

Atf İçin: Akdemir, A. ve Kılıç, F.C. (2024). Adsorbent Olarak Grafen Oksit Kullanılarak Metal Kaplama Atıksuyunda Nikel (II) Giderimi. *İğdır Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*, 14(1), 115-124.

To Cite: Akdemir, A. & Kılıç, F.C. (2024). Nickel (II) Removal in Metal Coating Wastewater Using Graphene Oxide as an Adsorbent. *Journal of the Institute of Science and Technology*, 14(1), 115-124.

Adsorbent Olarak Grafen Oksit Kullanılarak Metal Kaplama Atıksuyunda Nikel (II) Giderimi

Andaç AKDEMİR^{1*}, Funda Cemre KILIÇ¹

Öne Çıkanlar:

- Graphen oxide
- Nikel Giderimi
- Atıksu

Anahtar Kelimeler:

- Adsorpsiyon
- Metal kaplama
- Atıksu
- Nikel
- Grafen Oksit

ÖZET:

Grafen oksit kullanılarak atıksulardan nikelin gideriminin amaçlandığı bu çalışmada, metal kaplama endüstrisi atıksuyundaki 18.08 – 183.95 mg/L Ni(II) konsantrasyon aralığı için bir dizi adsorpsiyon çalışması gerçekleştirilmiştir. 200 rpm sabit karıştırma devri altında optimum pH=6 ve optimum temas süresi 90 dakika olarak bulunmuştur. Adsorpsiyonda kinetik olarak; yalancı 2. derece kinetik izoterm olarak Temkin izotermi uygun model olarak seçilmiştir. Adsorbent olarak optimum grafen oksit miktarı 0.016 mg/L ve buna bağlı olarak maksimum adsorplama kapasitesi 112.56 mg/g belirlenmiştir. Literatür karşılaştırmaları da dikkate alınarak; grafen oksitin geliştirilebilir bir adsorbent olarak kullanılabilceği, bununla birlikte tek başına yüksek verim elde edilemeyeceği ancak fonksiyonelleştirilmesi halinde grafen oksit ile yüksek verim sağlanabileceği sonucuna varılmıştır.

Nickel (II) Removal in Metal Coating Wastewater Using Graphene Oxide as an Adsorbent

Highlights:

- Graphene oxide
- Nickel removal
- wastewater

Keywords:

- Adsorption
- Metal Covering
- Wastewater
- Nickel
- Graphene Oxide

ABSTRACT:

In this study, a series of adsorption studies were carried out for the concentration range of 18.08 - 183.95 mg/L Ni(II) in metal plating industry wastewater using graphene oxide. Under constant stirring speed of 200 rpm, optimum pH=6 and optimum contact time was found to be 90 minutes. Temkin isotherm as a pseudo 2nd order kinetic isotherm was chosen as the appropriate model for adsorption kinetics. The optimum amount of graphene oxide as adsorbent was determined as 0.016 mg/L and accordingly the maximum adsorption capacity was 112.56 mg/g. Considering the literature comparisons; it was concluded that graphene oxide can be used as an improvable adsorbent, however, high efficiency cannot be obtained alone, but high efficiency can be achieved with graphene oxide if it is functionalized.

¹ Andaç AKDEMİR ([Orcid ID: 0000-0002-7592-4449](https://orcid.org/0000-0002-7592-4449)), Funda Cemre KILIÇ ([Orcid ID: 0000-0001-9932-570X](https://orcid.org/0000-0001-9932-570X)), Ondokuz Mayıs Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Çevre Mühendisliği Bölümü, Samsun, Türkiye

*Sorumlu Yazar/Corresponding Author: Andaç AKDEMİR, e-mail: aakdemir@omu.edu.tr

Bu çalışma Funda Cemre KILIÇ'ın Yüksek Lisans tezinden üretilmiştir. Makale 19-23 Haziran 2018 tarihlerinde Kastamonu'da düzenlenen "International Symposium Ecology 2018 Sempozyumunda poster olarak sunulmuştur.

GİRİŞ

Ağır metaller özellikle metal işleme, madencilik, metal kaplama, pil ve akü üretimi, boya üretimi ve gübre üretimi tesislerinden alıcı ortalama verilmektedir. Eser haldeki bu elementler toksik olup insan sağlığı risklerinin artmasına neden olmaktadır (Ko ve ark., 2017). Alıcı ortama verilen bu ağır metallerin içerisinde; krom, kadmiyum, civa, arsenik, nikel, bakır ve çinko özellikle önemlidir (Pourbeyram, 2016).

Nikel 1000°C'de oldukça yüksek mukavemete ve kostik veya oksitleyici olmayan asidik çözeltilerde ve gaz halindeki halojenlerde üstün korozyon direncine sahip bir metaldir. Pillerin elektro kaplanması ve üretimi için kullanılmaktadır (Yonezawa, 2012; Weber ve Banerjee, 2019). Yüksek esnekliğe, iyi ısı iletkenliğine, sertliğe sahiptir (Callender, 2003). Nikel yüksek konsantrasyonlarda ve sıcaklıklarda bile sodyum ve potasyum hidroksit gibi alkalilere karşı iyi derecede dirençlidir. Bu özellik nikelin kostik soda ve potasyum hidroksit üretimi ve işlenmesi için kimyasal proses ekipmanı imalatında kullanılmasına olanak sağlamaktadır. (Alves, 2016).

