

AKÜ FEMÜBİD 19 (2019) 011201 (67-70)

AKU J. Sci. Eng. 19 (2019) 011201 (67-70)

Doi: 10.35414/akufemubid.483866

Araştırma Makalesi / Research Article

Sulu Ortamdan Co(II) İyonlarının Ultrafiltrasyonla Uzaklaştırılması

Cemal Çifci^{1*}, Mehmet Savrık², İbrahim Erol³

¹Afyon Kocatepe Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, Afyonkarahisar, Türkiye (<http://orcid.org/0000-0001-9410-211X>)

²Afyon Kocatepe Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, Kimya Bölümü, Afyonkarahisar, Türkiye (<http://orcid.org/0000-0002-2427-2225>)

³Afyon Kocatepe Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, Kimya Bölümü, Afyonkarahisar, Türkiye (<http://orcid.org/0000-0002-5541-8354>)

e-posta: cifcicemal@aku.edu.tr

Geliş Tarihi: 16.11.2018 ; Kabul Tarihi: 25.03.2019

Anahtar Kelimeler

Ultrafiltrasyon;
Membran;
Co(II) iyonu;
Metal iyonlarının
tutulması

Öz

Bu çalışmada; Co(II) iyonlarının sulu çözeltilerden kompleksiz olarak ultrafiltrasyonla ayrılması araştırılmıştır. Co(II) iyonlarının kompleksiz ortamda filtrasyonunda; poli(vinil alkol)/selüloz üzerine kaplama [poli(metil metakrilat-ko-etil akrilat)] kompozit membranları kullanılmıştır. pH'ın, çözelti konsantrasyonunun ve basıncın tutulma ve akıya etkileri çalışılmıştır. Yapılan bu çalışmada; en iyi tutulma pH=3' te, $0,5 \times 10^{-4}$ M derişimle Co(II) çözeltisinde, 30 Psi basınçta ve 400 devir/dk karıştırma hızında % 81,4 olarak bulunmuştur.

Removal of Co(II) Ions from Aqueous Solutions by Ultrafiltration

Abstract

Keywords
Ultrafiltration;
Membrane;
Co(II) ion;
Retention of metal ions

In this study; separation of Co(II) ions from aqueous solutions was investigated for absence of complex by ultrafiltration. Poly[(methyl methacrylate-co-ethyl acrylate)] covered on poly(vinyl alcohol)/cellulose composite membranes were used in the filtration of Co(II) ions for absence of complex. The effects of, pH, concentration of solution and pressure on the retention and flux were studied. In this study; the best retention were found as 81,4 % at pH of 3, concentration of $0,5 \times 10^{-4}$ M Co(II), pressure of 30 psi and stirred velocity of 400 rev/min in the presence at alginate acid.

© Afyon Kocatepe Üniversitesi

1. Giriş

Membranların günümüzde ayırma işlemlerinde kullanımı gün geçtikçe artmaktadır. Bu artıştaki temel faktörler membranların çalışma sistemlerinde düşük enerjinin yeterli olması ve normal oda şartlarında çalışmaların yürütülebilir olmasıdır. Membranların çalışma prensibi filtrasyon süresince çözeltinin konsantre ve süzüntü şeklinde ikiye ayrılması ve filtrasyon sonunda konsantre kısmın tutulması süzüntünün membrandan geçmesi şeklinde ifade edilebilir (Lastra et al. 2004; Gzara and Dhahbi 2001; Judd 2017; Hosseini et al. 2010). Membranların performansını belirleyen en temel

parametreler: akı, tutma kapasitesi ve seçiciliktir (Çifci and Kaya 2010). Membranlar akılarına göre yaygın olarak mikrofiltrasyon, ultrafiltrasyon ve nanofiltrasyon membranları şeklinde sınıflandırılmaktadır (Chang and Hwang 1996). Bu membranlarda uygun filtrasyon sistemlerinde kullanılarak ayırma işlemlerinde kullanılır.

