



**TARTRAZİNİN SULU ÇÖZELTİLERDEN UZAKLAŞTIRILMASI: YEŞİL
MEMBRAN VE YEŞİL PROSES**

Sahila GAHRAMANLI

**YÜKSEK LİSANS TEZİ
KİMYA ANABİLİM DALI**

**GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

EYLÜL 2020

Sahila GAHRAMANLI tarafından hazırlanan “TARTRAZİNİN SULU ÇÖZELTİLERDEN UZAKLAŞTIRILMASI: YEŞİL MEMBRAN VE YEŞİL PROSES” adlı tez çalışması aşağıdaki jüri tarafından OY BİRLİĞİ ile Gazi Üniversitesi Kimya Ana Bilim Dalında YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Danışman: Prof. Dr. Gülsen ASMAN

Kimya Ana Bilim Dalı, Gazi Üniversitesi

Bu tezin, kapsam ve kalite olarak Yüksek Lisans Tezi olduğunu onaylıyorum.

.....

Başkan: Prof. Dr. Nuran IŞIKLAN

Kimya Ana Bilim Dalı, Kırıkkale Üniversitesi

Bu tezin, kapsam ve kalite olarak Yüksek Lisans Tezi olduğunu onaylıyorum.

.....

Üye: Doç. Dr. Ebru KONDOLOT SOLAK

Kimya Ana Bilim Dalı, Gazi Üniversitesi

Bu tezin, kapsam ve kalite olarak Yüksek Lisans Tezi olduğunu onaylıyorum.

.....

Tez Savunma Tarihi: 18/09/2020

Jüri tarafından kabul edilen bu tezin Yüksek Lisans Tezi olması için gerekli şartları yerine getirdiğini onaylıyorum.

.....

Prof. Dr. Cevriye GENCER

Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

ETİK BEYAN

Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Tez Yazım Kurallarına uygun olarak hazırladığım bu tez çalışmada;

- Tez içinde sunduğum verileri, bilgileri ve dokümanları akademik ve etik kurallar çerçevesinde elde ettiğimi,
- Tüm bilgi, belge, değerlendirme ve sonuçları bilimsel etik ve ahlak kurallarına uygun olarak sunduğumu,
- Tez çalışmada yararlandığım eserlerin tümüne uygun atıfta bulunarak kaynak gösterdiğimi,
- Kullanılan verilerde herhangi bir değişiklik yapmadığımı,
- Bu tezde sunduğum çalışmanın özgün olduğunu,

bildirir, aksi bir durumda aleyhime doğabilecek tüm hak kayıplarını kabullendiğimi beyan ederim.

Sahila GAHRAMANLI

18/09/2020

TARTRAZİNİN SULU ÇÖZELTİLERDEN UZAKLAŞTIRILMASI: YEŞİL
MEMBRAN VE YEŞİL PROSES

(Yüksek lisans tezi)

Sahila GAHRAMANLI

GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

Eylül 2020

ÖZET

Bu çalışmada membran prosesi olan çapraz akışlı filtrasyon (ÇAF) yöntemiyle anyonik bir boya olan Tartrazin (E102) sulu çözeltilerden uzaklaştırılması araştırıldı. Yeşil polimer türlerinden aljinik asit (AA), selüloz destek tabakalı membranların hazırlanmasında kullanılmış ve aljinik asit/alüminyum oksit (AA/Al₂O₃) ve aljinik asit/grafit (AA/C) kompozit membranların Tartrazin sulu çözeltilerinden uzaklaştırılmasındaki etkileri araştırılmıştır. Tartrazin sulu çözeltiden uzaklaştırılmasına Tartrazin/Kitosan kompleks oluşumu incelenerek, tutunma yüzdesine etkileri incelenmiştir. Membranların karakterizasyonu SEM, FTIR ve temas açısı ölçümleri kullanılarak yapılmıştır. Hazırlanan selüloz destek tabakalı aljinik asit membranları kullanarak ÇAF yöntemiyle Tartrazin sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasına membran kalınlığının, pH'nın, çözelti derişiminin, kompozit katkı maddeleri olarak kullanılan Al₂O₃ ve C miktarının, kompleksleştirici polimer derişiminin etkileri araştırılmıştır. Yapılan çalışmalar sonucunda Tartrazin tutunma yüzdesi pH=3,5 da selüloz destek tabakalı aljinik asit membranı ile % 44, Tartrazin/Kitosan kompleksi ile filtrasyonda % 69 olarak bulunmuştur. Selüloz destek tabakalı AA/Al₂O₃ ve AA/C kompozit membranıyla filtrasyonda en yüksek tutunma yüzdeleri 7g Al₂O₃ ve 0,5g C kullanılarak hazırlanan membranlar için sırasıyla pH=3,5 ve pH=1,5 da % 91,9 ve % 87 olarak belirlenmiştir.

Bilim Kodu : 20115

Anahtar Kelimeler : Tartrazin, E102, çapraz akışlı filtrasyon, yeşil membran, kompozit membran, aljinik asit

Sayfa Adedi : 101

Danışman : Prof. Dr. Gülsen ASMAN

REMOVAL OF TARTRAZINE FROM AQUEOUS SOLUTIONS: GREEN MEMBRANE AND GREEN PROCESS

(M. Sc. Thesis)

Sahila GAHRAMANLI

GAZİ UNIVERSITY

GRADUATE SCHOOL OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES

September 2020

ABSTRACT

In this study, the removal of Tartrazine (E102), an anionic dye, from aqueous solutions was investigated by the membrane process, cross flow filtration (CFF) method. Alginic acid (AA), one of the green polymer types, was used in the preparation of membranes with cellulose support layers, and the effects of alginic acid / aluminum oxide (AA/Al₂O₃) and alginic acid/graphite (AA/C) composite membranes on removing Tartrazine from aqueous solutions were investigated. The effects of the Tartrazine/Chitosan complex formation on the removal of Tartrazine from the aqueous solution were also investigated. Characterization of the membranes was made using SEM, FTIR and contact angle measurements. The effects of membrane thickness, pH, solution concentration, the amount of Al₂O₃ and C used as composite additives and complexing polymer concentration on the removal of Tartrazine from aqueous solutions were investigated by using the prepared cellulose support layer alginic acid membranes. As a result of the studies, the percentage of Tartrazine removal was found to be 44 % at pH = 3.5 with cellulose supported alginic acid membrane and 69 % in filtration with Tartrazine/Chitosan complex. For membranes prepared using 7g Al₂O₃ and 0,5g C, the removal Tartrazine percentages were determined as 91,9 % and 87 % at pH = 3.5 and pH = 1.5 respectively.

Science Code : 20115

Key Words : Tartrazine, E102, cross-flow filtration, green membrane, composite membrane, alginic acid

Page Number : 101

Supervisor : Prof. Dr. Gülsen ASMAN

TEŞEKKÜR

Yüksek lisans tez çalışmamın her aşamasında bilgi ve tecrübelerinden faydalandığım, çalışma süresince ilgisini esirgemeyen Danışman Hocam Sayın Prof. Dr. Gülsen ASMAN'a saygı ve teşekkürlerimi sunarım.

Laboratuvar çalışmalarında spektrofotometrik analizlerde yardımını esirgemeyen Prof. Dr. Zeynel SEFEROĞLU'na, yüksek lisans eğitimimde manevi ve teknik destekleriyle hep yanımda olan tüm çalışma arkadaşlarıma, FTIR analizlerim için Fen Fakültesi Kimya Bölümü'ne, SEM analizlerim için Fen Fakültesi Biyoloji Bölümü'ne ve değerli katkıları için Prof. Dr. Zekiye SULUDERE'ye teşekkürü bir borç bilirim.

Manevi destekleriyle beni hiçbir zaman yalnız bırakmayan çok değerli aileme ve eşim Ferid YUSİFLİ'ye teşekkürlerimi sunarım.

İÇİNDEKİLER

	Sayfa
ÖZET	iv
ABSTRACT.....	v
TEŞEKKÜR.....	vi
İÇİNDEKİLER	vii
ÇİZELGELERİN LİSTESİ.....	ix
ŞEKİLLERİN LİSTESİ.....	xi
SİMGELER VE KISALTMALAR.....	xv
1. GİRİŞ.....	1
2. BOYALAR.....	3
2.1. Boyaların Tanımı ve Kullanım Alanları	3
3. GIDA BOYALARI	5
3.1. Gıda Boyaların Adlandırılması	5
3.2. Tartrazin (E102).....	9
4. MEMBRAN VE MEMBRAN PROSESLERİ.....	13
4.1. Membranların Tanımı	13
4.1.1. Membranların sınıflandırılması.....	13
4.1.2. Membranların üretiminde kullanılan malzemeler ve hazırlama yöntemi..	15
4.1.3. Membranların uygulanma alanları.....	17
4.2. Membran Prosesleri	18
4.2.1. Yeşil proses olarak membran prosesleri.....	18
4.3. Membranla Ayırma İşlemleri.....	18
4.3.1. Çapraz akışlı filtrasyon.....	20

5. YEŞİL KİMYA VE YEŞİL POLİMER.....	23
5.1. Yeşil Kimya.....	23
5.2. Yeşil Polimer.....	23
5.2.1. Yeşil polimer türleri.....	24
6. SULU ÇÖZELTİLERİN ARITILMASI YÖNTEMLERİ.....	29
6.1. Boyaların atıksulardan arıtılması.....	29
6.2. Tartrazinin uzaklaştırılması.....	31
6.2.1. Membran prosesleri ile boyaların uzaklaştırılması.....	34
7. MATERYAL VE METOD.....	37
7.1. Materyal.....	37
7.1.1. Deneylerde kullanılan aletler ve düzenek.....	37
7.1.2. Deneylerde kullanılan maddeler.....	41
7.2. Yöntem.....	43
7.2.1. Membranların hazırlanması.....	43
7.2.2. Membranın ÇAF işlemlerinde kullanılması.....	46
8. SONUÇLARIN DEĞERLENDİRİLMESİ VE TARTIŞMA.....	47
8.1. Membran Çalışmaları.....	48
8.1.1. Membranların çaprazbağlanma işlemi.....	48
8.2. Selüloz Destek Tabakalı Aljinik Asit Membranı ile Uygun Aktarım Hızının Belirlenmesi.....	50
8.3. Selüloz Destek Tabakalı Aljinik Asit Membranlardan Tartrazin Filtrasyonuna Membran Kalınlığının Etkisi.....	51
8.4. Aljinik Asit Membranları ile Tartrazinin Uzaklaştırılmasına pH nın Etkisi.....	53
8.5. AA Membranlarla Tartrazin Filtrasyonuna Kompleksleştirici Polimerin Etkisi.....	55

8.6. AA Membranlarla Tartrazinin ve Tartrazin/Kitosan Kompleksinin Filtrasyonuna Derişimin Etkisi.....	57
8.7. Aljinik Asit ve Al ₂ O ₃ Kompozit Membranlarından Filtrasyon.....	63
8.7.1. AA/Al ₂ O ₃ kompozit membranlarından filtrasyona Al ₂ O ₃ miktarının tutunma yüzdesine etkisi.....	63
8.7.2. AA/Al ₂ O ₃ kompozit membranlarından tartrazinin uzaklaştırılmasına pH nın etkisi.....	66
8.7.3. AA/Al ₂ O ₃ kompozit membranlarından tartrazinin uzaklaştırılmasına derişimin etkisi.....	70
8.8. Aljinik Asit ve C Kompozit Membranlarından Filtrasyon.....	71
8.8.1. AA/C kompozit membranlarından filtrasyona C miktarının tutunma yüzdesine etkisi.....	71
8.8.2. AA/C kompozit membranlarından tartrazinin uzaklaştırılmasına pH nın etkisi.....	73
8.8.3. AA/C kompozit membranlarından tartrazinin uzaklaştırılmasına derişimin etkisi.....	76
9. AA, AA/C ve AA/Al ₂ O ₃ MEMBRANLARIN TARTRAZİN AYIRMA PERFORMANSLARININ KARŞILAŞTIRILMASI.....	79
10. SONUÇLAR.....	87
KAYNAKLAR.....	89
EKLER.....	99
EK-1. Tartrazinin (E102) dalga boyu.....	100
EK-2. Farklı derişimlerde tatrazinin kalibrasyon eğrisi ($\lambda_{\max}$ = 426 nm).....	100
ÖZGEÇMİŞ.....	101

ÇİZELGELERİN LİSTESİ

Çizelge	Sayfa
Çizelge 3.1. E numaralandırılması ile adlandırma.....	6
Çizelge 3.2. Gıda boyalarının E kodu ve adı.....	6
Çizelge 4.1. Membran proseslerinin sürücü kuvvete göre sınıflandırılması.....	20
Çizelge 5.1. Yeşil polimerlerin türleri.....	25
Çizelge 6.1. Tartrazinin uzaklaştırılması proseslerinde kullanılan malzemeler ve tutunma yüzdeleri.....	32
Çizelge 6.2. Membran prosesleriyle anyonik boyaların ayrılmasında kullanılan membranlar ve tutunma yüzdeleri.....	34
Çizelge 8.1. Selüloz destekli AA membranların kalınlıkları.....	51
Çizelge 8.2. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranında tampon ve Tartrazinin temas açıları.....	55
Çizelge 8.3. Selüloz destek tabakalı aljinik asit/ Al_2O_3 kompozit membranında tampon ve Tartrazinin temas açıları.....	69
Çizelge 8.4. Selüloz destek tabakalı aljinik asit/C kompozit membranında tampon ve Tartrazinin temas açıları.....	76

ŞEKİLLERİN LİSTESİ

Şekil	Sayfa
Şekil 3.1. Tatrazinin toz hali ve sulu çözeltisi.....	10
Şekil 3.2. Tatrazinin tepkime reaksiyonu.....	10
Şekil 3.3. Tatrazinin tepkime reaksiyonu.....	11
Şekil 4.1. Membranların şematik gösterilişi.....	14
Şekil 4.2. Kompozit membranın şematik gösterimi.....	15
Şekil 4.3. Çapraz akışlı filtrasyon yönteminin şematik gösterimi.....	21
Şekil 5.1. Kahverengi deniz yosunu.....	26
Şekil 5.2. Aljinik asit ve tuzlarında D-mannuronik (M) ve L-guluronik (G) birimlerinden oluşan bir glikuronoglikan zincirinin polimerik bloklarının yapısal formülleri.....	26
Şekil 5.3. Kitinden kitosanın sentezi.....	28
Şekil 6.1. Boyaların arıtma yöntemleri yüzdeleri.....	31
Şekil 7.1. Çapraz akışlı filtrasyon sistemi.....	38
Şekil 7.2. ÇAF sisteminin filtre bölümü.....	39
Şekil 7.3. ÇAF sisteminin akım şeması (1. Besleme kabı, 2. Pompa, 3. Basınç ölçer, 4. Filtrasyon hücresi, 5. Filtrat kabı, 6. Geçmeyen çözelti kabı).....	40
Şekil 7.4. Selüloz destek tabakalı AA membranının hazırlanmasının şematik gösterimi.....	43
Şekil 7.5. Selüloz destek tabakalı AA/Al ₂ O ₃ kompozit membranının hazırlanmasının şematik gösterimi.....	44
Şekil 7.6. Selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranının hazırlanmasının şematik gösterimi.....	45
Şekil 8.1. Çapraz bağlanma işleminde egg-box modeli.....	48
Şekil 8.2. Aljinik asit ve %1 CaCl ₂ * %1 HCl çaprazbağlayıcı aljinik asit membranlarının FTIR spektrumları.....	49
Şekil 8.3. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından saf suyun aktarım hızına aktarım devir sayısının etkisi.....	50