Nikel, biyolojik olarak parçalanamayan ve sucul ortamda birikebilen toksik bir metaldir. Nikel maruziyetinde; deride tahriş, anemi, hepatit, böbrek rahatsızlıkları, gastrointestinal rahatsızlıkları, merkezi sinir sisteminde fonksiyonel zayıflık, astım ve konjunktivit gibi sağlık problemleri olarak ortaya çıkar. Karbonlu nikel bileşenleri deri tarafından kolayca absorbe edilir ve kanserojeniktir (Widyarani, 2017; Kumar ve ark., 2019).

Nikel gideriminde kimyasal çöktürme yönteminin seçilme sebebi; sistemin basit ve düşük maliyetli olmasıdır. Bu yöntemde; kimyasallar çözünmeyen çökeltiler oluşturmak için ağır metal iyonlarıyla reaksiyona sokulmaktadır ve oluşan çökeltiler filtrasyon ile sudan uzaklaştırılmaktadır (Fu ve Wang, 2011). Ağır metal gideriminde kullanılan sülfür ve hidroksit ile çökeltme proseslerinde hidroksit çökeltim veriminin sülfür çökeltimine göre daha yüksek olduğu görülmüştür. Sülfür çökeltme işlemi, hidroksit çökeltme ile karşılaştırıldığında geniş bir pH aralığına sahiptir. Metal sülfür çamurları ayrıca ilgili metal hidroksit çamurlarından daha iyi kalınlaşma ve susuzlaştırma özellikleri göstermektedirler (Fu ve Wang, 2011).

İyon değiştirme yöntemi; daha yüksek sıcaklıklarda daha yüksek direnç ve seçicilik gibi ayrıcalıklı özelliklere sahiptir. Organik iyon değiştiriciler, zincirleme, çapraz bağlama, kapasite ve seçiciliğinde büyük değişikliklere yol açan radyasyon dozlarına karşı oldukça duyarlı olmasına rağmen inorganik iyon değiştiriciler düşük kimyasal ve mekanik mukavemete sahiptir (Pathania ve ark., 2017). Ön arıtım olarak kullanılan koagülasyon ve flokülasyon çözülmüş ve askıda katı maddelerin pıhtılaşma ile giderilmesini kolaylaştırmak için kimyasalların eklenmesini esas alır (Verma ve ark., 2012).

Nanofiltrasyon yöntemi ise; ağır metaller, organik boyalar gibi eser elementleri sulu çözeltilerden ayırmak için kullanılan bir tip basınçlı membran filtreleme teknolojisidir. Düşük enerji kullanımı, çalışma kolaylığı ve yüksek verimden dolayı tercih edilirler (Chen ve ark., 2018). Nanofiltrasyon işleminde kullanılan membranlar genellikle yüzeyde pozitif veya negatif yüklü sentetik polimerlerden oluşur ve bu durum ağır metallerin ayrışmasına yardımcı olur (Carolin ve ark., 2017).

Bu çalışmada kullanılan adsorpsiyon yöntemi adsorbatın çözelti fazından adsorbanın gözenekli iç yüzeyine fiziksel taşınım ile gerçekleşen kimyasal bir prosestir. Çözelti ve adsorbant arasında konsantrasyonun termodinamik dengesi sağlandığında, adsorpsiyon tamamlanır. Bu denge adsorbat ve adsorban arasındaki konsantrasyon, sıcaklık, vizkozite ve pH koşulları ile tanımlanır (Proctor ve ark., 2009).

Grafen oksit (GO) nötr grafit tabakalarının oksitlenmesiyle elde edilen katmanların herhangi bir katıdır. Grafen oksit bazal düzlemler üzerindeki hidroksi ve epoksit grupları gibi fonksiyonel gruplar içeren oksijen ile kovalent olarak bağlanan grafit tabakalarından ve kenarlardaki karboksil gruplarından

oluşmaktadır (Nethravathi ve ark., 2009). Grafen oksit, yüksek ısı iletkenliğine ($\sim 5000 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$), geniş teorik yüzey alanına ($2600 \text{ m}^2 \text{ gr}^{-1}$) ve yük taşıyıcılarının hareketliliğine ($200.000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$) sahip bir elementtir (Li ve ark., 2012). Grafen oksit, epoksi, hidroksil ve karboksil grupları formunda büyük miktarda oksijen içeren grafenin fonksiyonel grubudur. Tüm bu fonksiyonel grupların grafen oksit üzerindeki varlığı onu son derece hidrofilik hale getirmektedir. Bu nedenle grafen oksit su içinde kolayca dağılır ve su ortamında adsorban olarak kullanılabilir (Konicki vd, 2017). Yüksek yüzey alanına sahip olduğundan atık su arıtımı için iyi bir adsorban olarak kullanılmaktadır. Diğer adsorbanlardan farklı olarak grafen oksit (GO) ve indirgenmiş grafen oksit (rGO) farklı yüzey fonksiyonlarına sahiptir ve hidrofobik, elektrostatik ve hidrojen bağı gibi etkileşimler yoluyla çeşitli kirleticileri adsorplayabilir (Hao ve ark., 2018).