Atıksularda en tehlikeli durumu oluşturan ağır metallerin varlığıdır. Ağır metaller bir şekilde canlı bünyeye geçerse birikmekte ve belli değerleri aşınca çok tehlikeli sağlık durumları oluşturmaktadır. Ağır metallerin sulu ortamdan uzaklaştırılmasında membranların kullanımı gün

geçtikçe önem kazanmaktadır (Chen et al. 2018; Al-Asheh et al. 1999). Co(II) iyonlarının sulu ortamdan uzaklaştırılması bir ekonomik değer kazandırmanın yanı sıra su ortamında azaltılması ağır metal kirliliğini giderir (Cun-Hua et al. 2010)

Bu çalışmada kesikli ultrafiltrasyon hücre sistemi kullanılarak kompleksiz ortamda Co(II) iyonlarının sulu ortamdan ayrılması araştırılmıştır. pH'ın, çözelti konsantrasyonu'nun ve basıncın tutulma ve akıya etkileri çalışılmıştır.

2. Materyal ve Metot

2.1 Deneylerde kullanılan maddeler

-Poli(vinil alkol) (PVA) (Fluka)

Polimer membran yapımında kullanılmıştır.

-Poli(metil metakrilat-ko-etil akrilat) P(MMA ko EA) (Sigma-Aldrich)

Polimer membran yapımında kullanılmıştır.

-Selüloz Filtre (Macherey-Nagel, MN 640 de)

Membran yapımında destek olarak kullanılmıştır.

-CoCl₂.6H₂O (Surechem)

Bu madde yapay olarak ağır metal içerikli sulu çözeltiler hazırlanmasında kullanılmıştır.

-N,N-Dimetil formamit (Riedel)

Membran yapımında kullanılmıştır.

-Glutaraldehyd (Sigma-Aldrich)

Membran yapımında kullanılmıştır.

-KSCN (Riedel)

UV-Vis spektrometresinde yapılan metal analizlerinde renklendirici olarak kullanılmıştır.

-HCl (Riedel)

pH'ı ayarlamak için kullanılmıştır.

-NH₃ (Sigma-Aldrich)

pH'ı ayarlamak için kullanılmıştır.

2.2 Deneylerde kullanılan alet ve düzenekler

-Kesikli ultrafiltrasyon sistemi (Milipore Amicon 8400)

-Etüv (İsolab)

-pH metre (OHAUS)

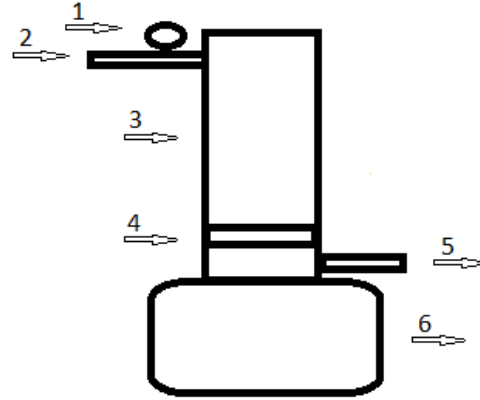
-UV-Vis spektrofotometre (UV-1700 Pharma, SHIMADZU)

-Isıtıcı manyetik karıştırıcı (İka)

-Otomatik pipet (Eppendorf)

-Kronometre (Oregon)

Filtrasyon sistemi Şekil 1'de görüldüğü gibi kesikli ultrafiltrasyon sistemidir. Filtrasyon hücresi, manyetik karıştırıcı ve basınç ayarlamalı azot gazı tüpünden oluşmaktadır. Konsantrasyonu ve pH'ı ayarlanmış 300 mL metal çözeltisi filtrasyon hücresinin besleme çözeltisi bölümüne konur ve azot gazı yardımıyla istenen basınç ayarlanarak, filtrasyon sistemine yerleştirilmiş 7,6 cm çapındaki membrana gönderilir. 300 mL çözelti membrandan tamamen geçene kadar geçen süre, daha sonra akı hesaplamak için kaydedilir ve bu sırada membrandan geçen filtrat çözeltisi bir behere alınır. Beherdeki bu filtrat çözeltisinden numune alınarak metal analizi yapılır.