Şekil	Sayfa
Şekil 8.4. Farklı kalınlıklarda selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin filtrasyonunda tutunma yüzdelерinin membran kalınlığı ile değişimi (Tartrazin: 100 ppm; pH=3,5)	52
Şekil 8.5. Akının membran kalınlığı ile değişimi.....	52
Şekil 8.6. Farklı pH larda tartrazin sulu çözeltisinin selüloz destek tabakalı aljinik asit membranında tutunma yüzdesi.....	53
Şekil 8.7. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranında (a) tampon ve (b) Tartrazinin temas açısı.....	55
Şekil 8.8. Tartrazin/Kitosan kompleksinin spektrofotometrik absorpsiyonu.....	56
Şekil 8.9. Tartrazinin kitosan ile etkileşmesi.....	57
Şekil 8.10. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonu (a) Tartrazin Derişiminin zamanla değişimi (b) Tartrazin/Kitosan derişimin tutunma yüzdesine etkisi (110±10 µm AA, Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan derişim=10 ppm, pH=3,5).....	58
Şekil 8.11. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonu (a) Tartrazin Derişiminin zamanla değişimi (b) Tartrazin/Kitosan derişimin tutunma yüzdesine etkisi (110±10 µm AA, Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan derişim=20 ppm, pH=3,5).....	59
Şekil 8.12. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonu (a) Tartrazin Derişiminin zamanla değişimi (b) Tartrazin/Kitosan derişimin tutunma yüzdesine etkisi (110±10 µm AA, Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan derişim=30 ppm, pH=3,5).....	60
Şekil 8.13. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından (a) Tartrazin ve (b) Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonuna akının etkisi (110±10 µm AA, derişim=10 ppm, pH=3,5).....	61
Şekil 8.14. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından (a) Tartrazin ve (b) Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonuna akının etkisi (110±10 µm AA, derişim=20 ppm, pH=3,5).....	62
Şekil 8.15. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından (a) Tartrazin ve (b) Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonuna akının etkisi (110±10 µm AA, derişim=30 ppm, pH=3,5).....	62
Şekil 8.16. Tartrazinin sulu çözeltisinin filtrasyonunda Al ₂ O ₃ miktarının etkisi (Tartrazin derişimi =10 ppm, pH=3,5).....	63

Şekil	Sayfa
Şekil 8.17. Tartrazinin sulu çözeltisinin filtrasyonunda tutunma yüzdesine Al_2O_3 miktarının etkisi (Tartrazin derişimi = 10 ppm, pH=3,5).....	64
Şekil 8.18. AA/ Al_2O_3 kompozit membranıyla Tartrazinin uzaklaştırılması mekanizması.....	65
Şekil 8.19. AA/ Al_2O_3 kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda pH'nın etkisi (7g Al_2O_3 , pH=1,5; 2,5; 3,5; 4,5; 5,5, Tartrazin derişimi=10 ppm).....	66
Şekil 8.20. AA/ Al_2O_3 kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda pH'nın etkisi tutunma yüzdesi (7g Al_2O_3 , Tartrazin derişim=10 ppm).....	67
Şekil 8.21. Tartrazinin pH'nın etkisiyle protonlanma yapısı.....	68
Şekil 8.22. Selüloz destek tabakalı AA/ Al_2O_3 kompozit membranında (a) tampon ve (b) Tartrazinin temas açısı.....	69
Şekil 8.23. AA / Al_2O_3 kompozit membranında tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda derişimin etkisi (7g Al_2O_3 , pH=3,5).....	70
Şekil 8.24. Tartrazinin sulu çözeltisinin filtrasyonunda C miktarının derişim üzerinde etkisi (0,1; 0,3; 0,5 g C, Tartrazin derişim=10 ppm, pH=1,5).....	71
Şekil 8.25. Tartrazinin sulu çözeltisinin filtrasyonunda AA/C kompozit membranının tutunma yüzdesi (farklı C miktarlarında).....	72
Şekil 8.26. Grafitin yapısı.....	73
Şekil 8.27. AA/C kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda pH'nın etkisi (0.5g C, pH=1,5; 2,5; 3,5; 4,5; 5,5, derişim=10 ppm).....	74
Şekil 8.28. AA/ C kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda pH'nın etkisinin tutunma yüzdesi (0.5g C, derişim=10 ppm).....	74
Şekil 8.29. Selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranında (a) tampon ve (b) Tartrazinin temas açısı.....	75
Şekil 8.30. AA/C kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda derişimin etkisi (0.5 g C, pH=1,5).....	77
Şekil 8.31. Selüloz destek tabakasının SEM görüntüsü.....	79
Şekil 8.32. AA ile kaplanmış selüloz destek tabakasının SEM görüntüsü (20/80 mL % 0,75 (m/v) AA).....	79

Şekil	Sayfa
Şekil 8.33. Sellüloz destek tabakalı AA kaplanmış membranların alt ve üst yüzey SEM görüntüleri.....	80
Şekil 8.34. Sellüloz destek tabakalı AA kaplanmış membranlarının kesit SEM görüntüleri (a)X200 (b)X500.....	81
Şekil 8.35. Sellüloz destek tabakalı AA/C ve AA/Al ₂ O ₃ membranlarının SEM görüntüleri.....	82
Şekil 8.36. Sellüloz destek tabakalı AA/Al ₂ O ₃ membranlarının kesit SEM görüntüleri (a)X100 (b)X500.....	83
Şekil 8.37. Sellüloz destek tabakalı AA/C membranlarının kesit SEM görüntüleri (a)X500 (b)X1000.....	84
Şekil 8.38. AA, AA/C ve AA/Al ₂ O ₃ membranlarından Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda tutunma yüzdeleri.....	85

SİMGELER VE KISALTMALAR

Bu çalışmada kullanılmış simgeler ve kısaltmalar, açıklamaları ile birlikte aşağıda sunulmuştur.

Simgeler

ΔC	Değişim farkı
ΔE	Elektriksel potansiyel farkı
ΔP	Basınç farkı
ΔT	Sıcaklık farkı
A	Alan
C_b	Besleme çözeltisinin derişimi
C_f	Filtrat çözeltisinin derişimi
J	Akı
Q	Filtrasyondan geçen madde miktarı
R	Giderme verimi yüzdesi
t	Zaman

Kısaltmalar

Açıklamalar

AA	Aljinik Asit
AB	Avrupa Birliği
ADI	Kabul Edilebilir Günlük Alım Miktarını
Al₂O₃	Aluminyum Oksit
C	Grafit
DNA	Deoksiribo Nükleik Asit
EU	Avrupa Birliği
FDA	Amerika Gıda ve İlaç Yönetimi
OKB	Obsesif Kompulsif Bozukluk
SCF	Bilimsel Gıda Komitesi

Kısaltmalar**ÇAF****D****DD****ED****GS****MF****MR****NF****PV****RO****UF****Açıklamalar**

Çapraz Akışlı Filtrasyon

Diyaliz

Donnan Diyalizi

Elektrodiyaliz

Gaz Ayırma

Mikrofiltrasyon

Membran Reaktör

Nanofiltrasyon

Pervaporasyon

Ters Osmoz

Ultrafiltrasyon

1. GİRİŞ

Boyalar tekstil, gıda, boya ve başka birçok endüstride yaygın olarak kullanılmaktadır. Gıda endüstrisinde ise kullanılan ve gıda boyalar olarak adlandırılan boyalar lezzeti arttırmak amacıyla iştah uyarıcı olarak kullanılan önemli bir gıda katkısı olarak tanımlanabilir. Bu amaçla sıklıkla sentetik gıda boyaları kullanılmaktadır ve doğal renklerle karşılaştırıldıklarında sentetik gıda boyalarının ayırtedici önemli birkaç özelliği vardır; düşük maliyetli, ışığa, oksijene ve pH değişikliklerine karşı dirençlidirler ve yüksek renk kararlılığına sahiptirler [1]. Azo aromatik grup içeren sentetik boyalar, ilave bir işleme gerek duymadan gıdaları kolaylıkla renklendirebilir ve kararlılıkları nedeniyle gıda katkı maddeleri olarak yaygın olarak kullanılmaktadır. Ancak, bu renklendiricilerin aşırı kullanımı gıda güvenliği sorunlarını artırabilir (örneğin, bazı hastalıklara yol açabilir). Bu nedenle gıdalarda bu boyaların miktarını düzenlemek, tespit ve kontrol etmek amacıyla etkili analiz yöntemleri geliştirilmektedir [2].

Endüstriyel ve tekstil alanında kullanılan boyalar ise üretim süreçlerinde üretilen atık su ve kullanılmayan boyalar içeren kirliliklere yol açar. Boya içeren atık suyun çevreye atılması sonucunda hem hayvan hem de bitki organizmalarının yaşamsal işlevleri olumsuz yönde etkilenebilir. Bu olumsuz yönler örnek olarak alerjik reaksiyonları, mutasyon ve kanserojen etkiler gösterilebilir [3].

Özellikle boya içeren atık suların arıtılması ve temizlenmesi işlemlerinde adsorpsiyon [4-9], fotokatalik [10, 11], elektrokimyasal [12], biyolojik arıtma [13] gibi prosesler kullanılmaktadır. Ancak gün geçtikçe yenilenen ve ileri arıtım sistemleri olarak ele alınan membran proseslerinin kullanımı bu proseslere alternatif olarak önem kazanmıştır.

Gelişmiş ülkelerde kamu sağlığının önemli olması nedeniyle membran prosesleri tercih edilmektedir [3]. Bu proseslerin öne çıkan üstünlükleri, oda sıcaklığında, kimyasal ilavesi olmadan, nispeten düşük enerji kullanımı, kolay ve iyi düzenlenmiş proses süreçleriyle çalışmasıdır. Bu proseslerin çoğunda basınç, elektriksel potansiyel, sıcaklık ve derişim gradiyentleri (ΔP , ΔE , ΔT ve ΔC) sürücü kuvvet olarak kullanılır [14].

Günümüzde katı membranların kullanımı yaygınlaşmaya başlamış olmakla birlikte seyrekde olsa bazı endüstrilerde sıvı membranlar da kullanılmaktadır [15]. Bu çalışmada

ise apraz akışlı filtrasyon yöntemi ve katı membran olarak da selüloz destek tabakalı aljinik asit ve selüloz destek tabakalı AA/Al₂O₃ ve AA/C kompozit membranlar kullanılmıştır.

Mikrofiltrasyon ve ultrafiltrasyon membranları kullanılarak basın sürücü kuvvetiyle alışan apraz akışlı filtrasyon yöntemi hücre ayırmada [16], boyaların, ağır metallerin, tuzların ve iyonların uzaklaştırılmasında [17-21], atık suların safsızlıklarının giderilmesinde [22-25], meyve sularının berraklaştırılmasında [26] kullanılmaktadır.

apraz akışlı filtrasyon yöntemi ile reaktif siyah 5 [18, 27], kongo kırmızısı [18, 28], metilen mavisi [18, 29, 30], krom siyah T [18], doğrudan kırmızı 80 [31, 30], asit turuncu 74 [30] vb. boyaların sulu özeltilerden uzaklaştırılmasına alışılmış bu amaçla poliakrilonitril (PAN) destekli GO / COF (Grafen oksit/kovalent organik yapı) [18], poliviniliden florür (PVDF) -Ni [28], nano-TiO₂ [30], alümina [31], polietersülfon (PES) [29], selüloz asetat-poliüretan [32] membranlar kullanılmıştır. Bu alışmada, Tartrazinin sulu özeltilerden uzaklaştırılması amacıyla selüloz destek tabakalı aljinik asit (AA) ve selüloz destek tabakalı aljinik asit/ aliminyum oksit (AA/Al₂O₃) ve AA/grafit (AA/C) kompozit membranlar hazırlanmış ve apraz akışlı filtrasyon yöntemi kullanılmıştır. Proses için Tartrazinin sulu özeltilerden uzaklaştırılmasına membran kalınlığının, Al₂O₃ ve grafit (C) miktarının, Tartrazin derişiminin ve pH nın etkileri alışılmıştır. Sulu özeltilerden Tartrazinin uzaklaştırılması için tutunma yüzdesini artırmak amacıyla kitosan kompleksleştirici polimer olarak düşünülerek, kitosan derişiminin ayırma ve akı üzerindeki etkisi incelenmiştir.

2. BOYALAR

2.1. Boyaların Tanımı ve Kullanım Alanları

Boya - bir şeyin rengini eklemek veya değiştirmek için kullanılan bir maddedir. Boyalar sıvı, toz , jel veya macun halinde olabilir.

Boyalar genel bir sınıflandırma ile iki temel gruba ayrılır:

- Doğal boyalar
- Sentetik boyalar

Doğal boyalar mikrobiyal, bitkisel, hayvansal ve mineral kaynaklardan elde edilen renk maddeleridir. Doğal olarak bulunmayan ve kimyasal sentez yoluyla elde edilen renklendiriciler ise sentetik boyalardır. Günümüzde sentetik boyalar daha çok kullanılır. Bunun nedeni sentetik boyaların ucuz maliyetli ve doğal gıda boyalarına kıyasla daha yüksek renk verme özelliğine sahip olmasıdır. Bunlara ilaveten de doğal boyalar sıcaklıktan, pH değişiminden ve ışıktan daha çok etkilenirler [33].

Bu iki genel grup dışında boyalar fiziksel ve kimyasal yapı ve özellikleri dikkate alınarak aşağıdaki şekilde oldukça geniş bir sınıflandırmaya tabi tutulabilirler:

- Bazik Boyalar (katyonik)
- Asidik Boyalar (anyonik)
- Direkt (esaslı) Boyalar
- Dispers Boyalar
- Sülfür Boyaları
- Pigment Boyalar
- Mordan Boyalar
- KDV Boyaları
- Reaktif Boyalar
- Makromoleküler Boyalar
- Metalize Boyalar
- Naftol Boyalar
- Premetalize Boyalar
- Jel Boyama

- Geliştirilmiş Boyalar
- Azo Boyalar
- Anilin Boyaları
- Antrakinon Boyalar [34].

Gıda boyaları ise, hem ticari gıda üretiminde hem de ev yemeklerinde kullanılan ağırlıklı olarak sentetik boyalardır. Renklendirme kapasitesi yüksek olan bu tür maddeler, boya, tekstil, baskı mürekkepleri, farmasötik, gıda, kozmetik, plastik, fotoğraf ve kağıt sanayileri dahil olmak üzere tüketici ürünlerinin üretiminde yaygın olarak kullanılmaktadır [35].

3. GIDA BOYALARI

Gıdalara renklendiricilerin eklenmesinin, MÖ 1500 yıllarında Mısır'da meydana geldiği düşünülmektedir [36]. Gıda boyaları - gıdayı ilgi çekici olması için kullanılan renklendirici maddelerdir. Bu boyaların kullanılmasının esas amacı:

- ✓ Havadan, aşırı sıcaklardan, hava değişiminden, oluşacak nemden ve depolandırma işlemlerinden kaynaklana bilecek renk kayıplarını engellemek,
- ✓ Teknolojik açıdan ürün için renk standartı oluşturmak,
- ✓ Gıdaya dikkat çekici özellik kazandırmak,
- ✓ Lezzet kalitesini arttırmak,
- ✓ Renksiz olan bir gıdaya renk vermek,
- ✓ Düşük kaliteli gıdaları dikkat çekici hale getirmek.

Gıda boyaları 3 gruba ayrılır:

1. Doğal
2. Yarısentetik
3. Sentetik

3.1. Gıda Boyaların Adlandırılması

Avrupa Birliğinde (AB) bütün renk katkıları Bilimsel Gıda Komitesi (Scientific Committee on Food-SCF) tarafından değerlendirilir ve onaylanır. SCF gıda renk katkısının değerlendirilmesinde Kabul Edilebilir Günlük Alım Miktarını (Acceptable Daily Intake-ADI) tahsis eder [37].

Avrupa Birliğinde gıda katkı maddelerine "E" numarası (EU - Avrupa Birliği) verilerek adlandırılır. E kodları ve anlamları aşağıdaki gibi ifade edilebilir (Çizelge 3.1).

Çizelge 3.1. E numaralandırılması ile adlandırma [38]

E numarası	Adlandırma
E100-E199	Renklendiriciler
E200-E299	Koruyucu Maddeler
E300-E399	Antioksidanlar, Asitlik Düzenleyiciler
E400-E499	Kıvam Arttırıcılar, Dengeleyiciler, Emülgatörler
E500 – E599	Asitlik Düzenleyiciler, Topaklanma Önleyici Maddeler
E600 – E699	Lezzet Arttırıcılar
E700 – E799	Antibiyotikler
E900 – E999	Parlatıcılar, Gazlar ve Tatlandırıcılar
E1000 – E1599	Ek Katkı Maddeler

Çizelge 3.2. de E100-E181 arasında kodlanmış gıda boyaları, renkleri ve sınırlanmaları verilmiştir. Çizelgeden de görüldüğü gibi bir çok ülkede bu boyaların kullanımı sınırlandırılmıştır.