Optimum pH'nin 8 olarak belirlendiği bir çalışmada; 51.02 mg/g Ni(II) adsorplaması magnetik grafen oksit ile gerçekleştirilmiştir (Ain ve ark., 2020). Diğer bir çalışmada, demir oksit ve kitosan ile fonksiyonelleştirilen magnetik grafen oksit ile nikel giderimi yapılmıştır. Çalışmada, 12.24 mg/g lik adsorblama kapasitesine 70 dakikada ulaşılmış ve %80 lik bir nikel giderimi sağlanmıştır (Tran ve ark., 2019). Literatürdeki örnekleri inceleyerek yaptığımız çalışmada; fonksiyonelleştirilmemiş grafen oksidin adsorpsiyon yöntemi ile metal kaplama endüstrisi atıksuyundaki nikelin arıtımında kullanılabilirliği araştırılmıştır.

MATERYAL VE YÖNTEM

Atıksu Özellikleri

Deneylerde kullanılan atıksu Ordu İli Fatsa ilçe merkezinde bulunan Karne Metal Sanayi ve Ticaret A.Ş. tesisinden alınmıştır. Atıksu karakterizasyonu Çizelge 1'de verilmiştir.

Çizelge 1. Deneylerde kullanılan atıksuyun özellikleri

Parametre	Değer	Sınır Değer ³
Askıda Katı Madde(AKM) ¹	10 mg/L	125
Balık Biyodenyi (ZSF) ¹	<1-	2
Kimyasal Oksijen İhtiyacı(KOI) ¹	91 mg/L	100
pH ¹	8.18	6 - 9
Yağ ve Gres ¹	<10 mg/L	20
Nikel ²	18.08 - 662.72 mg/L	3

¹ 22.11.2018 tarihinde akredite laboratuvar tarafından yapılan analiz sonuçları

² Tarafımızdan yapılan 22.03.2018-29.11.2018 tarihleri arasındaki en düşük ve en yüksek analiz sonuçları

³ Su Kirliliği Kontrolü Yönetmeliği (SKKY) 15.5 kompozit numune 2 saatlik sınır değerleri

Grafen Oksit Özellikleri

Denemelerde grafen tabakalarının oksitlenmiş hali olan grafen oksit kullanılmıştır. Adsorbent olarak kullanılan grafen oksit % 99.55 saflıkta ve 0.4-1.1 nm tek katmanlı kalınlıktadır. Çapı 1-5 μm olup, siyah sıvı bir görünüme sahiptir. Konsantrasyonu ağırlıksal yüzde ile 8 mg/mL ve spesifik yüzey alanı $800-1600 \text{ m}^2/\text{g}$ 'dir. Ürün ticari olarak Nanografi firmasından temin edilmiştir.

Yöntem

Ön numune alma işlemi Bandelin HD 2070 sonikatörde gerçekleştirilmiştir. Adsorpsiyon işlemi VELD JLT6 model jar testinde yürütülmüştür. Adsorpsiyon sonucunda şırınga filtreye alınan numune Unicam 929 model AAS ile analiz edilmiştir. Deney prosedürü SM 3111 B metoduna uygun olarak gerçekleştirilmiştir. Sonikatör deneyleri % 100 genlikte ve jar testi 200 rpm sabit karıştırma hızında yapılmıştır.

Çalışmada ilk olarak farklı adsorbent miktarlarına (mg/L olarak) bağlı olarak optimum pH ve iletkenlik tespiti yapılmıştır. İkinci aşamada optimum şartlarda farklı adsorplama sürelerinde arıtım verimleri belirlenmiştir.

Çalışmanın ön işlemlerinde ilk aşamada; 1, 2, 4, 8 ve 16 ml ilaveli grafen oksit ile adsorpsiyon deneyleri 90 dakikalık bekleme süresi için gerçekleştirilmiştir. Bu işlemler pH'nın 3, 4, 5, 6, 7 ve 8 olarak hazırlandığı atıksu içinde ayrı ayrı yürütülmüştür. Bu ön çalışma esnasında karıştırma genliği 50, 100 ve 200 rpm olarak değiştirilmiştir.

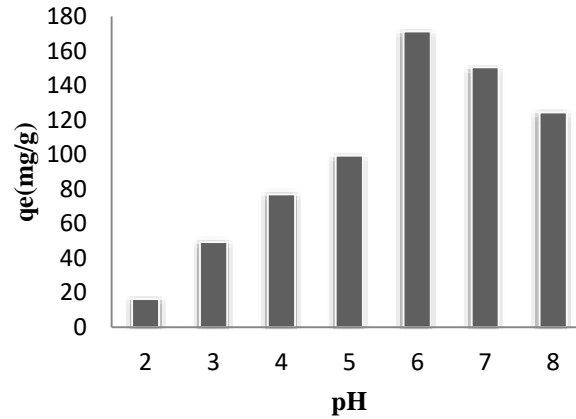
BULGULAR VE TARTIŞMA

Temas Süresinin ve pH'ın Etkisi

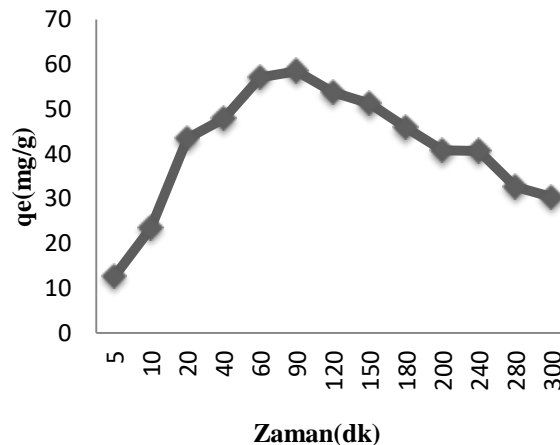
Temas süresi olarak 60, 75, 90, 120, 160, 180, 240, 260, 280 ve 300 dakika alındığı farklı deney setlerinde ön çalışmalar yapılmıştır. Bu deney setlerinde giriş nikel konsantrasyonları 17.76 mg/L ile 183.95 mg/L arasında ölçülmüştür. Optimum temas süresinin belirlendiği 90 dakika için adsorbent miktarı 0.016 mg/L olarak seçilmiştir.