Şekil 1. Filtrasyon sistemi. (1. Monometre 2. Azot gazı 3. Ultrafiltrasyon hücresi 4. Membran 5. Süzüntü 6. Manyetik karıştırıcı)

2.3 Membranların hazırlanması

Membranlar önceki çalışmamızda açıklandığı gibi hazırlandı (Çifci et al. 2018). Membranların hazırlanması kısaca şöyledir; saf su çözücü içerisinde % 1 (m/v)'lik PVA çözeltisinden 10 mL alınıp 9 cm çapındaki petri kabına döküldü. Sonra 7,6 cm çapında selüloz filtre hazırlanan çözeltiliye daldırılarak 60 °C etüvde tam kuruluğa kadar bekletildi. Sonra çapraz bağlama için oda şartlarında 2 saat glutaraldehyd (GA) çözeltisinde bekletilip saf su ile yıkandı ve oda şartlarında kurutuldu. Daha sonra DMF çözücü içerisinde % 0,75 (m/v)'lik Poli(metil metakrilat-ko-etil akrilat) çözeltisinden 10 mL alınarak oda şartlarında kurutulmuş membranların üzerine kaplama yapıp 60 °C etüvde tam kuruluğa kadar bekletildi. Saf su ile yıkandıktan sonra 45 dakika saf suda bekletilip filtrasyon

işleminde kullanılıncaya kadar oda şartlarında kurumaya bırakıldı.

2.4. Yüzde tutulma ve akının belirlenmesi

Membrandan geçiş tamamlandıktan sonra filtrattan örnek alınarak analiz yapılmıştır. Co(II) çözeltilerindeki metal konsantrasyonları UV-Vis spektrometre yardımıyla bulunmuştur. İyonların tutulması aşağıdaki eşitlik kullanılarak bulunmuştur.

$$\%R = \left(1 - \frac{C_f}{C_b}\right) \times 100 \quad (1)$$

Burada;

C_f : Filtrat çözeltisi derişimi

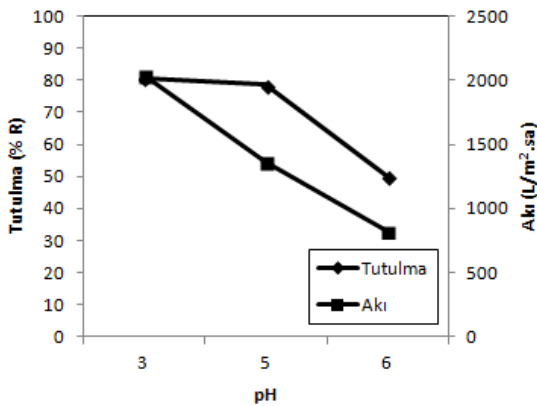
C_b : Besleme çözeltisi derişimidir.

Filtratın akısında; birim zamanda membran alanından geçen filtrat hacminin membran alanına ve birim zamana bölünmesiyle $L/m^2.sa$ biriminde bulunmuştur.

3. Bulgular

3.1. pH'nin kompleksiz ortamdaki Co(II) iyonları için yüzde tutulma ve akı üzerine etkisi

