ve aljinat miktarı düşürülerek denemeler yapılmıştır. Ayrıca borik asit miktarı da yüzeyin düşük gözenek yoğunluklu yapısını azaltmak amacıyla azaltılmıştır. Şekil 4'te %12,5 PVA-%1 S.A, %5,5 Borik asit-%2 CaCl₂ (24 saat) denemesine ait SEM görüntüleri yer almaktadır. Sünger görünümü yapının oluştuğu net bir biçimde görülmektedir.

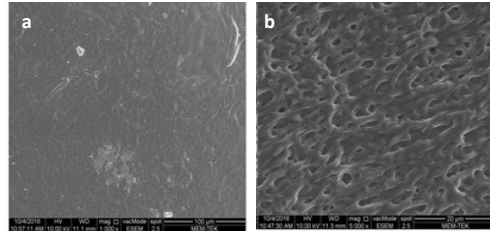


Şekil 4. %12,5 PVA-%1 S.A, %5,5 Borik asit-%2 CaCl₂ (24 saat) yöntemine ait yüzey (a) ve kesit (b) SEM görüntüleri

Figure 4. SEM images of cross-section (a) and surface (b) for the 12,5% PVA - 1% sodium alginate and 5,5% boric acid - 2% CaCl₂ (24 h)

3.1.4. %12,5 PVA+ %1 SA, %5,5 Borik asit+%2 CaCl₂ (24 saat) +15 dakika 0,5 M Fosfat çözeltisi

Bu denemede boncuk üretim formülasyonuna fosfat ekleyerek esterifikasyon sayesinde boncukların bütünlüğünü ve sertliğini arttırmak amaçlanmıştır. Yapılan boncukların SEM görüntüleri Şekil 5'te verilmiştir.

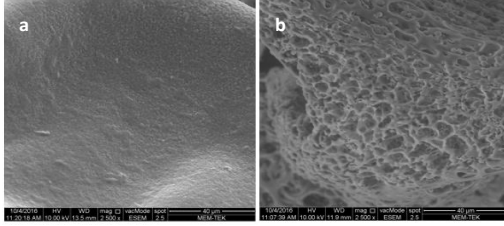


Şekil 5. 0,5 M fosfat çözeltisinde tabii tutulan boncukların yüzey (a) ve kesit (b) SEM görüntüleri

Figure 5. SEM images of beads exposed to 0.5 M phosphate solution: surface (a) and cross-section (b)

3.1.5. %12,5 PVA %1 S.A, %5,5 Borik asit %2 CaCl₂ (2 saat)

Bu optimizasyon çalışmasında boncukların Borik asit-CaCl₂ çözeltisinde bekleme süreleri kısaltılmıştır. Oluşan boncukların mekanik dayanımının düşük olduğu gözlenmiştir. Bu denemeye ait SEM görüntüleri Şekil 6'da görülebilir.

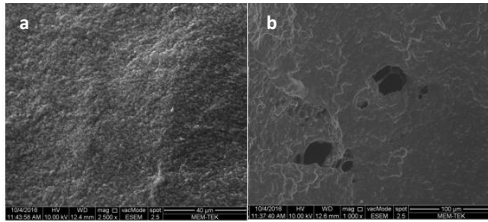


Şekil 6. Borik asit %2 CaCl₂ çözeltisinde 2 saat bekletilen boncukların yüzey (a) ve kesit (b) SEM görüntüleri

Figure 6. SEM images of beads exposed to 2% boric acid - 2% CaCl₂ solution for 2 h: surface (a) and cross-section (b)

3.1.6. %12,5 PVA %1 S.A, %5,5 Borik asit %2 CaCl₂ (2 saat) +15 dakika 0,3 M Fosfat çözeltisi

Fosfat çözeltisinde bekletmenin boncuk yapısı üzerindeki etkilerini görmek amacıyla 0,3 M fosfat çözeltisi kullanılmıştır. Fosfat çözeltisinde bekleyen boncukların (2 saat bekleme süresi) daha dayanıklı olduğu gözlenmiştir. Bu yöntem boncuk üretimi için seçilmiş buna göre üretim yapılmıştır. Fosfat çözeltisinde 15 dakika bekletilen boncukların SEM görüntüleri Şekil 7'de verilmiştir.