pH 2'den sonra adsorplama kapasitesi artmaktadır. Düşük pH'larda adsorpsiyon kapasitesinin düşük olmasının nedeni kullanılan adsorbentin bazik karakterli olması ve asitlik içeren çözeltilerde adsorplanan maddenin iyon derecesini etkilemesidir. (Şekil 1). Şekil 1'de görüldüğü optimum temas süresi 90 dakika için optimum pH 6 olarak belirlenmiştir.

Optimum pH'ın 6 olarak sabitlendiği durumda temas süresindeki değişim incelendiğinde (Şekil 2); temas süresinin artmasıyla hem mevcut kalan adsorpsiyon bölgeleri hem de ağır metal iyonları ve grafen oksit tabakaları arasındaki itici kuvvet azalmış, yavaş adsorptif prosese yol açmış ve son olarak doygun adsorpsiyon kapasitesine ulaşılmıştır. Böylece optimum temas süresi olarak 90 dakika alınmıştır.



Şekil 1. Nikel gideriminde pH etkisinin incelenmesi



Şekil 2. Nikel gideriminde temas süresinin etkisinin incelenmesi

Adsorpsiyon İzotermi

Sorpsiyon izotermelerini incelemek için Langmuir, Freundlich ve Temkin izoterm modelleri olmak üzere üç denge modeli analiz edilmiştir (Çizelge 2 ve Şekil 3). Çizelge 2 ve Şekil 3’de görüldüğü gibi, fonksiyonelleştirilen grafen oksit çalışmalarında yaygın olan optimum izoterm Langmuir veya Freundlich izotermidir. Çizelge 2’de genel olarak Langmuir ve Freundlich izotermelerinin seçilme sebeplerinin başında; Temkin izotermine homojen karışımlarda ve bağlanma enerjisinin doğrusal olduğu varsayımı altında gerçekleşmesidir. Bu durumda grafen oksidin atıksu ile tam olarak homojen karışım sağlamadığı heterojen karışım sağladığı sonucuna varabiliriz. Tarafımızdan yapılan çalışmada, en uygun izoterm değerlendirmesinde düzeltilmiş belirleme katsayısı (R^2) dikkate alınmıştır. R^2 değeri arttıkça adsorpsiyon izotermine daha uygun bir modele dönüştüğüne karar verilmektedir. Bu nedenle en uygun izoterm modeli olarak Temkin izotermi seçilmiştir. Kısaca, en yüksek korelasyon katsayısı Temkin izoterm modeli kullanılarak elde edilmiştir. Bu da Ni iyonlarının GO tarafından adsorbe edildiğini göstermektedir. Adsorpsiyonun Temkin izotermine uyması Ni(II)’in grafen oksit yüzeyinde adsorpsiyon ısısının azalmasına işaret eder. Yani yüzey Ni(II) ile etkileşime girdikçe adsorpsiyon ısısında azalma meydana gelir. Langmuir izotermine kinetik sabiti olan R_L nin $0 < R_L < 1$ arasında olması istenir (Najafi ve ark., 2015). Bu nedenle Langmuir için optimum adsorbent miktarı 0.57 g/L dir. Freundlich izotermine $1/n$ değeri adsorbant-adsorbat sisteminin uygunluğu hakkında bilgi verir ve optimum adsorpsiyon verimi $0 < n < 1$ arasında olması istenir (Yari ve ark., 2015).

Reaksiyon Kinetikleri

Etkin adsorbat-adsorban için temas süresini belirlerken, adsorpsiyon işleminin hızına etki eden adsorpsiyon basamaklarının anlaşılması gerekir. Bunun için adsorpsiyon kinetiklerinin incelenmelidir. Adsorpsiyon belirli bir karıştırma nedeniyle çok hızlı gerçekleştiğinden dolayı yalancı birinci derece kinetik modeli ihmal edilir. Film tabakasına gelen Ni(II) iyonları buradaki durgun kısımdan geçerek adsorbentın gözenek boşluklarında hareket etmekte ve adsorpsiyonun meydana geleceği yüzeye doğru ilerlemektedir. Bu aşama yalancı ikinci derece denklem basamağıdır. Yapılan çalışmada hareketliliği arttıran karıştırma hızı 200 rpm olduğundan 1. basamak hız belirleyici olmamakla birlikte 2. basamak hız belirleyici olmuştur. Partikül içi difüzyon modelinin meydana geldiği basamak olan son adımda ise, adsorbat-adsorbentın gözenek yüzeyine tutunur ve bu basamak da 1. basamak gibi hızlı olduğundan çoğunlukla ihmal edilir. Grafen oksit ile nikel giderimine ait çalışmalara ait özet bilgi Çizelge 2’de verilmiştir.