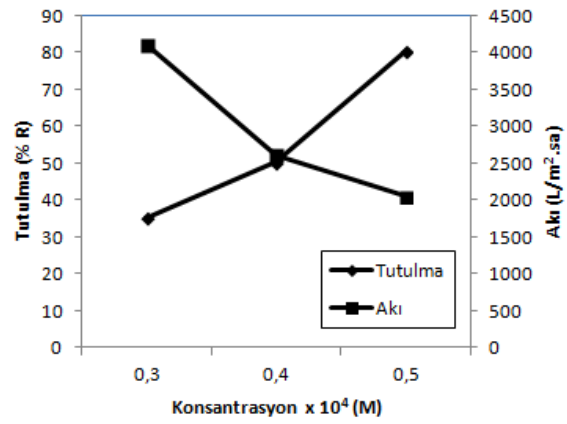
Bu çalışmada $0,5 \times 10^{-4}$ M Co(II) çözeltisinin P=50 psi ve 400 devir/dk karıştırma hızında değişik pH'larda filtrasyonuna bakılmıştır. pH'nin tutulma yüzdesi ve akıya etkilerinin sonuçları Şekil 2'de verilmiştir. pH 5'e kadar tutulma yüzdesi neredeyse sabit gözlenmiştir. pH 6'daki düşüş Co(II) iyonlarının hidrolizinden kaynaklandığı düşünülmektedir. Literatürde pH atırıldığında metal iyonlarında hidrolizin görülebileceği bildirilmiştir (Çifci and Şanlı, 2009).



Şekil 2. pH'nin kompleksiz ortamdaki Co(II) iyonları için yüzde tutulma ve akı üzerine etkisi. ($C_{Co(II)}=0,5 \times 10^{-4}$ M, P=50 psi, Karıştırma hızı=400 devir/dk)

3.2. Çözelti konsantrasyonu'nun kompleksiz ortamdaki Co(II) iyonları için yüzde tutulma ve akı üzerine etkisi

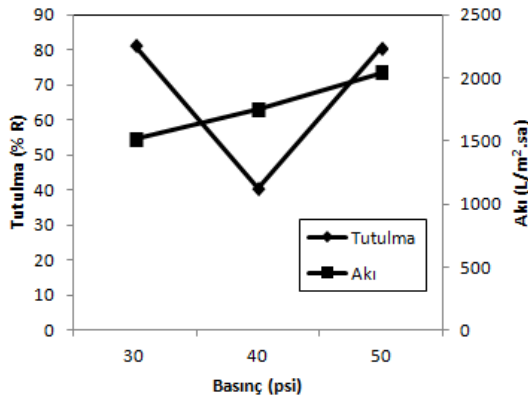
P=50 psi, pH=3, 400 devir/dk karıştırma hızında farklı derişimlerde yapılan Co(II) çözeltisi filtrasyonunun tutulma yüzdesi ve akıya etkileri Şekil 3'te gösterilmiştir. Konsantrasyon artışından dolayı ortamdaki daha fazla Co(II) iyonları membranın gözeneklerini nispeten tıkayarak küçültmüştür ve bu durumda tutulma yüzdesinde artışa ve akıda azalışa yol açmıştır.



Şekil 3. Çözelti konsantrasyonu'nun kompleksiz ortamdaki Co(II) iyonları için yüzde tutulma ve akı üzerine etkisi. (pH=3, P=50 psi, Karıştırma hızı=400 devir/dk)

3.3. Basıncın kompleksiz ortamdaki Co(II) iyonları için yüzde tutulma ve akı üzerine etkisi

$0,5 \times 10^{-4}$ M Co(II) çözeltisi pH=3, 400 devir/dk karıştırma hızında filtre edilmiştir. Basıncın tutulma yüzdesi ve akıya etkileri Şekil 4'te gösterilmiştir. 30, 40 ve 50 psi basınçlarda yapılan çalışmalarda en yüksek tutulma yüzdesi 30 psi'de gözlenmiştir. Akı ise beklendiği gibi basınç artışı ile artmıştır. 40 psi basınçtan 50 psi basınca geçildiğinde gözlenen tutulma artışı benzer şekilde Çifci ve Şanlı'nın çalışmasında da gözlenmiştir. Bu çalışmada bu tutulmadaki artışın; basınç artışıyla oluşan membran üzerindeki kekleşmenin filtrasyon için ek bariyere yol açması ile olabileceği yorumu yapılmıştır (Çifci and Şanlı, 2009).