Şekil 7. 0,3 M Fosfat çözeltisinde bekletilmiş boncukların SEM görüntüleri

Figure 7. SEM images of beads soaked in 0.3 M phosphate solution

3.2 Havalandırma Yoğunluğunun Biyotıkanma Üzerine Etkisi

Farklı havalandırma koşullarının Biyotıkanma üzerindeki etkisini değerlendirmek amacıyla üç farklı senaryo kurgulanmıştır (Tablo 2). Bunlar:

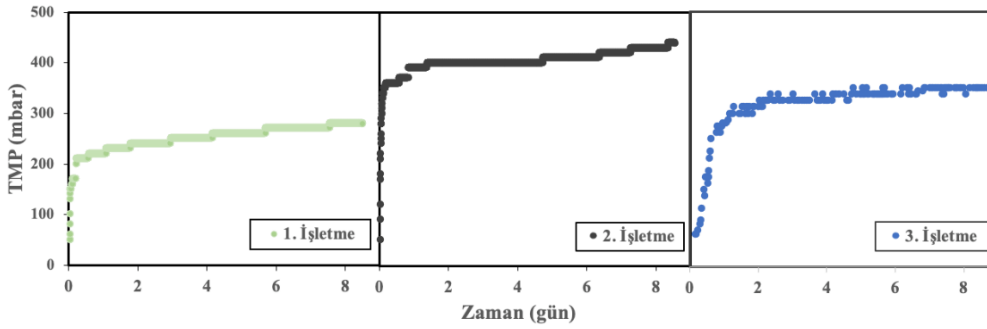
1. *tur işletme*: Yüksek havalandırma koşulları

2. *tur işletme*: Düşük havalandırma koşulları

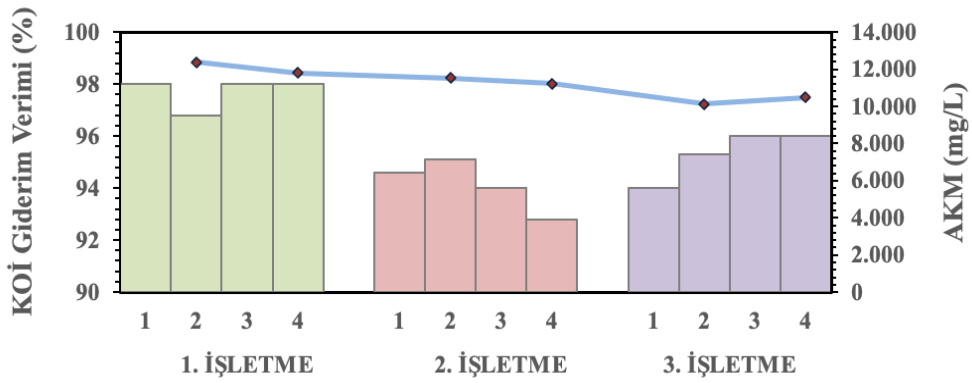
3. *tur işletme*: Yüksek havalandırma koşulları olarak belirlenmiştir.

Seçilen boncuk üretim yöntemine göre (%12,5 PVA ve %1 S.A içeren %5,5 Borik asit ve %2 CaCl₂ çözeltisi (2 saat), 0,3 M Fosfat çözeltisi (15 dak)) üretilen polimer boncuklar kullanılarak yukarıda bahsedilen havalandırma koşullarında üç tur işletme gerçekleştirilmiştir. İşletmeler neticesinde elde edilen TMP değerleri Şekil 8'de verilmiştir. Yüksek havalandırma koşuluna sahip birinci işletme sonunda TMP değeri maksimum 280 mbar olarak ölçülmüştür. Havalandırma yoğunluğunun yarıya düşürüldüğü ikinci işletme sonunda ise TMP 440 mbar olarak kaydedilmiştir. Üçüncü işletme öncesi birinci işletmede kullanılan membran modülü kimyasal yıkama ile temizlenmiş ve bu modül üçüncü işletmede kullanılmıştır. Kullanılmış modül 1000 mg/L sodium hypochlorite (NaClO) içerisinde 4 saat bekletilmiş ardından distile su ile yıkanarak temizlenmiştir. MBR yüksek havalandırma koşulları ile yeniden işletilmiş ve işletme sonunda TMP değeri 350 mbar olarak ölçülmüştür.