Çizelge 3.2. Gıda boyalarının E kodu ve adı [39]

E kodu	Adı	Açıklama
E100	Kurkumin	Kurkuma (turmerik) bitkisinin köklerinden elde edilir.
E101	Riboflavin	Sebzeler, yumurta, süt, karaciğerde bulunur. Ticari olarak mayalardan hazırlanır.
E102	Tartrazin	Sarı renk vermek için kullanılan bir boyadır. Norveç ve Avusturya’da yasaklandı.
E104	Kinolin Sarısı	Sarı ve portakal rengi vermek için kullanılır. Avustralya, Amerika ve Norveç’te yasaklandı.
E107	Sarı 7G	Sarı boyadır. Avustralya ve Amerika’da yasaklandı.
E110	Gün Batımı Sarısı FCF, Turuncu, Sarı	Sentetik sarı boyadır. Norveç’te yasaklandı.

Çizelge 3.2. (devam) Gıda boyalarının E kodu ve adı [39]

E120	Karmin	Kırmızı renk maddeleridir ve <i>Coccus</i> adı verilen böceğin dışısından elde edilmektedir.
E122	Azorubin	Kömür katranı türevidir. İsveç, Amerika, Avusturya ve Norveç'te yasaklandı.
E123	Amarant	Sentetik kırmızı gıda renklendiricisidir. Avusturya, Amerika, Rusya, Norveç ve diğer bazı ülkelerde yasaklandı.
E124	Ponso 4R, Koşineal kırmızı	Sentetik kırmızı gıda renklendiricisidir. Amerika ve Norveç'te yasaklandı.
E127	Eritrosin	Kırmızı renkli sentetik iyodin içeren boyadır. Avustralya, Amerika ve Norveç'te yasaklandı.
E128	Kırmızı 2G	Kırmızı gıda renklendiricisidir. Pek çok ülkede yasaktır.
E129	Allurakırmızı AC	Kırmızı gıda renklendiricisidir. Danimarka, Belçika, Fransa, Almanya, İsviçre, İsveç, Avusturya ve Norveç'te yasaklandı.
E131	Patent Mavi V	Sentetik mavi boyadır. Avustralya, Amerika ve Norveç'te yasaklandı.
E132	Indigotin, Indigokarmin	Kömür katranı türevidir. Norveç'te yasaklandı.
E133	Parlak mavi FCF	Belçika, Fransa, Almanya, İsviçre, İsveç, Avusturya ve Norveç'te yasaklandı.
E140	Klorofil	Bitkilerde bulunan yeşil renk veren pigmenttir.
E141	Klorofil bakır kompleksi	Bütün bitkilerde bulunan doğal yeşil renklendiricidir.
E142	Yeşil S	Kömür katranı türevidir. İsveç, Amerika ve Norveç'te yasaklandı.
E150	Karamel	Şekerden yapılır. Çocuklara tavsiye edilmez.
E151	Parlak Siyah BN, Siyah PN	Parlak siyah sentetik boyadır. Danimarka, Belçika, Fransa, Almanya, İsviçre, İsveç, Avusturya, Avustralya, Amerika ve Norveç'te yasaklandı.
E153	Bitkisel Karbon	Sebzelerin yanmasıyla üretilir.

Çizelge 3.2. (devam) Gıda boyalarının E kodu ve adı [39]

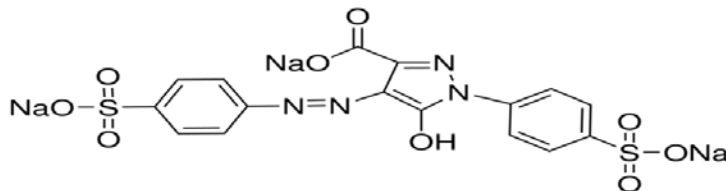
E155	Kahverengi HT (Çikolata)	Kömür katranıdır. Danimarka, Belçika, Fransa, Almanya, İsviçre, İsveç, Avusturya, Amerika ve Norveç'te yasaklandı.
E160(a)	Karoten, alfa-beta-, gamma-	Ticari olarak havuçtan üretilir.
E160(b)	Annatto (Arnatto, Annato), bixin, norbixin	Bixaorellana ağacından üretilir.
E160(c)	Paprika ekstrakt, Kapsanthin, Kapsorubin	Biberden elde edilir ve gıdalarda oldukça sık kullanılmaktadır.
E160(d)	Likopen	Domatesten üretilir.
E160(e)	Beta-apo-8'-Karotenal (C 30)	Birçok bitkide bulunur.
E160(f)	Etil ester of beta-apo-8'-karotenik asid (C 30)	Birçok bitkide bulunur.
E161	Lutein, Kantaksantin	Yeşil yaprakta bulunur.
E162	Betanin	Pancardan elde edilir.
E163	Antosiyaninler	Pembeden mora kadar değişen renkleri veren bitkisel renklendiricilerdir.
E170	Kalsiyum Karbonat	Kireç taşı olarak bilinir. Eski kayaçlar ve deniz kabuklarında bulunur.
E171	Titanium dioksi	İnorganik doğal bir renklendiricidir.

Çizelge 3.2. (devam) Gıda boyalarının E kodu ve adı [39]

E172	Demir oksit ve hidroksit	Doğal mineraldir.
E173	Aluminium	Doğal metaldir. Gümüş gri renklidir.
E174	Gümüş	Doğal metaldir. Sadece yüzey kaplamada nadiren kullanılır.
E175	Altın	Doğal metaldir. Sadece yüzey kaplamada nadiren kullanılır.
E180	Litolrubin BK	Alüminyum ve kalsiyum iyonları içerir.
E181	Tannik asit	Doğal yapılarda kompleks yapıda bulunur.

3.2. Tartrazin (E102)

Tartrazin - pirazol halkası içeren monoazo yapıda, sertifikalı, sentetik bir boya maddesidir [40]. İlk olarak Alman Kimyager J. H. Ziegler tarafından 1884 yılında kömür katranından izole edilerek tanımlanmıştır [41].



Ticari adı: E102 veya FD&C Yellow 5

Kimyasal adı: Trisodyum 5-hidroksi-1-(4- sülfanato-fenil)-4-(4-sulfanatofenilazo)-H-prizol-3-karboksilat (sodyum tuzu)

Formül: $C_{16}H_9N_4Na_3O_9S_2$

Mol kütlesi: 534,3 g/mol

Kaynama noktası: 870 °C (1598 °F)

Erime Sıcaklığı: 300 °C (572°F)

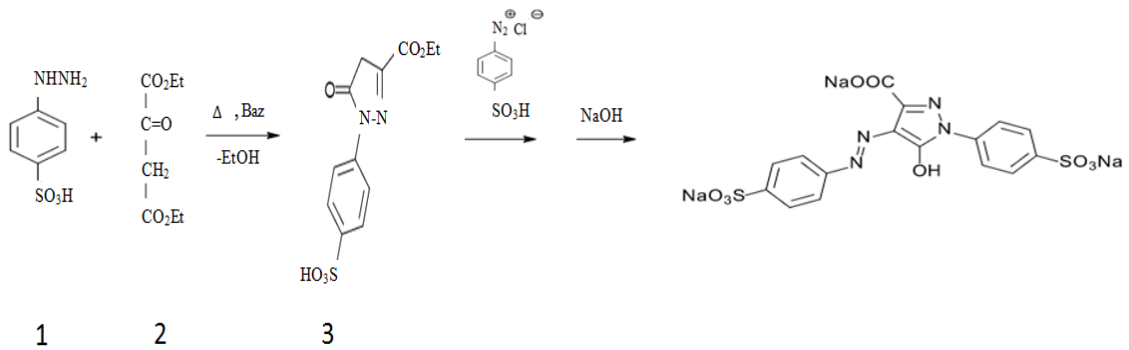
Fiziksel ve Kimyasal Özellikleri: Tartrazin bir azo boyası olduğundan $-N=N-$ grubu içerir [42]. Turuncu-sarı renkte ve toz halinde bir anyonik boyadır ve azo boyaları içinde sıklıkla tercih edilen bir boya olan Tartrazin suda yüksek çözünürlüğe sahiptir, çözündüğünde altın sarısı renkte çözeltiler oluşturur.



Şekil 3.1. Tartrazin toz hali ve sulu çözeltisi

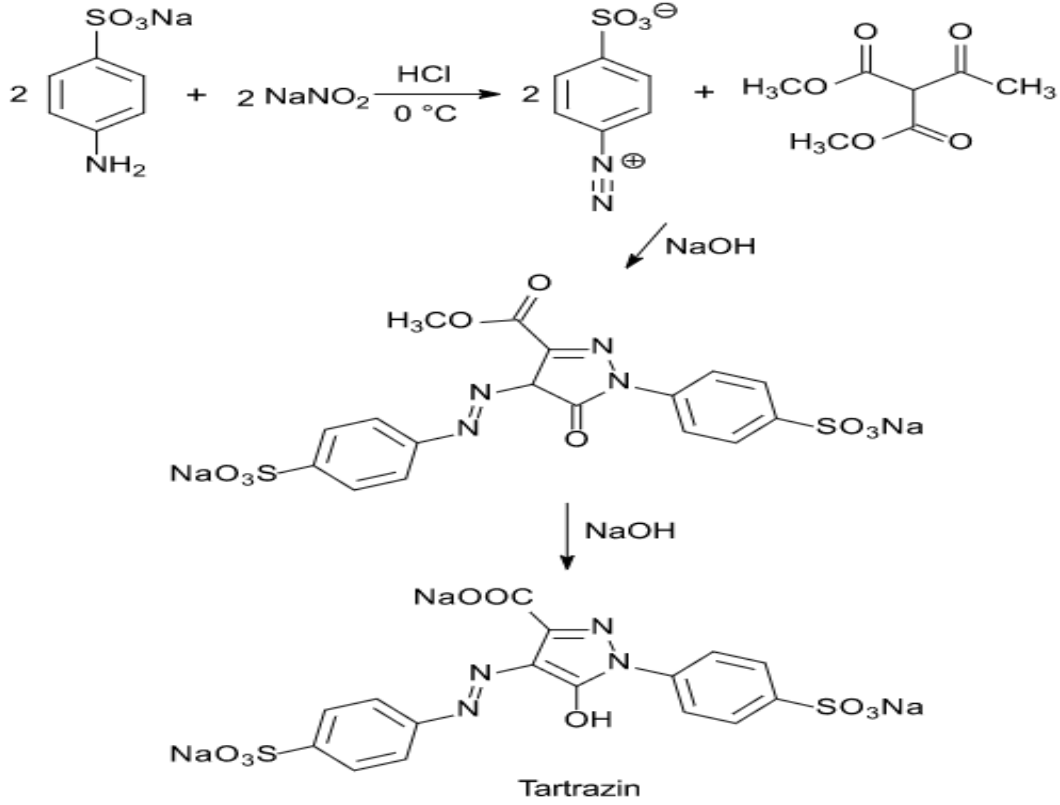
Sentezi: Tartrazin aşağıdaki tepkimelerle sentezlenebilir:

1. Tartrazin, fenilhidrazin-p-sülfonik asidin (1) oksaloasetik ester ile (2) kondenzasyonu sonucu sentezlenir. Tepkime ürünü (3) diazot içeren sülfanilik asit ile birleştirildikten sonra oluşan ester, sodyum hidroksit ile hidroliz edilir ve Tartrazin elde edilir [43].



Şekil 3.2. Tartrazin tepkime reaksiyonu

2. Petrolün yan ürünü olan 4-amino benzen sülfonik asitin ve sodyum nitritin tepkimesi sonucunda alınan Tartrazin saflaştırılarak sodyum tuzu olarak elde edilir .



Şekil 3.3. Tartrazinin tepkime reaksiyonu

Kullanım alanları: Azo boyaları, gıda ve tekstil endüstrisinde kullanılan tüm boyaların yaklaşık % 60 - % 70 ini oluşturur. Bu kadar popüler olmalarının nedeni azo boyalarının üretilmelerinin ucuz ve çoğu doğal gıda boyalarından daha kararlı olmalarıdır. Tartrazin gıdaya sarı ve başka renklendiricilerle kullanıldığında yeşil renk tonları verir. Yaygın gıda ürünleri olarak şekerleme, alkolsüz içecekler, enerji içecekleri, pudingler, aromalı mısır cipsi, kahvaltılık tahıllar, kek karışımları, hamur işleri, krema, çorbalar, soslar, toz içecek karışımları, spor içecekleri, sakız ve birçok hazır gıdalarda kullanılmaktadır. Sabun, kozmetik, şampuan, nemlendiriciler, oje, boya kalemleri, baskı mürekkepleri, tıbbi kapsüller, ilaçlar ve vitaminler gibi gıda dışı ürünlerde de bulunmaktadır [41].

Sağlığa ve doğaya etkisi: Gıda ile birlikte vücudumuza aldığımız Tartrazinin bir kısmı bağırsak mikroflorası tarafından parçalanır ve geri kalan kısmı parçalanmadan vücuttan atılır. İnsan sağlığı açısından zararlı görülmekle birlikte günlük kullanımının belli sınırları geçmemesi gerekir. Günlük kabul edilebilir tüketim miktarı vücut ağırlığı üzerinden Amerika Gıda ve İlaç Yönetimi (FDA tarafından) 5 -7,5 mg/kg/gün olarak belirlenmiştir. Bu sınırların aşılması halinde özellikle deri döküntüleri ve astım krizi, kurdeşen, aspirin

duyarlılığı, hiperaktivite, kromozom hasarı, anksiyete, migren, OKB (obsesif kompulsif bozukluk), uyku bozuklukları/uykusuzluk, bulanık görme, egzama ve diğer klinik depresyonlar, hiperaktivite, kalıcı DNA hasarı, kalp çarpıntısı, rinit, genel all-over zayıflık, sıcak basması, tiroid kanserieozinofili (beyaz kan hücrelerinin belirli biçimlerde bir artış), tiroid hormonu gibi rahatsızlıklara yol açabilen bir gıda boyasıdır. Bu etkilerinden dolayı Norveç ve Avustralya başta olmak üzere birkaç ülkede kullanımı yasaklanmıştır. Tartrazin sadece gıda ve yiyecek yoluyla değil, bu malzemelerin ve tekstil sanayinin atıkları nedeniyle çevre kirliliği yoluyla canlılara ve doğaya zarar vermektedir [40, 42, 44-47]. Bu nedenle doğaya atılan sulu çözeltilerden veya atık sulardan Tartrazinin temizlenmesi önemlidir. Bu konuda elektrokimyasal [12, 48], adsorpsiyon [4-7, 49, 50], fotokatalitik bozunma [10, 51-57], filtrasyon [58] vb. yöntemlerle çalışmalar yapılmaktadır. Gıda teknolojisinde ve tekstil endüstrisinde boyaların kullanılması sonrasında oluşan atık sular doğadaki su rezervlerine karışmaktadır. Günümüzde de önemli problem olan su rezervlerinin azalması boyaların atık sulardan ayrılmasını ön plana çıkartmıştır. Bu nedenle sunulan çalışmada çapraz akışlı filtrasyon yöntemi ile sulu çözeltilerden Tartrazinin ayrılması planlanmıştır.

4. MEMBRAN VE MEMBRAN PROSESLERİ

4.1. Membranların Tanımı

Membranlar iki fazı birbirinden ayıran yarı geçirgen ve seçici davranan bariyerlerdir. Membranlar sahip oldukları birçok üstünlüklerinin yanısıra olumsuz yönleri de sahiptir. Kullanılacak yere ve ayrılması arzu edilen türlere göre, yani özünde kullanım amacına yönelik olarak hazırlanabilir olmaları, özel bir teknolojiye ihtiyaç duymamaları, oda sıcaklığında dahi yüksek performans göstermeleri ve bütün bunlara ilaveten en önemli özellikleri olarak sorunu odağında çözmeleri nedeniyle çağın malzemeleri olarak anılır. Tüm bu üstünlüklerinin yanısıra özellikle de polarizasyon nedeniyle akı düşüşleri ve aktarım performanslarında zamanla görülen düşüş olumsuz yönlerine örnek olarak gösterilebilir.

4.1.1. Membranların sınıflandırılması

Membranlar değişik özelliklerine göre (fiziksel yapıları, aktarım özellikleri, morfolojileri, gözenekleri, hazırlanma yöntemi gibi) sınıflandırılırlar. Membranlar nötr veya yüklü, homojen veya heterojen yapıya sahip çeşitli kalınlıklarda olabildikleri gibi, doğal ya da sentetik türlerde bulunabilir. Membranlar:

- ✓ Doğal (canlı ve cansız tür membranlar)
- ✓ Sentetik (kimyasal yapıları dikkate alınarak organik ya da inorganik tür membranlar) olarak iki genel sınıfa ayrılır.

Sentetik membranlar hazırlanma metodları dikkate alınarak aşağıdaki gibi sınıflandırılırlar.