Çizelge 2. Farklı çalışmalarda grafen oksit ile nikel giderimi

Adsorbent	Maksimum Adsorpsiyon Kapasitesi (mg/g)	Giderim Verimi (%)	En Uygun İzoterm	BET Yüzey Alanı (m ² /g)	Opt. Ph	Opt. Zaman (dak)	Referans
MnFe ₂ O ₄ /GO	152.67	-	Langmuir	78.46	5.5	270	Thy ve ark., 2020
Grafen Oksit(GO)	-	90.4	Freundlich	-	8.0	180	Rajivgandhi ve ark., 2021
İndirgenmiş rGO-TiO ₂	-	84.8	Temkin	-	8.0	1440	Chen ve ark.,2021
Magnetik Fungal Hyphal/Grafen Oksit Nano Fiber (MFHGs)	97.44	-	Langmuir	263.19	6.0	-	Moghaddam ve ark., 2019
Grafen Oksit (GO)	56.49	58.42	Langmuir	-	7.5	180	Moghaddam ve ark., 2019
Grafen Oksit/Badem Kabuğu (GO/AS)	69.93	58.42	Langmuir	-	7.5	180	Parsa ve Rezaei,2021
Melaminle Modifiye GO	1915.75	99.82	Langmuir	-	-	150	Wu ve ark.,2014
Grafen Oksit	158.98	-	Langmuir	124.92	7.0	30	Bu Çalışma
Grafen Oksit	112.56	-	Temkin	-	6.0	90	

Çizelge 3 ve Şekil 4’de görüldüğü gibi en yüksek R^2 değeri yalancı 2. derece kinetik ile açıklanmaktadır. Kinetik karşılaştırması belirleme katsayısı ile yapılabileceği gibi ki-kare karşılaştırma testi ile de yapıldığından ki-kare değeri en düşük olan yalancı 2. derece kinetik uygun kinetik olarak açıklanacaktır.

En iyi fit modeli doğrusal korelasyon katsayısına göre seçilmiştir (Çizelge 3 ve Şekil 4). Elde edilen deneysel veriler yalancı ikinci dereceden kinetiğe iyi bir şekilde uymuştur. Burada, adsorbanın yüzeyinde adsorbe edilen çözünen madde miktarı ve dengede adsorbe edilen çözünen madde miktarı, ağır metal sorpsiyonunun yalancı ikinci derece kinetik grafiklerinde yer alan önemli faktörlerdir. Yalancı ikinci dereceden kinetik model, ağır metal iyonlarının nanopartiküller üzerindeki adsorptif özelliklerinin kemisorpsiyon süreci sebebi ile olduğu düşünülmektedir.

Adsorbent Etkisi

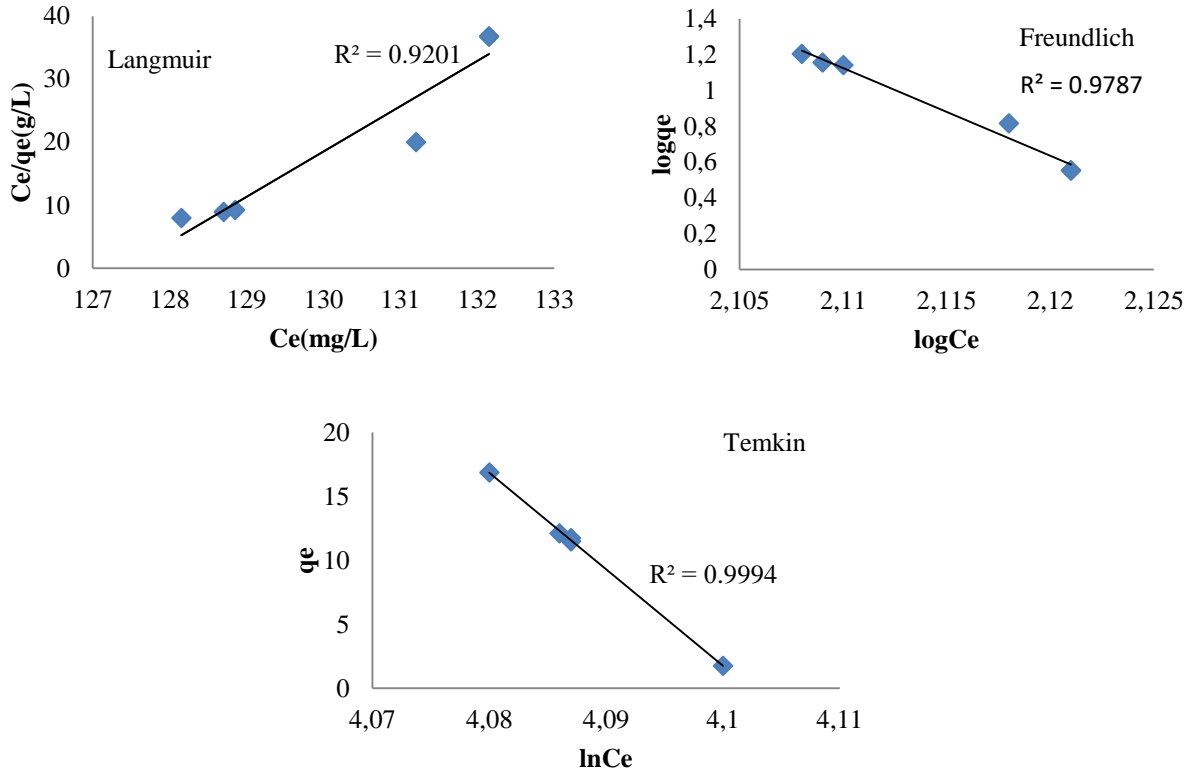
Nanopartikül dozajının etkisi optimum pH(8) için Çizelge 4’de gösterilmektedir. Giderim yüzdesi sorbent kütlesinin artırılmasıyla artmıştır. Adsorban dozajının 1 L başına 0,008’den 0,128 g’a çıkarılması, GO sorbentinde Ni iyonlarının giderim verimliliğini yükseltmiştir. Ayrıca, adsorban konsantrasyonunun artması durumunda, bağlanma bölgelerinin sayısı da artmıştır. Maksimum adsorpsiyona 112,56 mg/g adsorban dozajı ile ulaşılmıştır. Bu nedenle, 0,016 g/L optimum dozaj olarak kabul edilmiştir.