İşletmeler süresince periyodik olarak alınan numunelerde yapılan KOİ ve AKM analiz sonuçları Şekil 9'da verilmiştir. Şekilde görüldüğü üzere 1., 2. ve 3. işletmelerde KOİ giderim verimleri sırasıyla %97-98, %93-95 ve %94-96 olarak belirlenmiştir. AKM analiz sonuçları ise 11.000-12.400 mg/L olarak hesaplanmıştır.



Şekil 8. Farklı havalandırma koşullarında işletilen MBR sistemlerinin TMP profilleri
Figure 8. TMP profiles of MBR systems operated under different aeration conditions



Şekil 9. Farklı işletme koşullarında AKM miktarı ve KOİ giderim verimlerinin karşılaştırılması (Bar grafiği üç farklı işletmeye ait KOİ giderim verimlerini, çizgi grafiği işletmeler sırasındaki AKM miktarını göstermektedir.)

Figure 9. Comparison of MLSS and COD removal efficiencies under three different operational conditions. (The bar graph illustrates COD removal efficiencies; the line graph represents MLSS amount)

4. Tartışma ve Sonuç

Bu çalışmada, düşük ve yüksek yoğunluklu havalandırma koşulları ile sınırlı olarak kullanılan polimer boncuklar arasındaki sinerjik etkinin biyotıkanma üzerinde yaratacağı değişiklik üzerine çalışılmıştır.

Bu amaçla öncelikle dayanıklılığı artırılmış boncuklar üretilmiştir. Yapılan deneyler sonucunda %12,5 PVA ve %1 S.A içeren %5,5 Borik asit ve %2 CaCl₂ (2 saat) çözeltisinde bekletildikten sonra 15 dakika 0,3 M Fosfat çözeltisi ile muamele edilerek üretilen boncukların kullanılmasına karar verilmiştir. Bu polimer boncuklar ile farklı havalandırma koşullarında üç tur işletme gerçekleştirilmiştir.

Öncelikle üretilen boncukların aktif çamur miktarı üzerinde olumsuz bir etkisinin olmadığını gösterilmesi adına AKM ölçümleri düzenli olarak alınmış ve Şekil 9'da görüldüğü üzere çamur büyümesi üzerinde olumsuz bir etki yaratmamıştır. Bunun yanında, yüksek havalandırma yoğunluğunda AKM miktarı işletme periyodunun başında daha yüksek iken düşük havalandırma yoğunluğunda 11000 mg/L olarak ölçülmüştür. Aynı zamanda daha yüksek KOİ giderme verimliliği nedeniyle 1. işletmedeki yüksek havalandırma koşullarında yüksek mikrobiyal aktivitenin organiklerin biyolojik olarak parçalanmasını kolaylaştırdığı söylenebilir [17]. Yüksek havalandırma yoğunluğu, çamur floklarının stabilitesini büyük ölçüde etkileyen mikrobiyal aktiviteyi de desteklemiştir [18].

Membran tıkanmasını analiz edebilmek için işletmeler boyunca zaman içinde değişim gösteren TMP değerleri izlenmiştir. İşletmelere ait TMP değişimi Şekil 8'de verilmiştir. 1. ve 2. işletme grafikleri incelendiğinde yüksek ve düşük havalandırma yoğunluğunun (350 L/dak, 150 L/dak) TMP üzerindeki etkisi açıkça görülmektedir. Yüksek havalandırma koşullarında ölçülen maksimum TMP 280 mbar iken havalandırma yoğunluğunun yarıya düşürüldüğü ikinci işletme sonunda TMP 440 mbar'a kadar yükselmiştir. Yoğun havalandırmanın sınırlı etkisi ve havalandırma yoğunluğunun boncukların hareketini artırarak membran üzerinde oluşturduğu ilave fiziksel sıyırma etkisi neticesinde TMP değeri düşük kaydedilmiştir. Yoğun havalandırmanın yukarıda sayılan nedenlerle biyotıkanma üzerinde olumlu etki yaptığı sonucuna varılmıştır.