- ✓ Mikrogözenekli Membranlar
 - Sinterlenmiş
 - Gerilmiş
 - Kapiler gözenekli
 - Faz dönüşüm membranları
- ✓ Homojen Membranlar
 - Homojen polimer

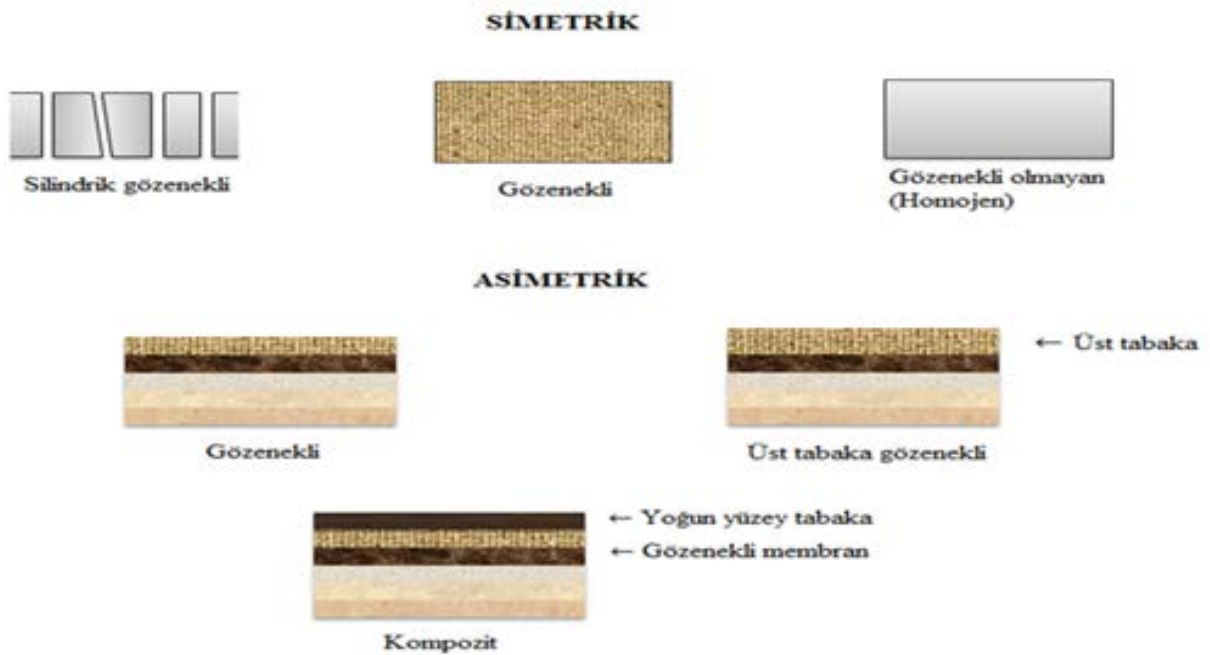
- Homojen cam ve metal
- Sıvı
- İyon değıştirici membranlar
- ✓ Asimetrik Membranlar
- ✓ Elektriksel Yüklü Membranlar

Aktarım özelliklerine göre ise:

- ✓ Gözenekli
- ✓ Gözeneksiz
- ✓ Taşıyıcı sıvı içeren membranlar olarak gruplandırılırlar.

Morfolojileri dikkate alındığında, membranlar iki gruba ayrılırlar.

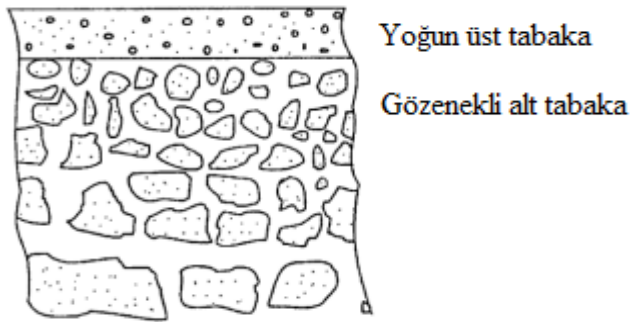
- ✓ Simetrik - Gözenekli
- Silindirik gözenekli
- Homojen (gözeneksiz)
- ✓ Asimetrik -Gözenekli
- Üst tabaka gözenekli
- Kompozit [14]



Şekil 4.1. Membranların şematik gösterilişı

Kompozit membranları

Kompozit membranlar, gözenekli alt tabaka ile desteklenmiş ince yoğun üst tabakadan oluşan ve asimetrik yapıda olan membranlardır [59]. Bu membranların tabakaları farklı polimerik maddelerden oluşur. Kompozit membranların avantajı her tabakanın kimyasal ve termal dayanıklılığa, geçirgenlik oranına, seçiciliğe cevap verecek en uygun membran prosesinin seçimi için birbirinden bağımsız olarak optimize edilebilmesidir. Bu membranlar daldırma kaplama, spreycaplama (püskürterek), spin (dönme) kaplama, arayüzey polimerizasyonu, doğal durumunda - yerinde kaplama, plazma polimerizasyon ve aşılama teknikleri ile hazırlanır. Kompozit membranlar, ters osmoz, nanofiltrasyon, pervaporasyon ve membran adsorpsiyonu dahil olmak üzere ileri moleküler ayırma işlemlerinde yaygın olarak kullanılır.



Şekil 4.2. Kompozit membranın şematik gösterimi

4.1.2. Membranların üretiminde kullanılan malzemeler ve hazırlama yöntemleri

Membranların üretiminde hazırlama süresi, maliyet, kimyasal, fiziksel dayanım, yüksek geçirgenlik, seçicilik ve mekanik kuvvet gibi parametreler dikkate alınması önemlidir.

Üretimde kullanılan malzemelere göre membranlar aşağıdaki gibi sınıflandırılır:

- Organik : Sentetik ve modifiye doğal ürünler
- İnorganik : İnorganik malzemeler
- Kompozit : Organik-organik, organik-inorganik, inorganik-inorganik karışımlar kullanılır [14].

Membranın özelliklerine göre membran hazırlama yöntemlerinin en önemlileri aşağıdakilerdir.

- Sinterleme
- Kaplama
- Germe
- Aşındırma
- Faz dönüşümü

Sinterleme - Organik ya da inorganik materyallerden gözenekli membran hazırlanması, toz halindeki polimerin erime sıcaklığının hemen altındaki bir sıcaklığa getirilerek basınç altında sıkıştırılması yoluyla, tozların birbirlerine kaynaması ve bu sırada eriyen toz taneciklerin arasında kalan boşluklar vasıtasıyla gözenek oluşturulması işlemidir. Sinterleme sırasında iç boşluklar küçülür veya yok olur. Sinterleme malzemenin özelliklerinde birçok değişime neden olur.

Kaplama - Yoğun, gözeneksiz membranlardan geçiş difüzyonla gerçekleştiği zaman düşük akı gözlenir. Akının artırılması için membranın kalınlığının azaltılması gerekir ve bunun için hazırlanan membranın kaplama yoluyla fiziksel direncinin artırılması ve aktarımının kontrol altına alınması sağlanır.

Germe - Çekme - Kristal yada yarı kristal polimerik malzemelerden hazırlanan filmler mekanik kuvvet uygulanarak gerilir ve germe yönüne dik yönde çekilmesi ile gözenekli membranlar elde edilir. Sinterleme yöntemine göre daha yüksek homojen gözenekliliye ulaşılır.

Aşındırma - Düzgün boyutlu gözenekli membranlar hazırlanmasında kullanılır. Membranlar yüksek enerjiye maruz bırakılır, ışınlama sonucunda polimer filmleri zayıflatılır ve daha sonra bu film aşındırma banyosuna daldırılır, zayıflatılan noktalar aşındırılarak silindirik gözenekli membranlar elde edilir.

Faz dönüşümü - Kontrollü bir şekilde sıvı polimer çözeltilerinden katı polimerlere dönüşüm yoluyla membranlar elde edilir. Bu yöntemle gözenekli veya gözeneksiz membranlar hazırlanır. Membranları hazırlamak için polimerler uygun çözücülerde çözülür, çözelti film

halinde yayılır ve katıfaza geçiş işlemi çözücü buharlaştırılarak sağlanır. Faz dönüşümü yöntemi aşağıdaki tekniklerle yapılabilir:

- Çözücü buharlaştırılması ile çöktürme
- Termal çöktürme
- Buhar fazdan çöktürme
- Kontrollü buharlaştırma ile çöktürme
- Daldırarak çöktürme.

Çözücü buharlaştırması ile çöktürme - Çözücünde çözünen polimer uygun bir desteğin üzerine dökülür. Daha sonra çözücü buharlaştırılır.

Termal çöktürme - Çözülen polimerde faz oluşumunu sağlamak için çözücü soğutulur. Sıcaklığın düşmesiyle çözelti kararsız hale gelir ve sonuçta gözenekli membranlar oluşur.

Buhar fazdan çöktürme- Dökümü yapılan polimer çözeltisi üzerine çöktürücünün buhar fazdan diffüzyonu ile rastgele dağılmış gözenekli membran elde edilir.

Kontrollü buharlaştırma ile çöktürme -Polimer kolayca buharlaşabilen çözücünde çözülür. Buharlaşma zamanı çözelti daha yüksek çöktürücü içerisine kayar ve polimer çöker, üst tabakasının buharlaşması sonucunda membran oluşur.

Daldırarak çöktürme - Polimer çözeltisi çöktürücü banyoya daldırılır. Çözücü kaybı ve çöktürücünün diffüzyonu ile polimer çöker ve membran elde edilir.

4.1.3. Membranların uygulanma alanları

Membranlar - atık suların arıtımında ve yeniden kullanımında, tuzlu su arıtımında, metal giderimi ve geri kazanımında, gaz ayırımında, boya, organik madde, mikrokirletici vb. türlerin gideriminde, biyoenerji, biyogaz üretiminde, yiyecek ve içecek sektöründe, petrol endüstrisinde, dehidrojenasyonda, hemodiyaliz, kan oksijenatörleri, plazma ayırımı, kontrollü ilaç taşınımı vb. gibi medikal uygulamalarda, bakteri/virüs ayırmada, protein ve enzim ayırımı ve geri kazanılmasında kullanılmaktadır [60].

4.2. Membran Prosesleri

Membran prosesleri daha az ham madde ve enerji kullanarak kimya, petrokimya, çevre, eczacılık, ilaç, gıda, boya, kağıt, tekstil ve elektronik endüstrisi gibi alanlarda kullanılmaktadır. Ters Osmoz-RO, Elektrodializ-ED, Ultrafiltrasyon-UF, Mikrofiltrasyon-MF, Nanofiltrasyon-NF, Pervaporasyon-PV, Membran Reaktör-MR, Membran Destilasyonu-MD, Yakıt Hücresi- FC, Gaz Ayırma-GS, Diyaliz-D, Donnan Diyalizi-DD yaygın olarak kullanılan membran prosesleridir.

4.2.1. Yeşil proses olarak membran prosesleri

Membran prosesleri genel olarak gelişmiş özelliklere sahip malzemelerin temin edilmesinin yanı sıra, daha temiz çözücülerle işlem den geçirme, çoklu basamak reaksiyonlarından kaçınma ve enerji gereksinimlerini azaltma açısından yeşil olmayı hedeflemektedir;

- düşük enerji gereksinimleri,
- oda koşullarında dahi gösterdikleri yüksek performans,
- hedefe yönelik planlanan prosesler olmaları nedeniyle yüksek verim yüzdesi,
- elde edilen gerek ürün gerekse de atık adı verilen kısmın her ikisinin de işlevsel kullanımı,
- tekrarlı kullanım özellikleri nedeniyle yeni sentez malzeme gereksinimlerinin düşük olması,
- sorunu oluştuğu noktada gidermesi, gibi bir çok yönleriyle dikkat çekmektedirler ve bu özelliklerinden ötürü Membran Prosesleri YEŞİL PROSESLER olarak anılmaktadır [61].

4.3. Membranla Ayırma İşlemleri

Membran prosesinin amacı -membran üzerine itici bir gücün etkisi altında gönderilen karışımın membranı geçebilen ve geçemeyen olmak üzere iki faza ayrılmasıdır. Membran proseslerde sürücü kuvvetler: derişim farkı, basınç farkı, sıcaklık farkı ve elektriksel potansiyel farkı. Membranlarla ayırma işlemleri sürücü kuvvetlere göre aşağıdaki gibi sınıflandırılabilir.

Basınç farkına göre;

- ✓ Mikrofiltrasyon
- ✓ Ultrafiltrasyon
- ✓ Nanofiltrasyon
- ✓ Ters osmoz

Derişim farkına göre;

- ✓ Pervaporasyon
- ✓ Gaz ayırma
- ✓ Diyaliz
- ✓ Buhar geçişı

Sıcaklık farkına göre;

- ✓ Membran destilasyonu
- ✓ Termo-osmoz

Elektriksel potansiyel farkına göre;

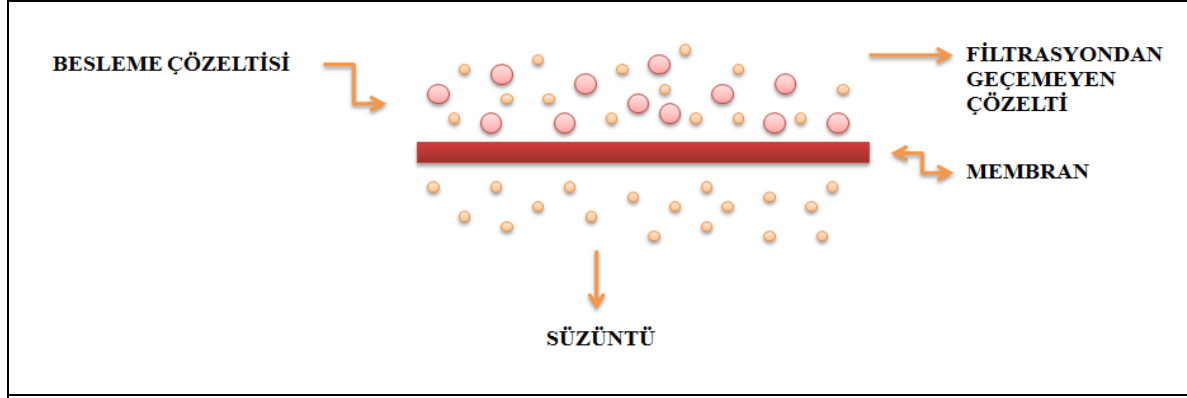
- ✓ Elektrodializ

Çizelge 4.1. Membran proseslerinin sürücü kuvvete göre sınıflandırılması

PROSES	MEMBRAN TÜRÜ	SÜRÜCÜ KUVVET	BESLENME FAZI	SÜZÜNTÜ FAZI
Mikrofiltrasyon	Simetrik	ΔP	Sıvı	Sıvı
Ultrafiltrasyon	Asimetrik- mikro gözenekli	ΔP	Sıvı	Sıvı
Ters osmos	Simetrik-mikro gözenekli	ΔP	Sıvı	Sıvı
Elektrodializ	Kasyon-Anyon değiştirici	ΔE	Sıvı	Gaz
Dializ	Simetrik-mikro gözenekli	ΔC	Sıvı	Sıvı
Gaz ayırımı	Homojen- gözeneksiz	$\Delta P, \Delta C$	Gaz	Gaz

4.3.1. Çapraz akışlı filtrasyon

Çapraz akışlı filtrasyon - ürün akışı filtre içinden daha ziyade çoğunlukla filtre yüzeyinin üstünden teğet olarak geçer. Çapraz akışlı filtrasyon basınç sürücü kuvvetiyle çalışan mikrofiltrasyon, ultrafiltrasyon veya nanofiltrasyon proseslerinde kullanılan yöntemdir. Bu filtrasyon prosesinde gözenekli membranlar kullanılır. Bu akış tipinin prensip olarak avantajı filtreyi tıkayan filtre kekinin (polarizasyon tabakası) filtrasyon süresince yıkanarak filtrenin uzun süre kullanımına olanak sağlaması ve sürekli bir proses olmasıdır.



Şekil 4.3. Çapraz akışlı filtrasyon yönteminin şematik gösterimi

Çapraz akışlı filtrasyonun birkaç avantajı vardır:

- ✓ Filtre çamuru oluşmaz
- ✓ Filtre yardımcı malzemeleri gerekmez
- ✓ Manuel işlem gerekmez
- ✓ Homojen, kontrol edilebilir ürün kalitesi
- ✓ Sürekli işleme
- ✓ Otomatik süreç
- ✓ Uzun filtre (membran) kullanım ömrü
- ✓ Hijyenik ekipman
- ✓ Yerde temizliğe uygun olması.