Çizelge 3. İzoterm ve kinetik çalışma sonuçları

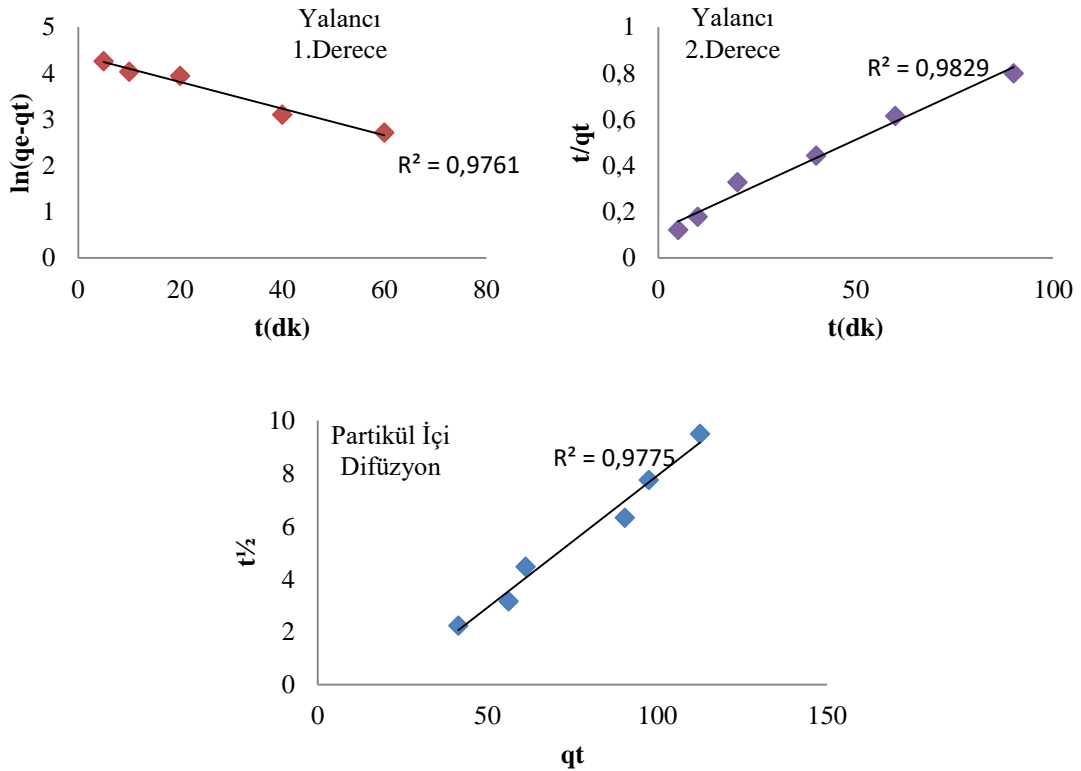
İzoterm ve Kinetikler	Parametreler	Adsorbent (Grafen Oksit) Miktarları (g / L)				
		0.08	0.016	0.032	0.064	0.128
Langmuir	q_{max} (mg/g)	7.698	277.78	0.163	0.139	0.0314
	b (L/mg)	-0.343	0.0048	-0.0079	-0.0078	-0.042
	R^2	0.2985	0.9358	0.5225	0.9201	0.5926
	R_L	-0.126	0.57	-29.32	-25.16	-7.15
		Tersinmez	Elverişli	Tersinmez	Tersinmez	Tersinmez
Freundlich	n	-0.131	-0.077	-0.019	-0.02	-0.045
	K_F	1.7×10^{12}	2.02×10^{30}	2.51×10^{108}	2.3×10^{104}	1.25×10^{31}
	R^2	0.9638	0.9785	0.7964	0.9787	0.8789
Temkin	b	1871.6	9278.5	3890.1	1984.4	129.46
	A	0.736	0.821	0.814	0.815	0.738
	R^2	0.9997	0.9999	0.9998	0.9993	0.9998
Yalancı 1.Derece Kinetik	K_1			4.3879		
	q_e			0.97		
	R^2			0.9761		
Yalancı 2.Derece Kinetik	K_2			0.000524		
	q_e			126.58		
	R^2			0.9829		
Partikül İçi Difüzyon Modeli	K_i			0.0998		
	C			2.0681		
	R^2			0.9775		

Çizelge 4. Optimum pH (6) ve optimum temas süresi (90 dakika) için adsorpsiyon kapasiteleri