Üçüncü işletmeden önce membran modülü kimyasal yıkama ile temizlenmiştir. Temizleme sonucunda 3. işletmede kaydedilen başlangıç TMP seviyesi 1. işletmedeki başlangıç TMP seviyesinden %42 daha yüksektir. Bu durumun geri dönüşümsüz kirlenmeden kaynaklandığı sonucuna varılmıştır. Aynı yüksek havalandırma koşulları ile yeniden işletme sonunda maksimum TMP değeri 350 mbar olarak kaydedilmiştir. 1. işletmeyle aynı havalandırma koşullarında ve aynı modülle işletilmesine rağmen TMP değerinin 280 mbar'dan 350 mbar'a yükseldiği gözlenmiştir. TMP artışına neden olan membran tıkanmaları geri dönüştürülebilir ve geri dönüştürülemez olabilmektedir. Kimyasal yıkama sonrası elde edilen TMP değerlerinin temiz membrandan elde edilenlerden farklı olması membran modülünde meydana gelen geri dönüşümsüz tıkanmanın muhtemel göstergesi olarak değerlendirilmiştir [13].

Kamble R. S. ve Pandit A. B. (2020) yaptıkları çalışmada farklı havalandırma yoğunluklarında (120, 240 ve 480 L/h) membran modüllerindeki tıkanma üzerine çalışmış ve biyofilm oluşumunu karşılaştırmışlardır [19]. Araştırmacılar çok yüksek havalandırma yoğunluklarının (480 L/hr) çamur floklarında dağılmaya sebebiyet vererek geri dönüşümsüz tıkanmaya sebep olduğunu belirtmişlerdir. Havalandırma oranı kek tabakasının temizlenmesinde ve filtrasyon performansının iyileştirilmesinde kritik öneme sahiptir. Çok yüksek havalandırma koşullarında shear stress durumu, daha ince fakat daha yoğun bir kek tabakası ile sonuçlanmaktadır. Çok yüksek yoğunluklu havalandırma koşullarında hava kabarcıklarıyla temizlemenin neden olduğu kesme gerilimi ve boncukların membran yüzeyine çarpma hızı ve sıklığındaki artış, biyokirlenmenin gevşek bağlı olan kısmını sürekli olarak membrandan uzaklaştırırken, sıkı bağlı kirlenme membran yüzeyine yapışır. Bu, membran üzerinde sürekli olarak sıkı bir şekilde bağlı kirliliğin birikmesine neden olur ve membran yüzeyinde, kolayca çıkarılamayan ve daha yüksek akı azalma oranı ile sonuçlanan kompakt, yapışkan biyofilm tabakası oluşturur.

Yüksek havalandırma yoğunluğu işletme maliyetlerini arttırıp biyokütle karakteristiğini değiştirirken, düşük havalandırma yoğunluğu ise yetersiz membran sıyırılmasına ve biyokütle için yetersiz oksijen teminine neden olmaktadır. Bu durum ise arıtma veriminin düşmesine ve biyotıkanma ile sonuçlanmaktadır.

Havalandırma yoğunluğunun artması kek tabakasının giderilmesinde olumlu etki sahibi olsa da optimum seviye aşıldığında çamur karakteristiğinde neden olduğu değişiklikler ile membran porlarında dönüşümsüz tıkanmalara sebebiyet vererek membran tıkanmasının artmasına ve akı azalmasına sebebiyet vermektedir [20]. Tam bu noktada ek olarak kullanılabilir polimer boncuklar yüksek olmayan havalandırma koşulunda da membran sıyrıcı özellikleriyle biyofilm önleme adına ek olumlu etki ortaya koymaktadır. Havalandırma koşulları ve polimer boncukların ortak kullanımı ve işletme koşullarına göre optimizasyonu havalandırma maliyetlerinde iyileşmeye neden olacaktır.