Çapraz akışlı filtrasyonda besleme çözeltisi, filtrelenmemiş sıvı ve süzüntü olarak iki farklı akışa ayrılır. Filtre edilmemiş sıvı sisteme geri devir edilir. Filtrasyon ilerledikçe ve membran yüzeyinde birikim arttıkça, buna bağlı olarak filtrasyon hızı azalır. Akı veya basınç limit değerlerine ulaştığında membranın temizlenmesi veya değiştirilmesi gerekir.

Membran performansı iki parametre akı ve giderme verimi ile ifade edilir. Akı birim zamanda birim alandan geçen madde miktarı olarak ifade edilir ve m^3 / m^2s veya L/m^2saat olarak gösterilir ve aşağıdaki eşitlikle hesaplanır:

$$J = \frac{Q}{A \cdot t} \quad (4.1)$$

J - akı,

Q - filtrasyondan geçen madde miktarı,

A - alan,

t - zamandır.

Giderme verimi ise membranin tutma kapasitesinin bir ölçüsüdür. İdeal membran proseslerinde yüksek akı ve yüksek giderme verimi gözlenir.

Giderme verimi yüzdesi Eşitlik 4. 2 ile hesaplanır;

$$\% R = [(C_b - C_f) / C_b] \times 100 \quad (4. 2)$$

C_b - besleme çözeltisinin derişimi,

C_f - filtrat çözeltisinin derişimidir.

Çapraz akışlı filtrasyonda aşağıdaki parametrler dikkate alınır:

- ✓ Besleme derişimi
- ✓ Akı
- ✓ Basınç
- ✓ Akış hızı
- ✓ Sıcaklık
- ✓ pH
- ✓ Membran kalınlığı
- ✓ Ön arıtma [62].

Çapraz akışlı filtrasyon yöntemi hücre ayırmada [16], boyaların, ağır metallerin, tuzların ve iyonların sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasında [29-31, 58, 32, 17-21, 27, 28], protein ve bakterilerin giderilmesinde [63], atık suların kirliliklerden arındırılmasında [22-25], meyve sularının berraklaştırılmasında [26] kullanılmaktadır. Bu yöntemle bir çok boyaların (reaktif siyah 5 [18, 27], kongo kırmızısı [18, 20, 28], metilen mavisi [29, 30, 58, 21], krom siyah T [18], asit turuncu 74 [30], doğrudan kırmızı 80 [30, 31], gün batımı sarısı [58], doğrudan mavi [32] gibi) filtrasyonu yapılmıştır.

Bu çalışmada sulu çözeltilerden Tartrazinin giderilmesi için kalite ve miktar ölçülmesi, anında temizlemeye uygun, sürekli işleme, uzun kullanma ömrü gibi üstünlüklere sahip çapraz akışlı filtrasyon yöntemi kullanılmıştır

5. YEŞİL KİMYA VE YEŞİL POLİMER

5.1. Yeşil Kimya

Sürdürülebilir ve yeşil kimya çok basit terimlerle kimya ve kimya mühendisliğinin nasıl yapılabileceğini düşünmenin farklı bir yoludur. Yeşil kimya, kimyasalların ve kimyasal işlemlerin bazen neden olabileceği problemleri çözmeye devam eden bir girişimdir. Yıllar boyunca, kimyasal ürün ve işlemlerin tasarımı, geliştirilmesi ve uygulanması düşünülürken kullanılabilecek farklı ilkeler önerilmiştir. Bu ilkeler, israfı azaltmak, enerji tasarrufu yapmak ve tehlikeli maddelerin yerini alabilmeleri için yaratıcı ve yenilikçi yollar bularak ekonomiyi, insanları ve gezegeni korumasını ve faydalanmasını sağlamaktır.

YEŞİL KİMYA - bir kavram olarak, 1990 larda ortaya çıkmıştır. Paul Anastas ve John Warner tarafından yaratıldı ve esasen hem çevresel etkileri hem de kimyasalların ve kimyasal sentezlerin olası olumsuz sağlık etkilerini azaltma yollarının bir kontrol listesi olarak anılan temel 12 ilkeyi yayınladılar [64]:

1. Atık Önleme
2. Atom Ekonomisi
3. Daha Az Tehlikeli Kimyasal Sentez
4. Daha Güvenli Kimyasallar Tasarlama
5. Daha Güvenli Çözücüler ve Yardımcılar
6. Enerji Verimliliği için Tasarım
7. Yenilenebilir Hammadde Kullanımı
8. Türevleri Azaltma
9. Kataliz
10. Bozulma için Tasarım
11. Gerçek Zamanlı Kirliliği Önleme
12. Kaza Önleme için Daha Güvenli Kimya

5.2. Yeşil Polimer

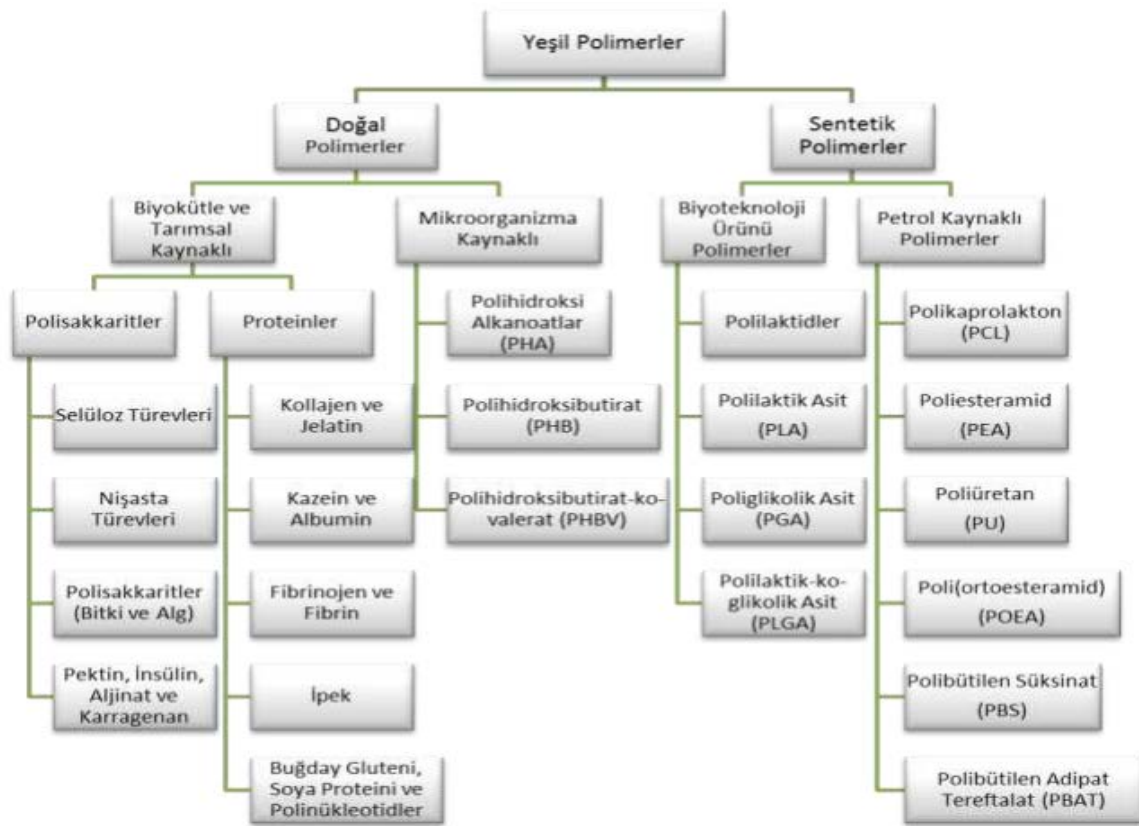
Yeşil polimerler veya bir başka deyişle biyopolimerler, son zamanlarda birçok araştırmacı tarafından ilgi odağı olmuş ve bu alanda birçok çalışma yapılmıştır.

- ✓ Armentano ve arkadaşları [65] biyopolimerleri; “Doğal ortamda, mikroorganizmalar tarafından gerçekleştirilen enzimatik reaksiyon ile karbondioksit ve su gibi basit moleküllere ayrıştırılabilen biyobozunur polimerler ” olarak tanımlamıştır.
- ✓ Singh[66] çalışmasında biyopolimerleri; “Yeşil bitkiler, hayvanlar, bakteriler ve mantarlar tarafından, yaşam döngüsü esnasında doğal yolla üretilmekte olan polimerler” olarak betimlemiştir.
- ✓ Rao ve arkadaşları [67] ise bu tür polimerleri tanımlarken; “Tüm organizmaların büyüme döngüsü esnasında doğal yolla meydana gelen polimerler” şeklinde bir ifade kullanmışlardır. Tüm bu bilgiler ışığında biyopolimerler, biyokütle tarafından doğal süreç içerisinde meydana getirilen, doğal ortamda bulunan mikroorganizmalar tarafından parçalandığında, çevresel kirliliğe sebebiyet vermeyecek şekilde bileşenlerine ayrılan ve bu nedenle yeşil materyaller kavramı dâhilinde kategorize edilen polimerler olarak açıklanabilir [68].

5.2.1. Yeşil polimer türleri

Yeşil polimerler diğer adıyla biyopolimerler tekstil, gıda, kozmetik, inşaat, otomotiv, beyaz eşya ve medikal sektörlerinde yaygın şekilde kullanılmaktadır. Bu polimer çeşitlerine nişasta, selüloz, kitin/kitosan, kollajen, lignin, poliizopren vb. polimerleri göstermek olur. Çalışmamızda Tartrazinin sulu çözeltilerden temizlenmesinde yeşil kimyanın da ilkeleri dikkate alınarak yeşil polimer türlerinden olan polisakkarit grupuna ait aljinik asit ve kitosan kullanılmıştır.

Çizelge 5.1. Yeşil polimerlerin türleri [68]



Aljinik asit

Aljinik Asit ya da Avrupa Birliğinin verdiği adıyla E 400, kahverengi deniz yosunlarından (*Phaeophyceae*) elde edilen ve gıda katkı maddesi olarak kullanılan doğal bir polisakkarittir. Kahverengi yosunların hücre duvarında bulunan aljinik asit ilk defa 19. yüzyılın sonlarında İskoç bilim insanları tarafından izole edilmiştir. Suda çok az çözünmesine rağmen suyu absorplama kapasitesi yüksek bir polisakkarit olan aljinik asit ticari olarak lifli ya da granüler toz yapıda kullanıma sunulmaktadır. Kokusuz, tatsız ve sarımsıbeyaz renkli aljinik asit gıda formülasyonlarına en fazla kıvam arttırıcı ve emülgatör olarak dahil edilmektedir. Gıdalarda kullanıldığı miktarları ile aljinik asitin insan sağlığı üzerine bilinen bir yan etkisi bulunmamaktadır.

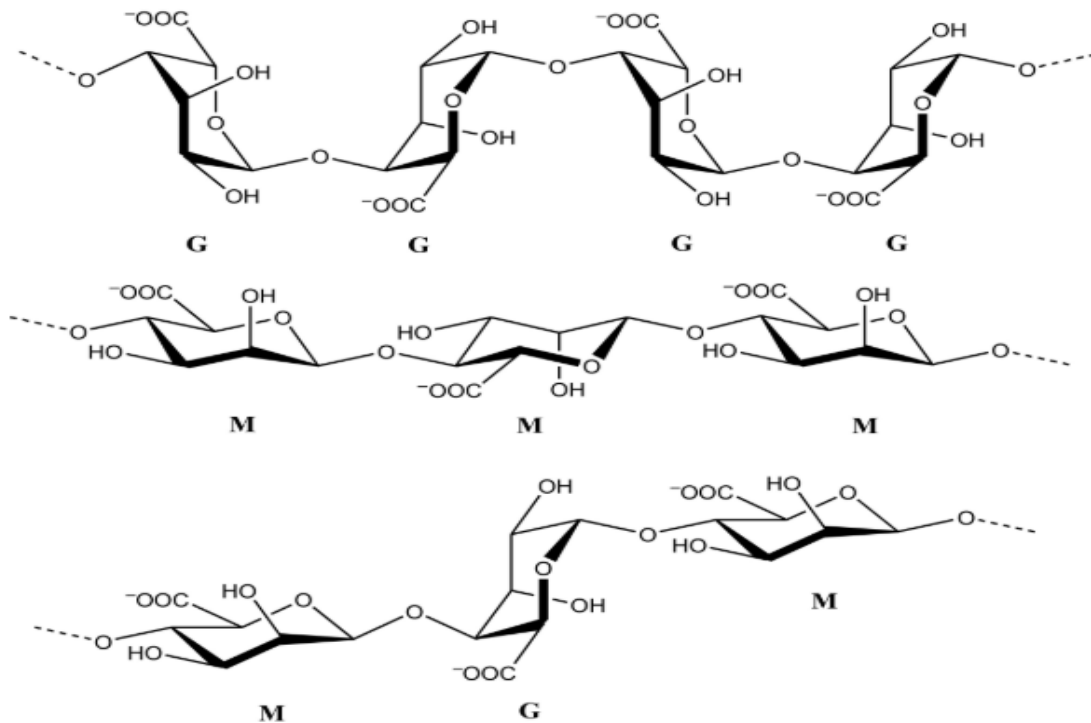
Aljinik asit esasen β (1→4) D - mannuronik ve α -(1→4) L - guluronik asit ünitelerinden oluşan doğrusal bir glikuronoglikan polimeridir. Sodyum (E 401), potasyum (E 402),

amonyum (E 403) ve kalsiyum aljinatlar (E 404), sırasıyla alginik asidin sodyum, potasyum, amonyum ve kalsiyum tuzlarıdır [69].

Sıcak suda kolayca çözünür; suda viskoz bir koloidal çözelti oluşturur; alkol, eter ve kloroformda çözünmez.



Şekil 5.1. Kahverengi deniz yosunu [70-72]



Şekil 5.2. Aljinik asit ve tuzlarında D-mannuronik (M) ve L-guluronik (G) birimlerinden oluşan bir glikuronoglikan zincirinin polimerik bloklarının yapısal formülleri

Aljinik asit membran prosesleri ile sudaki tuz iyonlarının, metallerin uzaklaştırılmasında, protein filtrasyonunda kullanılmaktadır [73-75].

Bu çalışmada Tartrazinin sulu çözeltilerden uzaklaştırılması amacıyla yeşil bir polimer olan aljinik asitten membranlar hazırlanmış, membranların fiziksel dayanımını arttırmak amacıyla selüloz destek tabakası kullanılmış ve tutunma yüzdesinin artırılması için aljinik asitten hazırlanmış selüloz destek tabakalı AA/Al₂O₃ ve AA/C kompozit membranları hazırlanmıştır.

Kitosan

Kitosan - poli β (1, 4) 2-amino-2-deoksi-D-glikoz, kitinden elde edilen bir polisakkarittir.