Adsorbent Miktarı (g/L)	Adsorpsiyon Kapasitesi, q_e (mg/g)
0.008	58.46
0.016	112.56
0.032	19.33
0.064	5.59
0.128	5.85



Şekil 3. Optimum Şartlarda (pH=6; T=90 dak. ; R=200 rpm; GO=0.016 g/L) izotermelerin durumu



Şekil 4. Optimum şartlarda (pH=6; T=90 dak. ; R=200 rpm; GO=0.016 g/L) kinetiklerin durumu

SONUÇ

Endüstriyel nitelikli atıksulardaki ağır metaller en önemli çevre sorunlarından biridir ve suda yaşayan organizmalar için ciddi bir tehdit oluşturmaktadır. Adsorpsiyon prosesinde, Ni(II) giderimi için

adsorbent olarak grafen oksit kullanıldığı durumda; düşük pH değerlerinde adsorpsiyon kapasiteleri düştüğünden dolayı optimum pH 6 ve optimum temas süresi 90 dakika ve optimum adsorbent miktarı 0.016 mg/L olarak belirlenmiştir.

Çalışmalarda literatür bilgisi dikkate alınarak karıştırma hızı sabit tutulmuştur. Optimum karıştırma hızı olarak 200 rpm alınmış ve tüm deneyler bu sabit karıştırma hızında gerçekleştirilmiştir. Sabit seçilme nedenlerinden biri mekanik karıştırma öncesi sonik karıştırma yapılmış olması ve deney tekrarını arttıracak düzeyde adsorbent bulunmamasından dolayıdır. Karıştırma neticesinden adsorpsiyon izotermi ve kinetikleri incelenmiştir. En uygun izotermin belirleme katsayısının en yüksek olmasından dolayı Temkin izotermidir. Bu durum, izoterm moleküllerinin homojen bir şekilde adsorbent yüzeyine dağıldığının ve adsorpsiyon enerjilerinin doğrusal olarak değiştiğinin göstergesidir. Kinetik incelemelerinde adsorpsiyonun yalancı ikinci derece kinetik modele uygunluğu gözlemlenmiştir. Deney çalışmalarında 200 rpm karıştırma hızında yüzey tabakası kalınlığı azalarak adsorpsiyonu kolaylaştırdığı düşünülmektedir.

Grafen oksit ile Ni(II) iyonlarının giderimi çalışmasında maksimum giderim verimi %17.35 olarak hesaplanmıştır. Optimum koşullarda elde edilen verim düşük olduğundan dolayı, yalın grafen oksitin adsorpsiyon veriminin düşük olduğu ve yapılan çalışmalar da dikkate alındığında Ni(II) adsorpsiyonu için fonksiyonelleştirme işlemi gerçekleştirilmesi gerektiği sonucuna varılmıştır. Araştırmanın atıksu arıtımında nano malzemelerin kullanılabilmesine dair umut verici ve etkili sonuçlar elde edilebileceği kanaati doğmuştur.

TEŞEKKÜR

Bu çalışma Ondokuz Mayıs Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Koordinasyon Birimi tarafından "PYO.MUH.1904.17.023" kodlu proje ile desteklenmiştir.

Çıkar Çatışması Beyanı:

Makale yazarları aralarında herhangi bir çıkar çatışması olmadığını beyan ederler.

Yazar Katkıları:

Yazarlar makaleye eşit oranda katkı sağlamış olduklarını beyan eder.

KAYNAKLAR

- Alves, H. ve Heubner, U. (2016). Aqueous Corrosion Of Nickel And Its Alloys. Reference Module in Materials Science and Materials Engineering. Elsevier Reference Colletion. pp. 1-35. Hollanda
- Ain, Q., Farooq, M.U., Jaless M.I., (2020). Application of Magnetic Graphene Oxide for Water Purification: Heavy Metals Removal and Disinfection. Journal of Water Process Engineering. 33.101044.
- Callender, E., (2003). Heavy Metals in the Environment – Historical Trends. Treatise on Geochemistry. 20: 59–89.
- Carolin, C. F., Kumar, P. S, Saravanan, A., Joshiba, G.J., Naushad, M., (2017). Efficient Techniques For The Removal Of Toxic Heavy Metals From Aquatic Environment: A Review. Journal of Environmental Chemical Engineering. 5(3): 2782-2799.
- Chen, L., Li, N., Wen, Z., Zhang, L., Chen, Q., Chen, L., Si, P., Feng, J., Li, Y., Lou, J., C., (2018). Graphene Oxide Based Membrane Intercalated By Nanoparticles For High Performance Nanofiltration Application. Chemical Engineering Journal. 347. 12-18.