Bu makale, havalandırma yoğunluklarının ve polimer boncukların etkisini gözlemlemek için hallow fiber membran modülü ile MBR'da filtrasyon performansının bir çalışmasını içermektedir. Havalandırma yoğunluğunun membran kirlenmesi ve membran filtrasyonu üzerinde önemli bir etkisi vardır. Havalandırma yoğunluğunun optimizasyonu, membran sisteminin optimum performansını verir. Boncukların ilave fiziksel temizlik etkileri ile birlikte havalandırma yoğunluğunun optimize edilmesinin membranı ciddi, geri dönüşü olmayan tıkanma ve kirlenmeden koruduğu düşünülmektedir. Ek sıyrıcı faktörler kullanılarak havalandırma yoğunluğunun optimizasyonu çalışmaları, işletme maliyetini azaltmak ve membran performansını arttırmak konusunda ışık tutucu olacaktır.

Havalandırma yoğunluğu belirli bir dereceye kadar arttığında, membran gözenek adsorpsiyonu, tıkanma ve membran jel tabakası direncinin ana membran direnci haline geldiği ve kirlenme oranının arttığı bulunmuştur. Bu nedenle, MBR'nin çalışması için optimum bir havalandırma yoğunluğu vardır.

5. Discussion and Conclusion

In this study, the synergistic effect between low and high aeration conditions and polymer beads used as scrapers on biofouling has been investigated.

To achieve this goal, durable beads were first produced. Based on the experimental results, beads containing 12.5% PVA and 1% Sodium Alginate, exposed to a solution consisting of 5.5% Boric Acid and 2% CaCl₂ for 2 hours and then treated with a 0.3 M Phosphate solution for 15 minutes, were selected for further use. Three

operational cycles were carried out using these polymer beads under different aeration conditions.

Initially, MLSS measurements were regularly taken to demonstrate that the produced beads had no adverse effect on the active sludge amount, and as shown in Figure 9, it did not negatively impact the sludge growth. Additionally, the MLSS amount under low aeration intensity was measured to be 11000 mg/L, whereas it was higher at the beginning of the operation which has high aeration intensity. Furthermore, it is suggested that the high microbial activity in the first operation under high aeration conditions facilitated the biological breakdown of organics, leading to a higher COD removal efficiency [17]. High aeration intensity also supported the microbial activity, which significantly influenced the stability of sludge flocs [18].

To analyze membrane fouling, TMP values that changed over time were monitored throughout the operation. The TMP variation for each operations is provided in Figure 8 and it clearly shows the effect of high and low aeration intensity (350 L/min and 150 L/min, respectively) on TMP. The maximum TMP measured under high aeration conditions was 280 mbar, which increased to 440 mbar when the aeration intensity was halved in the second cycle. The intensive aeration's scraping effect and the additional physical scraping effect created by increasing the aeration intensity to enhance the movement of the beads resulted in a lower TMP value recorded. Therefore, it was concluded that intense aeration had a positive impact on biofouling.

Before the third cycle, the membrane module was cleaned with a chemical wash. The initial TMP level recorded in the third cycle was 42% higher than that in the first cycle, indicating irreversible fouling. After re-operation under the same high aeration conditions in the third cycle, the maximum TMP value was measured as 350 mbar. Despite being operated under the same aeration conditions and with the same module as in the first cycle, the TMP value increased from 280 mbar to 350 mbar. The TMP increase caused by membrane fouling can be reversible or irreversible. The difference in TMP values obtained after chemical washing compared to those from a clean membrane is considered a potential indicator of irreversible fouling occurring within the membrane module [13].

In their study, Kamble R. S. and Pandit A. B. (2020) investigated fouling in membrane modules under different aeration intensities (120, 240, and 480 L/hr) and compared biofilm formation [19]. The researchers noted that very high aeration intensity (480 L/hr) led to the dispersion of sludge flocs, resulting in irreversible fouling. Aeration rate plays a critical role in cake layer removal and enhanced filtration performance. Under very high aeration conditions, the shear stress results in a thinner but denser cake layer. The increased shear stress caused by cleaning with air bubbles at very high aeration intensity leads to a higher collision rate and frequency of the beads with the membrane surface, continuously removing the loosely attached part of the biofilm from the membrane. However, the tightly attached fouling adheres to the membrane surface. This results in the accumulation of tightly bonded fouling on the membrane, forming a compact, adhesive biofilm layer that is difficult to remove and leads to higher flux decline rates.