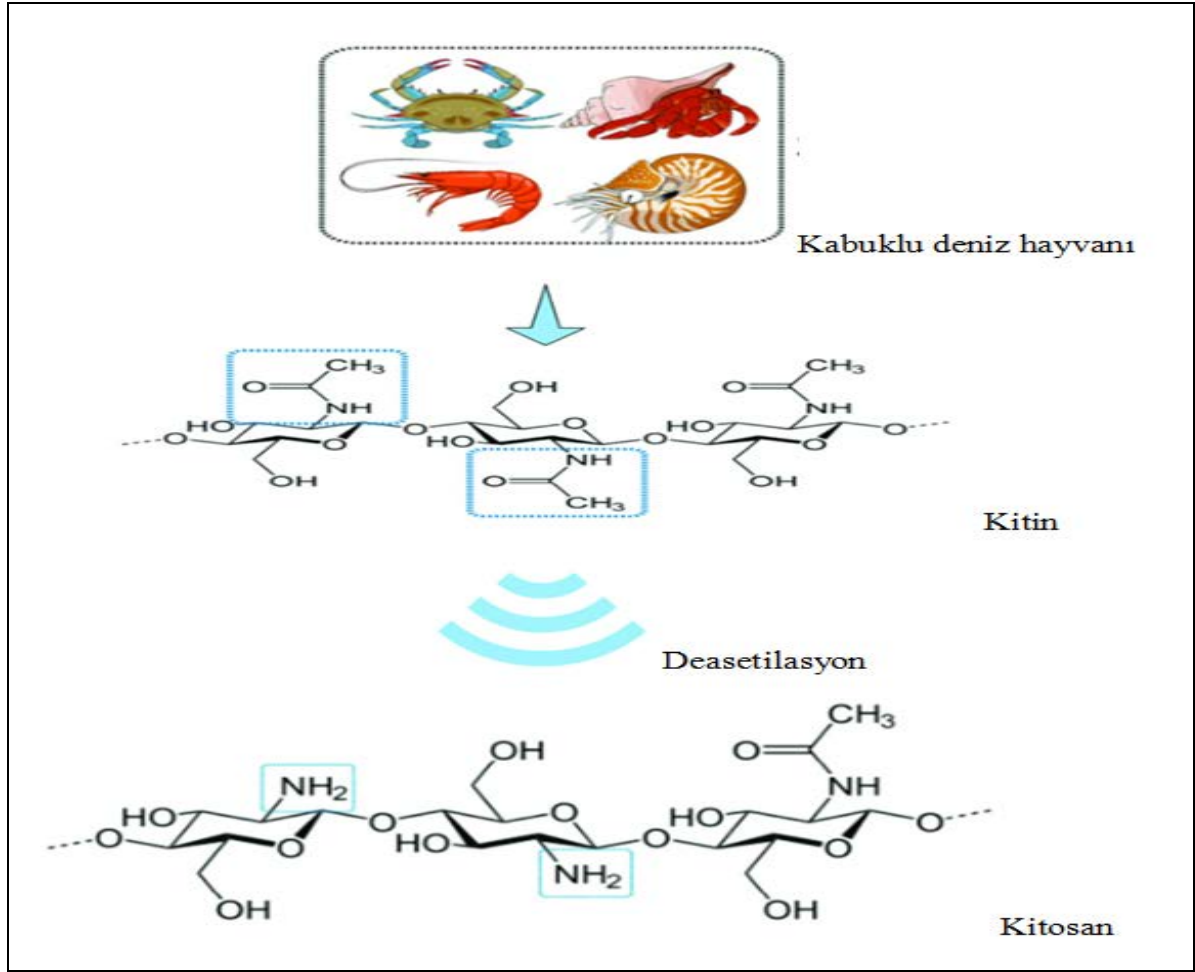
Formül : $C_8H_{15}NO_6$

Mol kütlesi : 3 200 - 2 000 000 g/mol

Kitosan, kabuklu hayvanların dış iskeletlerinde bulunur ve kitinin deasetilasyonu sonucu elde edilmektedir.

Kitosan, moleküler yapısı ve pKa (6,2-7,0) nedeniyle nötr ve yüksek pH bölgelerinde çözünmez. Bu, kitosanın sulu çözeltilerde düşük pH da protonlanabileceği anlamına gelir. Bu nedenle, kitosan çözeltilerinin hazırlanması için genellikle seyreltilmiş asetik asit çözeltileri (% 1 - % 3, v/v) ve sitrik asit (% 3 - % 4, v/v) gibi asidik çözücülere ihtiyaç vardır [76].

Kitosan biyobozunur, biyouyumludur ve biyolojik özelliklerinin yanısıra medikal alanda (doku mühendisliği, ilaç salımı ve yara iyileştirme uygulamaları vb.), gıda endüstrisinde (yenilenebilir film vb.) ve tekstil sektöründe (antibakteriyel kaplama vb.) yaygın kullanımı dolayısıyla oldukça dikkat çeken bir malzemedir [77].



Şekil 5.3. Kitinden kitosanın sentezi

Kitosan, birçok organik reaksiyon ile kolayca modifiye olabilen serbest amin gruplarını ve hidroksil gruplarını taşımasından dolayı, farklı fonksiyonel gruplu polimerlerin sentezlenmesinde oldukça büyük bir potansiyele sahiptir. Kozmetik endüstrisinde saç bakım ürünlerinde, kontakt lens yapımında, fotoğrafçılıkta, tekstilde boya bağlama özelliğinden dolayı ağartıcı olarak, kağıt endüstrisinde selüloz gibi destek materyali olarak, tıp alanında, yara ve yanıkların tedavisinde kitosandan yararlanılmaktadır [78].

Kompleksleştirici polimer olarak sudan toksik metalleri ve boyaları uzaklaştırmak için kullanılmaktadır [79-81].

Çalışmamızda kitosandan boyaların uzaklaştırılmasında tutunma yüzdesinin artırılması amacıyla Tartrazinin giderilmesinde kompleksleştirici yeşil polimer olarak kullanılmıştır.

6. SULU ÇÖZELTİLERİN ARITILMASI YÖNTEMLERİ

Atık su evrensel, tarımsal, endüstriyel, medikal ve diğer kullanılımlar sonucunda kirlenmiş veya özellikleri kısmen veya tamamen değişmiş sulardır. Bu suların tekrar kullanılması için bir sıra işleme tabi tutulması gerekir ve bu işlemlerin esas amacı kirlenmiş suları kullanılabilir temiz suya çevirmektir.

Fiziksel, kimyasal ve biyolojik prosesleri kullanarak farklı işlemler sonucunda oluşan atık suların bakteriyolojik, fiziksel, kimyasal ve ekolojik özelliklerini değiştirmeyecek hale getirmek için atık su arıtımı yöntemi kullanılmaktadır. Kirleticilerin temizlenmesi nedeniyle kullanılan yöntemler birincil, ikincil ve ileri arıtma yöntemleri olarak sınıflandırılırlar. Birincil arıtma - atık sudaki yüzen ve çökebilen katı maddelerin uzaklaştırılması işlemlerini kapsayan fiziksel arıtma yöntemlerini, ikincil arıtma -organik maddelerin gideriminde kullanılan biyolojik veya kimyasal arıtma yöntemlerini, ve ileri arıtma- ikincil arıtmada giderilmeyen kirleticilerin uzaklaştırılmasında kullanılan prosesleri içerir.

6.1. Boyaların Atık Sulardan Arıtılması

Boyama işlemi sırasında tekstil boyalarının yaklaşık % 10 ile % 25 i geri kazanılamamaktadır. Her yıl sentezlenen yaklaşık 800 000 ton sentetik boyanın % 2 ila 20 si sulu atıklar olarak doğaya atılmaktadır. Azo boyaların nerdeyse % 50 sinde sentetik boyarmadde ile farklı çevresel bileşenlere tahliye ediliyor.

Boya atıkları nedeniyle doğaya farklı kimyasal türler de atılmaktadır;

- Reaksiyona girmemiş boyalar,
- Naftalen,
- Benzidin,
- Aromatik bileşikler gibi kanserojen veya mutajenik kimyasallar [13].

Boyaların atık sulardan arıtılması için aşağıdaki yöntemler kullanılmaktadır;

1.Kimyasal yöntem

- Oksidasyon
- Ozonlama
- Elektroliz

2. Fiziksel yöntem

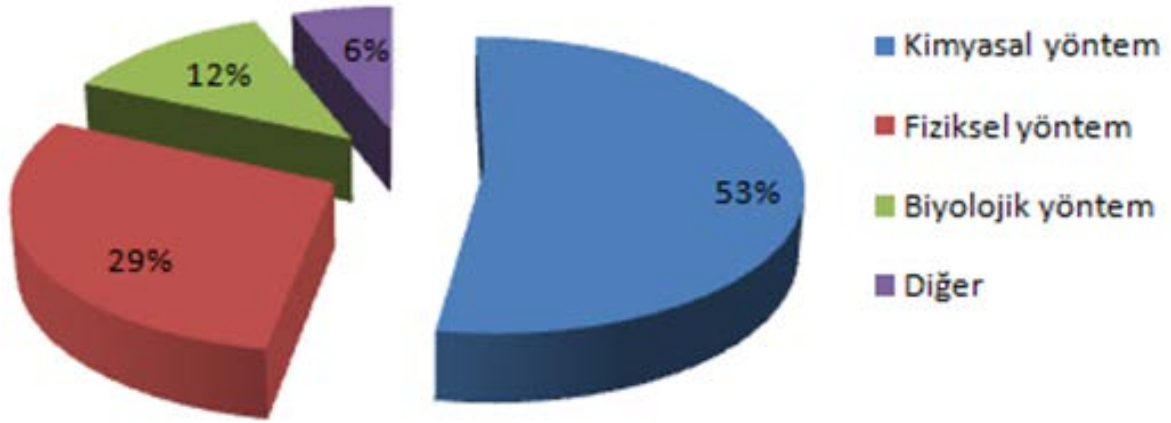
- Ters osmoz
- Süzme
- Adsorbsiyon
- Flokülasyon

3. Biyolojik yöntem

- Enzimler
- Mikroorganizmalar

4. Diğer yöntemler

- Membran prosesleri



Şekil 6.1. Boyaların arıtma yöntemleri yüzdeleri

6.2. Tartrazinin Uzaklaştırılması

Azo boyaları, gıda ve tekstil endüstrisinde kullanılan tüm boyaların yaklaşık % 60 - % 70 ini oluşturur. Bu kadar popüler olmalarının nedeni azo boyalarının üretilmelerinin ucuz ve çoğu doğal gıda boyalarından daha kararlı olmalarıdır [82].

Tartrazin sadece gıda ve yiyecek yoluyla değil, bu malzemelerin ve tekstil sanayinin atıkları nedeniyle çevre kirliliği yoluyla canlılara ve doğaya zarar vermektedir.

Tartrazinin uzaklaştırılması amacıyla,

- Membran teknolojileri,
- Basınçlı kum filtreleri,
- Aktif karbon filtreleri,
- İleri oksidasyon prosesleri (biyolojik arıtma sonrasında ozon, fenton, foto fenton, ozon/UV kullanımı),
- Adsorpsiyon-biyodegradasyon prosesleri,
- Elektrokoagülasyon
- Biyolojik arıtma (Aerobik, Anaerobik)
- Elektrokoksidasyon
- Kimyasal Oksidasyon gibi prosesler kullanılmaktadır. Tartrazinin uzaklaştırılması için bu proseslerin kullandığı çalışmalar, kullanılan malzemeler ve ayırma yüzdeleri ile birlikte Çizelge 6.1 de verilmiştir.

Çizelge 6.1. Tartrazinin uzaklaştırılması proseslerinde kullanılan malzemeler ve tutunma yüzdeleri

PROSES	MATERYAL	UZAKLAŞTIRMA YÜZDESİ	REFERANS
Fotokatalitik degradasyon	PVP-CdS nanoparçacıkları	% 85	[51]
Mikro-katı faz ekstraksiyonu	Kobalt ferrit @ SiO ₂ @ polietilenimin manyetik nanoparçacıkları(Co Fe ₂ O ₄ @ PEI)	>% 99,5	[83]
Fotodegradasyon	Silikon nanotelleri (SiNW's)	% 95,48	[52]
Adsorpsiyon	Poli-l-lisin (PLL) fonksiyonlu manyetik Fe ₃ O ₄ (GO-MWCNT) nanokompozit	≤% 92	[49]
Adsorpsiyon	Kitosan / polianilin (Cht-PANI) kompozit	≤% 97,7	[4]
Adsorpsiyon	Testere tozu(saw dust)	% 97	[5]
Fotodegradasyon	TiO ₂	%50	[53]
Fotolitik bozunma	Cıva buhar lambasından ve doğal bir güneş ışığından UV ışınları	%100	[54]
Foto Fenton oksidasyon	Bizmut-oksihalid ve metal katkılı bizmut oksihalid katalizörleri (BiOCl, Cu-BiOCl ve Fe-BiOCl)	%91	[55]

Çizelge 6.1. (devam) Tartrazinin uzaklaştırılması proseslerinde kullanılan malzemeler ve tutunma yüzdeleri

Fotokatalitik bozunma	Poliüretan (vinilidene florür trifloroetilen) (P (VDF-TrFE)) membranına sabitlenmiş TiO ₂ (P25) nanoparçacıkları	%78	[10]
Elektrokimyasal	Nanokompozit (ZnO / sisteik asit)	Meşrubatlarda geri kazanım >% 95	[48]
Fotokataliz	Solar, UV lamba ve hibrit reaktörler (TiO ₂ / UV)	% 99,% 30 ve % 99	[56]
Foto-katalitik bozunma	Çıplak metil imogolitin yanı sıra, Fe katkılı nanotüpler (nominal bileşim (OH) ₃ Al ₂ · _x Fe _x O ₃ SiCH ₃)	% 90	[57]
Elektrokimyasal	Demir-karbon granül (Fe-C)	> % 80	[12]
Adsorpsiyon	Aktif karbon ve Moringa oleifera tohumlarına dayanan adsorbanlar	> % 95	[6]
Adsorpsiyon	Kırmızı çamur	% 84,72	[7]
Adsorpsiyon	Kitosan	% 80	[50]

Çizelgeden de görüldüğü üzere Tartrazinin sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasında ağırlıklı olarak, membran prosesleri haricinde, fiziksel, kimyasal ve biyolojik arıtma yöntemleri gibi proseslerden faydalanılmıştır.

6.2.1. Membran prosesleri ile boyaların uzaklaştırılması

Bir anyonik boya olan Tartrazinin membranlı proseslerle sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasına yönelik çalışmalar sınırlı sayıda olmakla birlikte, anyonik boyaların membranlı proseslerle uzaklaştırılmasına yönelik çalışmalar Çizelge 6. 2 de özetlenmektedir.

Çizelge 6.2. Membran prosesleriyle anyonik boyaların ayrılmasında kullanılan membranlar ve tutunma yüzdeleri

PROSES	MATERYAL	UZAKLAŞTIRILAN BOYA	GERİ KAZANIM YÜZDESİ	REFERANS
Vakumlu zar distilasyonu (VMD) ile entegre edilmiş ultrafiltrasyon (MEUF)	Sodyum dodesil sülfat ile aktif karbon yüklü polietersülfon (PES) ultrafiltrasyon membranı	Metilen mavisi	% 99,8	[29]
Donma döküm (freeze-casting process)	Alümina ultra filtrasyon membranları	Kırmızı 80	% 99,6	[31]
Ultrafiltrasyon	Bentonit destek üzerinde biriken nano-TiO ₂ ultrafiltrasyon membranı	Kırmızı 80, Asitportakal 74 ve Metilen mavisi	% 98,% 85 ve % 94	[30]

Çizelge 6.2. (devam) Membran prosesleriyle anyonik boyaların ayrılmasında kullanılan membranlar ve tutunma yüzdeleri

Nanofiltrasyon	Vinil monomer olarak sodyum p-stiren sülfonat (NaSS)	Kırmızı 80	>% 97	[84]
Nanofiltrasyon	Grafen oksit-fosfor ile kitosan (GO-PCS) nanofiltrasyon membranı	Siyah 38	%99,7	[85]
Nanofiltrasyon	Poli (piperazin amid) - tannik asit (PA)/(TA) membranı	Alizarin sarısı R, Günbatımı sarı, Kongo kırmızısı	% 97,5; %99,9 ve % 99,9	[86]
Filtrasyon	Naylon polietilenimin (PEI) mikrofiltrasyon membranı	Günbatımı sarı	% 95	[58]
Mikrofiltrasyon	Selüloz asetat-poliüretan membranı	Mavi	~ %100	[32]

Tartrazinin sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasında membranların kullanıldığı çalışmalar ise:

Aoudjit ve arkadaşları [10] poli (vinilidenflorür-trifloroetilen) (P(VDF-TrFE)) nanokompozit membranına sabitlenmiş TiO_2 (P25) nanopartiküller kullanarak tartrazini pH 4.3 de %78 verimle ayırmışlar. Yapılan bu çalışmada fotokatalitik bozunma yöntemini kullanmışlardır.

Da Rocha ve arkadaşları [87] Polimetilmetakrilat / (pirinç kabuğu külü) / polipirol) (PMMA / RHA / Ppy) kompozit membranı kullanarak, sulu çözeltilerden tartrazini pH 2 de % 90 oranında uzaklaştırmışlardır. Çalışmada adsorpsiyon yöntemini kullanmışlardır.

Sunduğumuz çalışmamızda selüloz destek tabakalı aljinik asit (AA), selüloz destek tabakalı aljinik asit/alüminyum oksit (AA/Al_2O_3) ve AA/grafit (AA/C) kompozit membranlar kullanarak çapraz akışlı filtrasyon yöntemiyle Tartrazinin sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasına çalışılmış, membran kalınlığının, pH nın, kompleksleştirici olarak kullanılan kitosan derişiminin etkileri incelenmiş, kompozit malzeme olarak kullanılan alüminyum oksit (Al_2O_3) ve grafitin (C) Tartrazinin sulu çözeltilerden uzaklaştırılması üzerine etkileri araştırılmıştır. Membranların yapı analizlerini FTIR, morfolojik özellikleri SEM ile incelenmiş, yüzey özellikleri temas açısı ölçümleriyle belirlenmiştir.