Şekil 4. Basıncın kompleksiz ortamdaki Co(II) iyonları için yüzde tutulma ve akı üzerine etkisi. ($C_{Co(II)}=0,5 \times 10^{-4}$ M, pH=3, Karıştırma hızı=400 devir/dk)

4. Tartışma ve Sonuç

Co(II) iyonlarının sulu ortamdan uzaklaştırılarak azaltılması ağır metal kirliliğini önlemeye büyük katkı sağlar (Cun-Hua et al. 2010). Bu çalışmada Co(II) iyonlarının sulu çözeltilerden kesikli ultrafiltrasyon tekniği ile ayrılması poli(vinil alkol)/selüloz üzerine kaplama [poli(metil metakrilat-ko-etil akrilat)] kompozit membranları kullanılarak incelenmiştir. Çözelti pH'sı, çözelti konsantrasyonu ve basınç parametreleri araştırılmıştır. En iyi Co(II) tutulması yapılan deneylerde pH=3, $0,5 \times 10^{-4}$ M Co(II) çözeltisi, 30 psi basınç ve 400 devir/dk karıştırma hızında % 81,4 olarak bulunmuştur.

Bu çalışma metal tutulmasını sağlayan ve belirlenen parametre değerlerinde hassas çalışıldığı takdirde çevre sorunlarına uygulanabilir olan bir çalışmadır.

5. Kaynaklar

- Al-Asheh, S., Banat, F., Mohai, F., 1999. Sorption of copper and nickel by spent animal bones. *Chemosphere*, **39**, 2087-2096.
- Chang, D. J. and Hwang, S. J., 1996. Removal of metal ions from liquid solutions by cross flow microfiltration. *Separation Science and Technology*, **31**, 1831-1842.
- Chen, S.H., Wu, B.H., Fu, J.C., Wang, G.J., Wan, L.S., Xu, Z.K., 2018. Vertically oriented microporous membranes prepared by bidirectional freezing. *Chinese Journal of Polymer Science*, **36**, 880-887.
- Chun-Hua, X., Yu-Jie, F., Cai-Ping, Y., Chen, S., 2010. Removal of Co(II) from aqueous solutions by NKC-9 resin. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, **20**, 1141-1147.

Çifci, C. and Kaya, A., 2010. Preparation of poly(vinyl alcohol)/cellulose composite membranes for metal removal from aqueous solutions. *Desalination*, **253**, 175-179.

Çifci, C. and Savrık, M., Erol, İ., 2018. Purification of wastewater by using poly(methyl methacrylate-co-ethyl acrylate)/poly(vinyl alcohol)-cellulose membranes. *Fresenius Environmental Bulletin*, **27**, 1855-1861.

Çifci, C. and Şanlı O., 2009. Crossflow filtration of iron(III), copper(II), and cadmium(II) aqueous solutions with alginic acid/cellulose composite membranes. *Journal of Applied Polymer Science*, **115**, 616-623.

Gzara, L. and Dhahbi, M., 2001. Removal of chromate anions by micellar-enhanced ultrafiltration using cationic surfactants. *Desalination*, **137**, 241-250.

Hosseini, S.M., Madaeni, S.S., Khodabakhshi, A.R., 2010. Heterogeneous cation exchange membrane: preparation, characterization and comparison of transport properties of mono and bivalent cations. *Separation Science and Technology*, **45**, 2308-2321.

Judd, S.J., 2017. Membrane technology costs and me. *Water Research*, **122**, 1-9.

Lastra, A., Gomeza, D., Romerob, J., Francisco, J.L., Luque, S., Alvarez, J.R., 2004. Removal of metal complexes by nanofiltration in a TCF pulp mill: technical and economic feasibility. *Journal of Membrane Science*, **242**, 97-105.