While intense aeration increases operational costs and changes sludge characteristics, low aeration intensity leads to inadequate membrane scouring and insufficient oxygen supply for biomass, resulting in decreased treatment efficiency and biofouling. While increasing the aeration intensity has a positive effect on cake layer removal, exceeding the optimum level causes changes in the sludge characteristics and irreversible fouling of membrane pores, leading to an increase in membrane fouling and a decrease in flux [20]. At this point, optimizing aeration intensity in conjunction with the use of polymer beads offers additional positive effects in preventing biofilm formation, even under low aeration conditions. The optimization of aeration conditions and polymer bead usage according to operational conditions will lead to cost savings and improved membrane performance.

This article encompasses a study on the filtration performance of MBR with a hollow fiber membrane module to observe the effects of aeration intensity and polymer beads. Aeration intensity significantly affects membrane fouling and filtration. Optimizing aeration intensity provides the membrane system with optimum performance. The physical cleaning effect of beads, in addition to optimizing aeration intensity, protects the membrane from serious, irreversible fouling. Further research on the

optimization of aeration intensity using additional scraper factors will shed light on reducing operating costs and enhancing membrane performance.

6. Etik kurul onayı ve çıkar çatışması beyanı

Hazırlanan makalede etik kurul izni alınmasına gerek yoktur.

Hazırlanan makalede herhangi bir kişi/kurum ile çıkar çatışması bulunmamaktadır.

Teşekkür

Bu çalışma herhangi bir kurum tarafından desteklenmemiştir.