7. MATERYAL VE METOD

7.1. Materyal

7.1.1. Deneylerde kullanılan aletler ve düzeneek

- Etüv (Memmert)
- Isıtıcı magnetik karıştırıcı (Magnetic Stirrer MSH-300, BIOSAN)
- pH metre (Mettler Toledo)
- UV Spektrometre (Shimadzu UV-1800)
- Çapraz akışlı filtrasyon sistemi (Millipore)
- Mikrometre (Aldrich)
- Fourier dönüşümlü kızılötesi spektroskopisi/FTIR (Thermo Scientific Nicolet İS5)
- Taramalı elektron mikroskopu/SEM (JEOL JSM-6060LV)
- Analitik terazi (2 haneli kaba terazi) (Adam ACB plus-600H)
- Hassas terazi (Precisa XB220A)
- Temas açısı cihazı (Phoenix PHx 150)

Çapraz akışlı filtrasyon (ÇAF) sistemi Şekil 7.1 de görüldüğü gibi sirkülasyon pompası, basınç ölçer ve filtre bölümünden oluşur. Besleme çözeltisi 1. kanaldan pompa yardımıyla membrana gönderilir. Filtrat, 2. ve 3. kanallardan alınırken, 4. hattan, membranı geçemeyen çözelti (retantant) elde edilir.

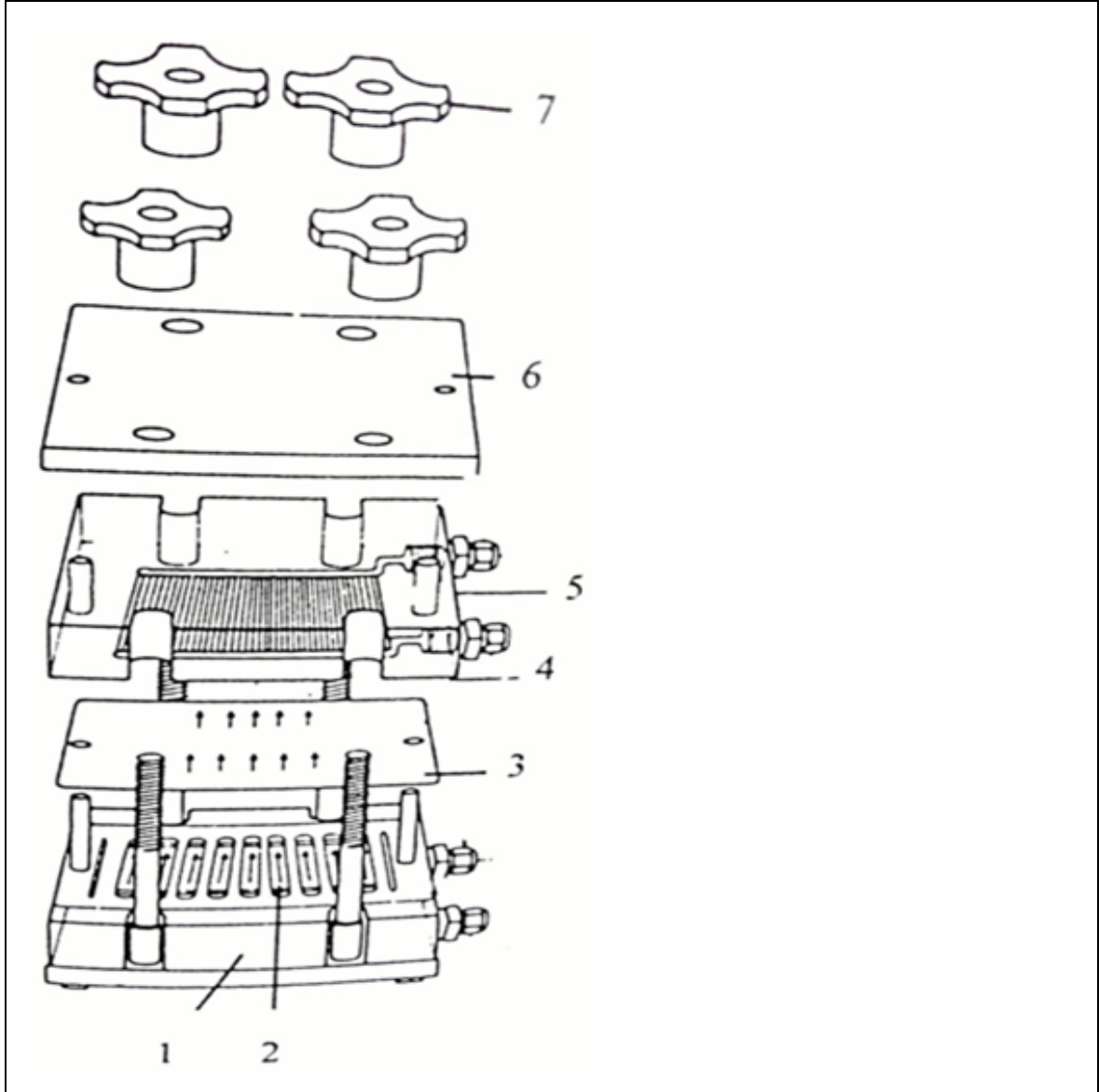
ÇAF sisteminin filtre bölümü Şekil 7.2 de gösterilmiştir. 120 cm² filtre alanına sahip filtre haznesine membran yerleştirilir. Membrandan sıvı kaçıını önlemek için membranın altına ve üstünü destek tabakalar konulur ve bu tabakalar vidalarla sabitlenir.

ÇAF sisteminin akış şeması Şekil 7.3 te gösterilmiştir. Besleme çözeltisi pompa yardımı ile filtrasyon hücresine iletilmiştir. Filtrasyon hücresinde filtrat ve geçemeyen çözelti ayrılmıştır. Belirli miktarda alınan filtrat numunelerinin analizi UV ile yapılmıştır



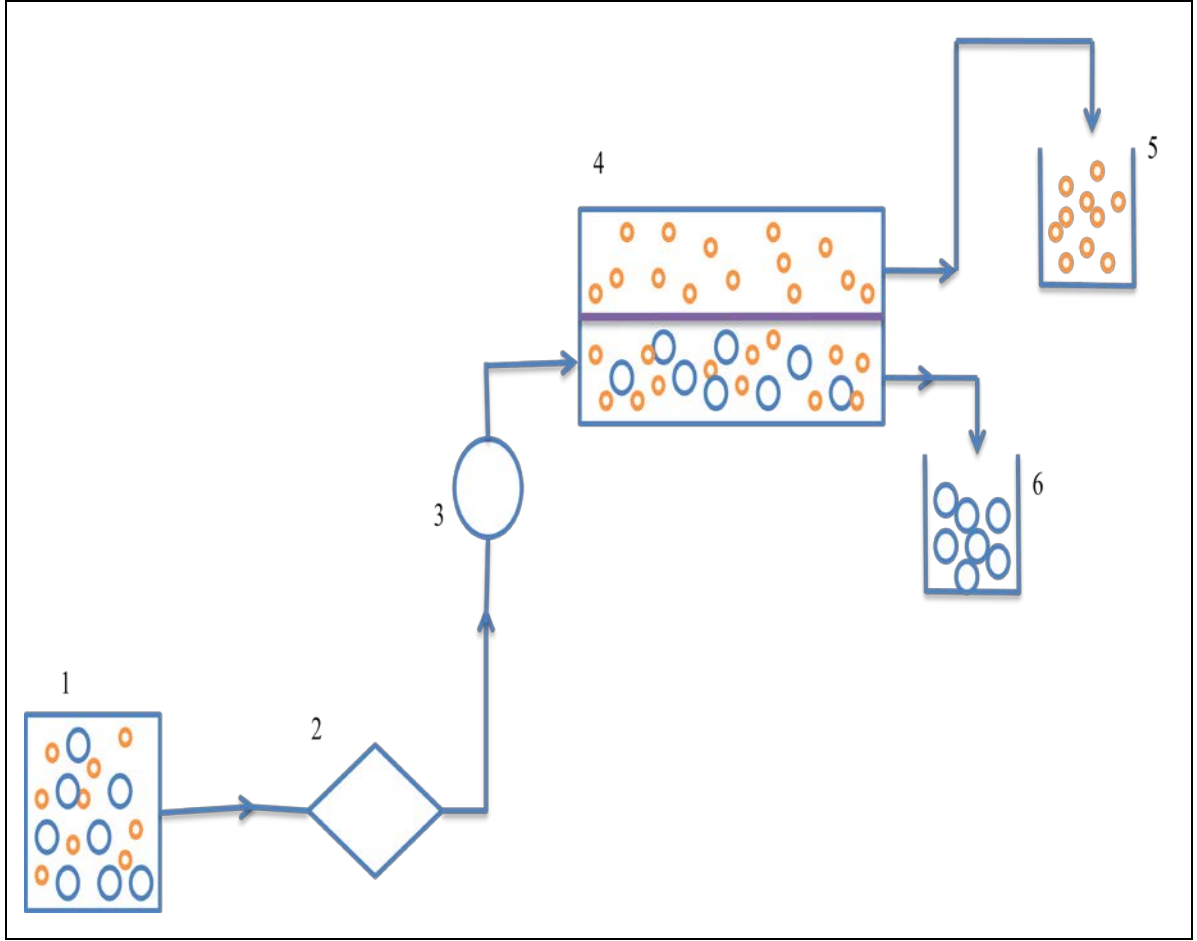
Şekil 7.1. Çapraz akışlı filtrasyon sistemi

1. Besleme çözeltisi giriş borusu
2. Filtrat çıkış borusu
3. Filtrat çıkış borusu
4. Geçemeyen çözelti (retantant) borusu
5. Basınç ölçer
6. Pompa



Şekil 7.2. ÇAF sisteminin filtre bölümü

1. Alt tabaka
2. Alt destek tabakası
3. Membran
4. Üst destek tabakası
5. Üst tabaka
6. Üst ağırlık tabakası
7. Tabakaları sıkıştırma vidaları



Şekil 7.3. ÇAF sisteminin akım şeması (1. Besleme kabı, 2. Pompa, 3. Basınç ölçer, 4. Filtrasyon hücresi, 5. Filtrat kabı, 6. Geçmeyen çözelti kabı)

7.1.2. Deneylerde kullanılan maddeler

- Aljinik Asit

Sigma firmasına ait AA (sodyum tuzu) membranların hazırlanmasında kullanılmıştır.

Kitosan

Acros organics firmasına ait kitosan ($(C_6H_{11}O_4)_n$ mol kütleli 100 000-300 000 g/mol) kompleksleştirici polimer olarak kullanılmıştır.

- Selüloz

Filtrak firmasına ait selüloz membran hazırlamada destek tabaka olarak kullanılmıştır.

- $CaCl_2$

Merck firmasına ait olan $CaCl_2$ ($M=110,99$ g/mol) çapraz bağlayıcı hazırlanmasında kullanılmıştır.

- HCl

Carlo erba firmasına ait HCl (%37, $d(20^0/4^0)=1,186\pm0,003$ g/mL) çapraz bağlayıcı hazırlanmasında kullanılmıştır.

- Grafit

Acros organics firmasına ait grafit (C, $M=12,01$ g/mol) membranların hazırlanmasında katkı maddesi olarak kullanılmıştır.

- Alüminyum oksit

Fisher laboratory chemical firmasına ait alüminyum oksit (Al_2O_3 , $M=101,96$ g/mol) membranların hazırlanmasında katkı maddesi olarak kullanılmıştır.

- Tartrazin

Herco firmasına ait olan Tartrazin (E102, $M=534,3$ g/mol) gıda boyası içeren sulu çözelti hazırlanmasında kullanılmıştır.

- Sodyum asetat

Merck firmasına ait sodyum asetat (CH_3COONa , $M=82,03 \text{ g/mol}$) tampon çözeltilerin hazırlanmasında kullanılmıştır.

- Asetik asit

Merck firmasına ait olan asetik asit (CH_3COOH , $M=60,05 \text{ g/mol}$, $1,05 \text{ g/cm}^3$ (20°C)) tampon çözelti hazırlamada kullanılmıştır.

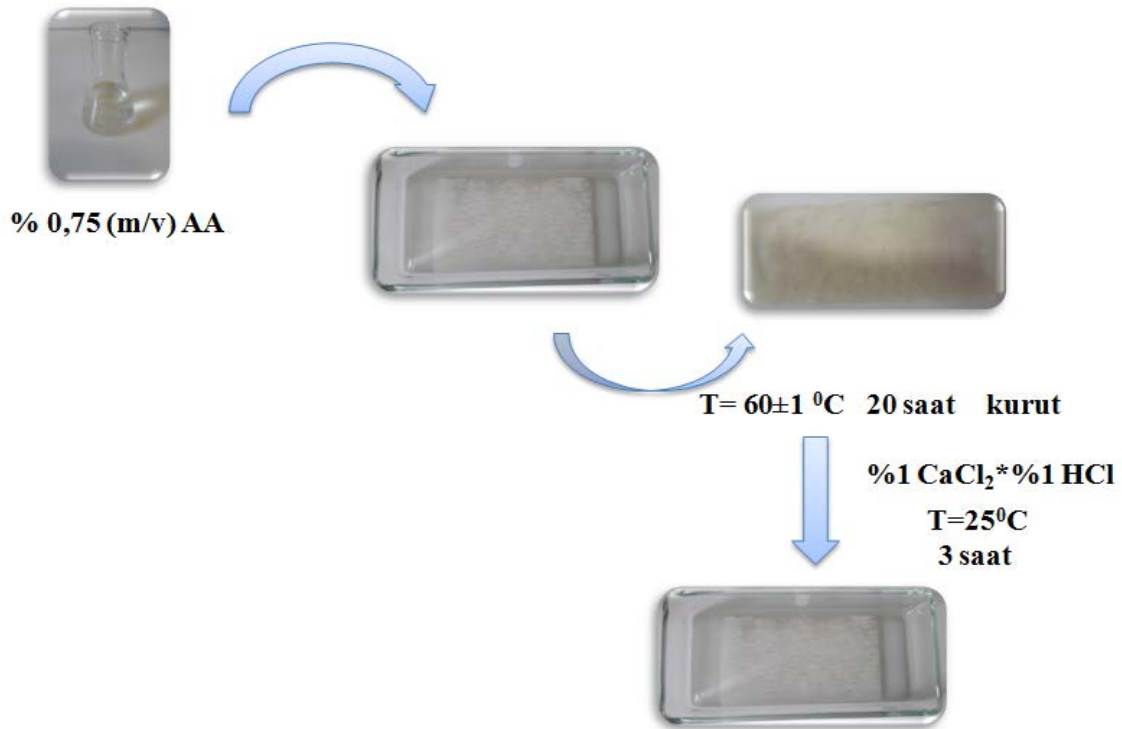
7.2. Yöntem

7.2.1. Membranların hazırlanması

Çalışmamızda kullanılan membranlar faz dönüşümü yöntemiyle hazırlanmıştır.

Aljinik asit membranının hazırlanması

Selüloz destek tabakalı AA membranların hazırlanması amacıyla AA in sudaki % 0,75 (m/v) lik çözeltisi hazırlanmıştır. Hazırlanan polimer çözeltisinden 100 mL alınarak döküm kabına (9cm x 16cm) dökülmüş ve içerisine selüloz destek tabakası yerleştirilmiştir. Dökümü yapılan çözelti 60 ± 1 °C etüvde 20 saat süre ile kurutulmuştur. Membranların sudaki çözünürlüklerinin önlenmesi amacıyla %1 (m/v) CaCl_2 ve %1 (v/v) HCl içeren çözelti, çapraz bağlayıcı çözelti olarak kullanılmıştır. Kurutulan membranlara belli hacimlerdeki %1 (m/v) CaCl_2 * %1 (v/v) HCl çözeltisi ilave edilmiş, oda sıcaklığında 3 saat bekletilmiştir (Şekil 7. 4).