- Chen, R., Cheng, Y., Wang, P., Wang, Q., Wan, S., Huang, S., Su, R., Song, Y., Wang, Y., (2021). Enhanced removal of Co(II) and Ni(II) from high-salinity aqueous solution using reductive self-assembly of three-dimensional magnetic fungal hyphae/graphene oxide nanofibers. *Science of The Total Environment*. 756. 143871.
- Fu, F., Wang, Q., (2011). Removal Of Heavy Metal Ions From Wastewaters: A Review. *Journal of Environmental Management*. 92(3). 407-418.
- Hao, J. Ji, L. Li, C. Hu, C. and Wu, K. (2018). Rapid, efficient and economic removal of organic dyes and heavy metals from wastewater by zinc-induced in-situ reduction and precipitation of graphene oxide. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 88, 137-145. doi:10.1016/j.jtice.2018.03.045
- Ko, C.H., Yu, F.C., Chang, F.C., Yang, B.Y., Chen, W.H., Hwang, W.S., Tu, T.C., (2017). Bioethanol Production From Recovered Napier Grass With Heavy Metals. *Journal of Environmental Management*. 203(3). 1005-1010.
- Konicki, W., Aleksandrak, M., Mijowska, E., (2017). Equilibrium, kinetic and thermodynamic studies on adsorption of cationic dyes from aqueous solutions using graphene oxide. *Chemical Engineering Research and Design*, 123, 35-49. doi:10.1016/j.cherd.2017.03.036
- Kumar, A., Balouch, A., Pathan A.A., Jagirani, M.S., Mahar, A.M., Zubair, M., Laghari, B., (2019), Remediation of Nickel ion from wastewater by applying various techniques: a review, *Acta Chemica Malaysia*, Vol, 3(1).
- Li, Z., Chen Y., Du, Y., Wang, X., Yang, P., Zheng, J., (2012). Triphenylamine-Functionalized Graphene Decorated With Pt Nanoparticles And Its Application In Photocatalytic Hydrogen Production. *International Journal of Hydrogen Energy*. 37(6). 4880-4888.
- Moghaddam, N.Y., Lorestani, B., Cheraghi, M., Jamehbozorgi, S., (2019). Adsorption of Cd and Ni from water by graphene oxide and graphene oxide-almond Shell composite. *Water Environment Research*. 1-9.2019.
- Najafi, F., Moradi, O., Rajabi, M., Asif, M., Tyagi, I., Agarwal, S., Gupta, V.K., (2015), Thermodynamic of adsorption of nickel ions form aqueous phase using graphene oxide and glycine functionalized graphene oxide. *Journal of Molecular Liquids*. 208.106-113.
- Nethravathi, C., Nisha, T., Ravishankar, N., Shivakumara, C., Rajamathi, M, (2009). Graphene-Nanocrystalline Metal Sulphide Composites Produced By A One-Pot Reaction Starting From Graphite Oxide. *Carbon*. 47(8). 2054-2059.
- Pathania, D., Thakur, M., Mishra, A.K., (2017). Alginate-Zr(IV) Phosphate Nanocomposite Ion Exchanger: Binary Separation Of Heavy Metals. Photocatalysis And Antimicrobial Activity. *Journal of Alloys and Compounds*. 701(15). 153-162.
- Pourbeyram, S., (2016). Effective Removal Of Heavy Metals From Aqueous Solutions By Graphene Oxide-Zirconium Phosphate (GO-Zr-P) Nanocomposite. *Industrial Engineering Chemistry Research*. 55(19).5608-5617.
- Proctor, A., Toro-Vazquez, J.F., (2009). The Freundlich Isotherm in Studying Adsorption in Oil Processing. Bleaching and Purifying Fats and Oils Theory and Practice. Elsevier. 10. pp. 209-219. Hollanda.
- Thy, L.T.M., Kiem, N.H., Tu, H.T., Phu, L.M., Oanh, D.T.Y., Nam, H.M., Phong, M.T., Hieu, D.T.Y., (2020). Fabrication of manganese ferrite/graphene oxide nanocomposites for removal of nickel ions, methylene blue from water. *Chemical Physics*. 533.110700.

- Tran, T.L., Tran, H.V., Le, T.D., Bach, G.L., Tran, L.D.. (2019). Studying Ni(II) Adsorption of Magnetite/Graphene Oxide/Chitosan Nanocomposite. *Advances in Polymer Technology*. Vol 2019. 8124351.
- SM., 2023. *Standart Methods of the Examination of Water and Wastewater*. AWWA.WEF.APHA. 24 Edition.
- Verma, A.K., Dash, R.R., Bhunia, P., (2012). A Review On Chemical Coagulation/Flocculation Technologies For Removal Of Colour From Textile Wastewaters. *Journal of Environmental Management*. 93(3). 154-168.
- Weber, J.H., Banerjee, M.K., (2019). Nickel and Nickel Alloys: An Overview. Reference Module in Materials Science and Materials Engineering. Elsevier Reference Colletion. pp. 1-35. Hollanda
- Widyarani, D., Hariyadi, H.R., Wulan, D.R., Cahyaningsih, S., (2017). Removal of nickel ion fom electroplating wastewater using double chamber elevtrodeposition cell (DCEC) reactor partitioned with water hyacinth (*Eichhornia crassipes*) leaves, *IOP Conf. Series:Earth and Environmental Science* 60(2017)012020. IOP Publishing.
- Wu, Y., Luo, R, Wang, H., Zhang, L., Liu, P., Feng, L., (2014). *Journal of Colloid and Interface Science*. 436.90-98.
- Yari, M., Rajabi, M., Moradi, O., Yari, A., Asif, M., Agarwal S, Gupta VK. (2015). Kinetics of the adsorption of Pb(II) ions from aqueous solutions by graphene oxide and thiol functionalized graphene oxide. *Journal of Molecular Liquids*. 209. 50-57.
- Yonezawa, T, (2012). *Nickel Alloys:Properties and Characteristics*. *Comprehensive Nuclear Materials*. 2. 233–266.