Kaynakça

- [1] Drews, A. 2010. Membrane fouling in membrane bioreactors-Characterisation, contradictions, cause and cures. *Journal of Membrane Science*, Cilt. 363(1-2), s. 1-28.
DOI: 10.1016/j.memsci.2010.06.046
- [2] Judd, S. 2008. The status of membrane bioreactor technology. *Trends in Biotechnology*, Cilt. 26(2), s. 109-116.
DOI: 10.1016/j.tibtech.2007.11.005
- [3] Malaeb, L., Le-Clech, P., Vrouwenvelder, J. S., Ayoub, G. M., Saikaly, P. E. 2013. Do biological-based strategies hold promise to biofouling control in MBRs? *Water Research*, Cilt. 47(15), s. 5447-5463. DOI: 10.1016/j.watres.2013.06.033
- [4] Valladares Linares, R., Fortunato, L., Farhat, N. M., Bucs, S. S., Staal, M., Fridjonsson, E. O., Johns, M. L., Vrouwenvelder, J. S., Leiknes, T. 2016. Mini-review: Novel non-destructive in situ biofilm characterization techniques in membrane systems. *Desalination and Water Treatment*, Cilt. 57(48-49), s. 22894-22901.
DOI: 10.1080/19443994.2016.1180483
- [5] Guo, W., Ngo, H.-H., Li, J. 2012. A mini-review on membrane fouling. *Bioresource. Technology*, Cilt. 122, s. 27-34.
DOI: 10.1016/j.biortech.2012.04.089
- [6] Pekgenc, E., Yavuzturk Gul, B., Vatanpour, V., Koyuncu, I. 2022. Biocatalytic membranes in anti-fouling and emerging pollutant degradation applications: Current state and perspectives. *Separation and Purification Technology*, Cilt. 282, s. 120098.
DOI: 10.1016/j.seppur.2021.120098
- [7] Saffarimiandoab, F., Gul, Y., Sengur Tasdemir, R., Kose Mutlu, B., Erkok Ilter, S., Unal, S., Tunaboynu, B., Menciloglu, Y. Z., Vatanpour, V., Koyuncu, I. 2022. Mechanisms, diagnosis, and monitoring of biofouling in membrane processes: A review. *Cilt. 247 s. 40-63*
DOI: 10.5004/dwt.2022.28045
- [8] Yavuztürk Gül, B., Köse Mutlu, B., Park, P.-K., Lee, C.-H., Koyuncu, I. 2019. Quorum Quenching for Biofouling Control in Membrane Bioreactors. *Çinde Encyclopedia of Water* (ss. 1-13). John Wiley & Sons, Ltd.
DOI: 10.1002/9781119300762.wsts0030
- [9] Asadi, S., Eris, S., Azizian, S. 2018. Alginate-Based Hydrogel Beads as a Biocompatible and Efficient Adsorbent for Dye Removal from Aqueous Solutions, *ACS Omega*, Cilt. 3(11), s. 15140-15148.
DOI: 10.1021/acsomega.8b02498
- [10] Kim, S.-R., Lee, K.-B., Kim, J.-E., Won, Y.-J., Yeon, K.-M., Lee, C.-H., Lim, D.-J. 2015. Macroencapsulation of quorum quenching bacteria by polymeric membrane layer and its application to MBR for biofouling control. *Journal of Membrane Science*, Cilt. 473, s. 109-117.
DOI: 10.1016/j.memsci.2014.09.009
- [11] Li, P., Müller, M., Chang, M. W., Frettlöh, M., Schönherr, H. 2017. Encapsulation of Autoinducer Sensing Reporter Bacteria in Reinforced Alginate-Based Microbeads. *ACS Applied Materials & Interfaces*, Cilt. 9(27), s. 22321-22331.
DOI: 10.1021/acsaami.7b07166
- [12] Kim, S. R., Oh, H. S., Jo, S. J., Yeon, K. M., Lee, C. H., Lim, D. J., Lee, C. H., Lee, J. K. 2013. Biofouling control with bead-entrapped quorum quenching bacteria in membrane bioreactors: Physical and biological effects. *Environmental Science and Technology*, Cilt. 47(2), s. 836-842.
DOI: 10.1021/es303995s
- [13] Huang, J., Zhou, J., Zeng, G., Gu, Y., Hu, Y., Tang, B., Shi, Y., Shi, L. 2018. Biofouling control and sludge properties promotion through quorum quenching in membrane bioreactors at two aeration intensities. *Biotechnology Letters*, Cilt. 40(7), s. 1067-1075.
DOI: 10.1007/s10529-018-2563-y
- [14] Iorhemen, O. T., Hamza, R. A., Tay, J. H. 2016. Membrane Bioreactor (MBR) Technology for Wastewater Treatment and Reclamation: Membrane Fouling. *Membranes*, Cilt. 6(2).
DOI: 10.3390/membranes6020033
- [15] Krzeminski, P., van der Graaf, J. H. J. M., van Lier, J. B. 2012. Specific energy consumption of membrane bioreactor (MBR) for sewage treatment. *Water Science and Technology*, Cilt. 65(2), s. 380-392.
DOI: 10.2166/wst.2012.861
- [16] Baird, R., Bridgewater, L. 2017. Standard methods for the examination of water and wastewater (23rd edition). American Public Health Association, American Water Works Association, & Water Environment Federation.
- [17] Hongwei, Y., Zhanpeng, J., Shaoqi, S., Tang, W. Z. 2002. INT-dehydrogenase activity test for assessing anaerobic biodegradability of organic compounds. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, Cilt. 53(3), s. 416-421.
DOI: 10.1016/S0147-6513(02)00002-7
- [18] Wilén, B.-M., Lund Nielsen, J., Keiding, K., Nielsen, P. H. 2000. Influence of microbial activity on the stability of activated sludge flocs. *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, Cilt. 18(2), s. 145-15.
DOI: 10.1016/S0927-7765(99)00138-1
- [19] Kamble, R. S., Pandit, A. B. 2020. Significant Study of Effect of Aeration Intensities on Membrane Bioreactor Performance. *International Journal of Scientific and Research Publications (IJSRP)*, Cilt. 11(1), s. 203-209.
DOI: 10.29322/IJSRP.11.01.2021.p10921
- [20] Du, X., Shi, Y., Jegatheesan, V., Haq, I. U. 2020. A Review on the Mechanism, Impacts and Control Methods of Membrane Fouling in MBR System. *Membranes*, Cilt. 10(2), s. 24.
DOI: 10.3390/membranes10020024