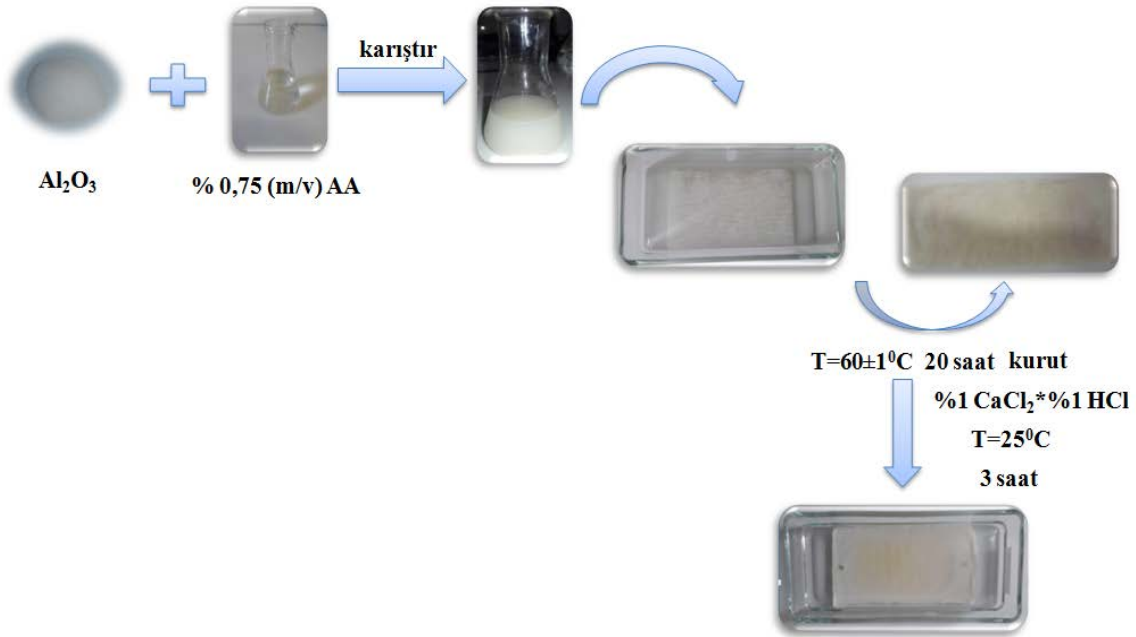


Şekil 7.4. Selüloz destek tabakalı AA membranının hazırlanmasının şematik gösterimi

Aljinik asit/ Al_2O_3 kompozit membranının hazırlanması

Aljinik asit/ Al_2O_3 kompozit membranlar ($\text{AA}/\text{Al}_2\text{O}_3$) iki aşamada hazırlanmıştır:

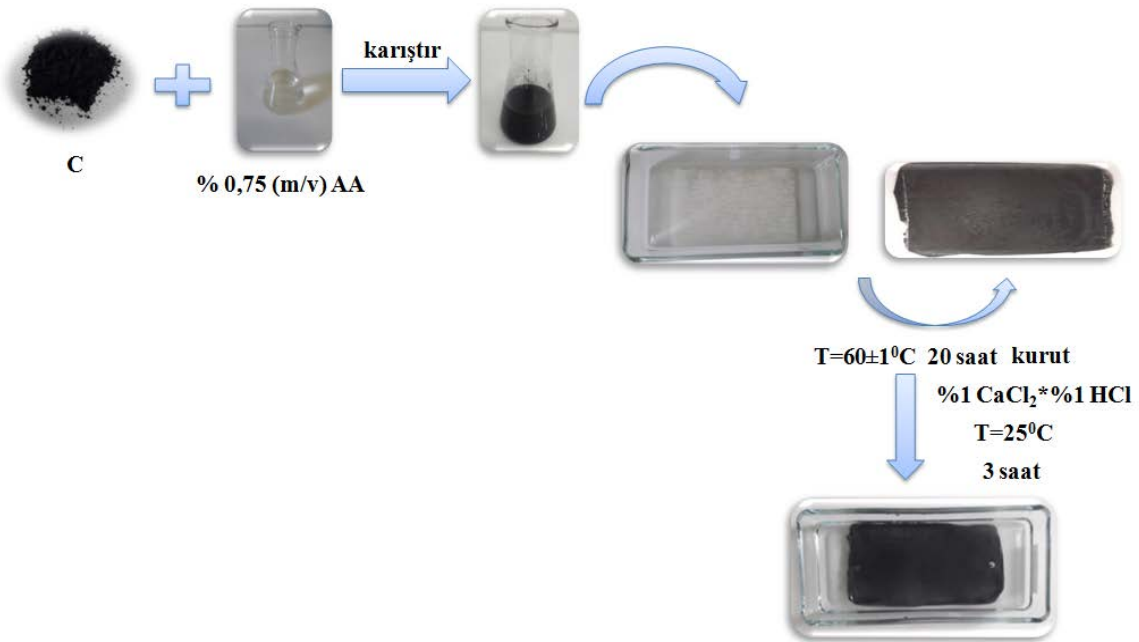
Birinci aşamada 20 mL %0,75 (m/v) AA çözeltisi selüloz destek tabakası üzerine dökülerek, 3 saat süre ile $60\pm 1^\circ\text{C}$ sıcaklıkta kurutulmuştur. İkinci aşamada, kurutulan AA/selüloz destek tabakası üzerine ilave etmek amacıyla 80 mL %0,75 (m/v) AA e belirli miktarda (1, 3, 5 ve 7 g) Al_2O_3 ilave edilmiş ve magnetik karıştırıcı ile homojen çözelti hazırlanmıştır; hazırlanan homojen çözelti, AA/selüloz destek tabakası üzerine ilave edilerek $60\pm 1^\circ\text{C}$ de 20 saat süre ile etüvde kurutulmuş ve selüloz destek tabakalı $\text{AA}/\text{Al}_2\text{O}_3$ kompozit membran elde edilmiştir. Membranlar çapraz bağlanma işlemi için, belli hacimlerdeki %1 CaCl_2 * %1 HCl çözeltisine oda sıcaklığında 3 saat süreyle maruz bırakılmıştır. Daha sonra saf su ile yıkanarak, saf su içerisinde muhafaza edilmiştir. Selüloz destek tabakalı $\text{AA}/\text{Al}_2\text{O}_3$ kompozit membranların hazırlanması şematik olarak Şekil 7. 5 de verilmiştir.



Şekil 7.5. Selüloz destek tabakalı $\text{AA}/\text{Al}_2\text{O}_3$ kompozit membranının hazırlanmasının şematik gösterimi

Aljinik asit/C kompozit membranının hazırlanması

Selüloz destek tabakalı aljinik asit/karbon kompozit membranlar (AA/C), AA/Al₂O₃ kompozit membranlara benzer şekilde iki aşamada hazırlanmıştır. 80 mL %0,75 (m/v) AA üzerine belirli miktarlarda (0,1; 0,3; 0,5 g) C ilave edilmiş ve magnetik karıştırıcı ile homojen çözelti hazırlanmıştır. Hazırlanan bu çözelti, daha önce üzerine 20 mL %0,75 (m/v) AA çözeltisi konulup 3 saat süre ile 60±1⁰C sıcaklıkta kurutularak hazırlanan AA/selüloz destek tabakası üzerine dökülmüştür. Dökümü yapılmış olan membran etüvde 60±1⁰C 'de 20 saat kurutularak selüloz destek tabakalı AA/C membranı elde edilmiştir. Hazırlanan membranlar, çapraz bağlanma işlemi için belli hacimlerde alınan %1 CaCl₂ * %1 HCl çözeltisine oda sıcaklığında 3 saat süreyle maruz bırakılmıştır. Hazırlanan membranlar saf su ile yıkandıktan sonra, yine saf su içerisinde muhafaza edilmişlerdir. Selüloz destek tabakalı aljinik asit/karbon kompozit membranının (AA/C) hazırlanması şematik olarak Şekil 7. 6 de verilmiştir.



Şekil 7.6. Selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranının hazırlanmasının şematik gösterimi

7.2.2. Membranların CAF işlemlerinde kullanılması

Çalışmamızda E102 (Tartrazin)nin, 100 ppm lik çözeltileri hazırlanmış ve filtrasyon işlemlerinde sabit hacimde çalışmaları yürütmek amacıyla 100 mLlik besleme çözeltileri kullanılmıştır. Besleme çözeltilerinin pH değerleri farklı pH lardaki (pH=1,5; 2,5; 3,5; 4,5; 5,5) tampon çözeltileri kullanılarak kontrol edilmiştir. Beslenme çözeltileri pompa vasıtasıyla filtrasyon hücresine gönderilerek filtrasyon hücresinden geçen ve geçmeyen çözeltiler ayrılmıştır. Geçen çözelti kabındaki filtrattan belli miktarlarda alınarak analizleri 426 nm de spektrofotometrik olarak gerçekleştirilmiştir. Çalışmada sunulan sonuçlar minimum 5 tekrarlı çalışmanın ortalamasıyla elde edilmiştir. Tartrazinin kalibrasyonuna ait eğriler EK1-2 de verilmiştir.

8. SONUÇLARIN DEĞERLENDİRİLMESİ VE TARTIŞMA

Bu çalışmada selüloz destek tabakalı aljinik asit, selüloz destek tabakalı AA/Al₂O₃ ve AA/C kompozit membranları kullanılarak Tartrazinin sulu çözeltilerden uzaklaştırılması araştırılmıştır.

Deneysel çalışma, çapraz akışlı filtrasyon yöntemi kullanılarak beş aşamada gerçekleştirilmiştir.

Birinci aşamada çapraz akışlı filtrasyonda kullanılacak selüloz destek tabakalı aljinik asit membranının kalınlığı belirlenerek su akışı hesaplanmış; bu yolla çalışma için uygun aktarım hızı belirlenmiştir.

İkinci aşamada belirlenen kalınlıktaki membran ile Tartrazinin tutunma yüzdesine pH'nın etkisi araştırılarak, farklı pH'larda geçiş yapılmıştır.

Üçüncü aşamada selüloz destek tabakalı aljinik asit membranlarla Tartrazinin tutunma yüzdesine katyonik bir polimer olan kitosanın etkisi incelenmiştir. Bu amaçla Tartrazin/Kitosan kompleks oluşumu ve oranının etkileri araştırılmıştır.

Dördüncü aşamada selüloz destek tabakalı aljinik asit/alüminyum oksit kompozit membranı kullanılarak Tartrazinin sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasına alüminyum oksit ve miktarının, pH ve derişim etkileri incelenmiştir.

Beşinci ve son aşamada selüloz destek tabakalı aljinik asit/grafit kompozit membranı hazırlanmış ve tutunma yüzdesine grafit ve miktarı, pH ve derişimin etkileri araştırılmıştır.

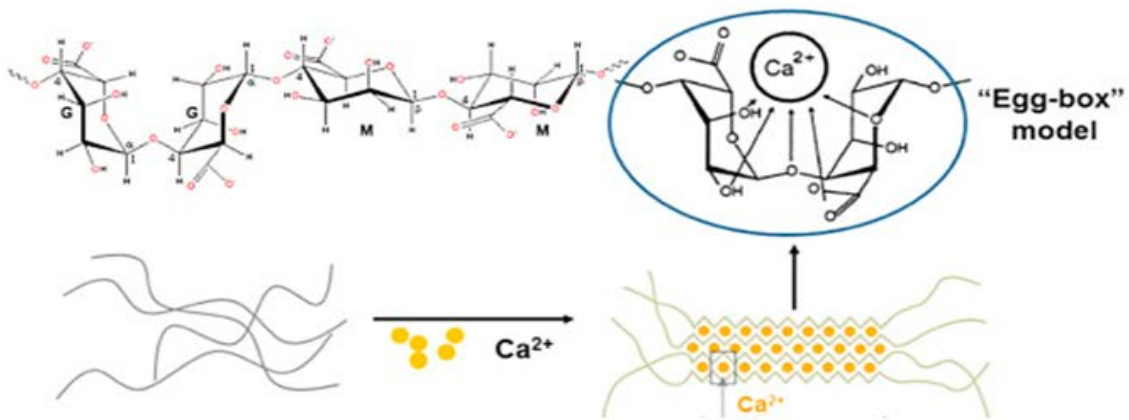
Çalışmada kullanılan membranların yüzey özellikleri temas açısı ölçümleriyle, morfolojik özellikleri SEM analizi ve yapısal özellikleri de FTIR analizleri kullanılarak incelenmiştir.

8.1. Membran Çalışmaları

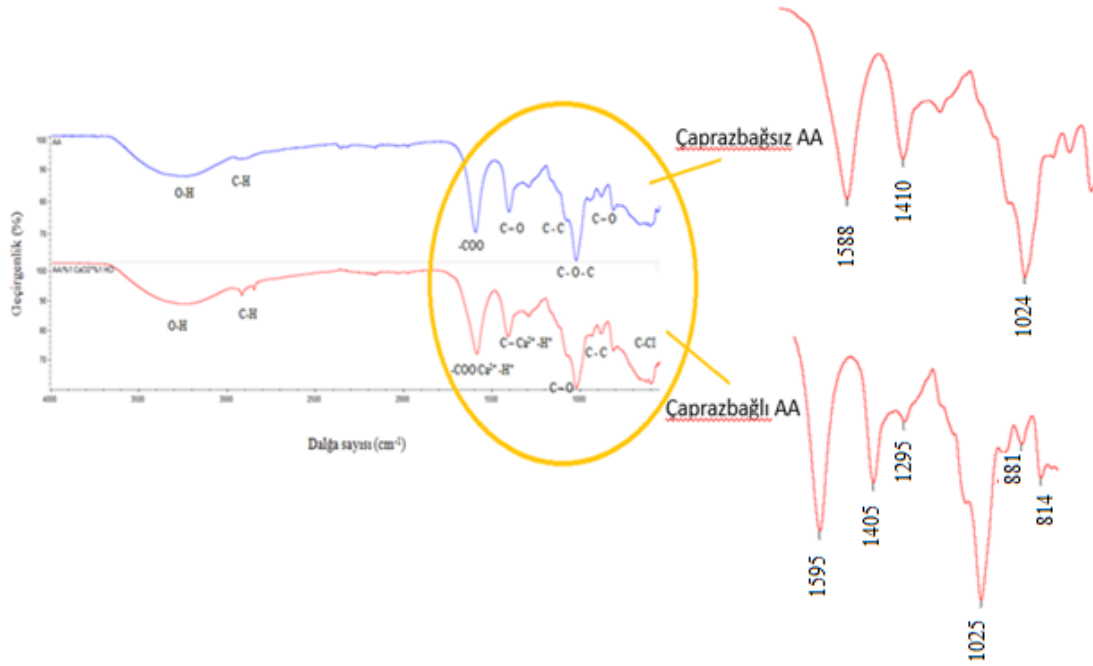
Deneylerde 200 kPa basınçta çalışabilecek çapraz akışlı filtrasyon sistemi kullanılmıştır. Farklı kalınlıklarda selüloz destek tabakalı aljinik asit membranı ÇAF sistemine yerleştirilmiş, su ve Tartrazin geçirgenliği test edilmiştir. Kalınlık arttıkça basıncın yükselmesi ile membranın akısının düşmesi nedeniyle, aktarım gerçekleşebilecek kalınlığa kadar membran kalınlığı değiştirilmiş; geçiş elde edilemeyen kalınlık optimizasyon çalışmalarında dikkate alınmıştır.

8.1.1. Membranların çapraz bağlanma işlemi

Çalışmamızda selüloz destek tabakalı AA membranlar hazırlanarak Tartrazinin sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasına çalışılmıştır. AA in suda çözünebilen bir polimer olması nedeniyle, hazırlanan membranların sulu çözeltilerin filtrasyonunda kullanılabilmesi amacıyla çapraz bağ işlemine tabi tutulması gerekmiştir. Bu amaçla, Bölüm 7. 2. 1 de belirtildiği gibi, hazırlanan membranlar sudaki çözünürlüyü önlemek amacıyla belirli sürelerle çapraz bağlayıcı çözeltilisine daldırılmıştır. Çapraz bağlayıcı çözeltisi olarak %1 CaCl_2 * %1 HCl çözeltisi tercih edilmiştir. Membranlarda çapraz bağlanma aljinik asit ile kalsiyum arasında iyon değişimi sonucu oluşmaktadır. %1 CaCl_2 * %1 HCl çözeltisinde bulunan kalsiyum iyonları aljinik asitdeki karboksil ve hidroksil gruplarına bağlanarak egg-box modeli oluşmaktadır [88, 89]. Şekil 8. 1de egg box modelinin şematik gösterimi verilmektedir.



Şekil 8.1. Çaprazbağlanma işleminde egg-box modeli

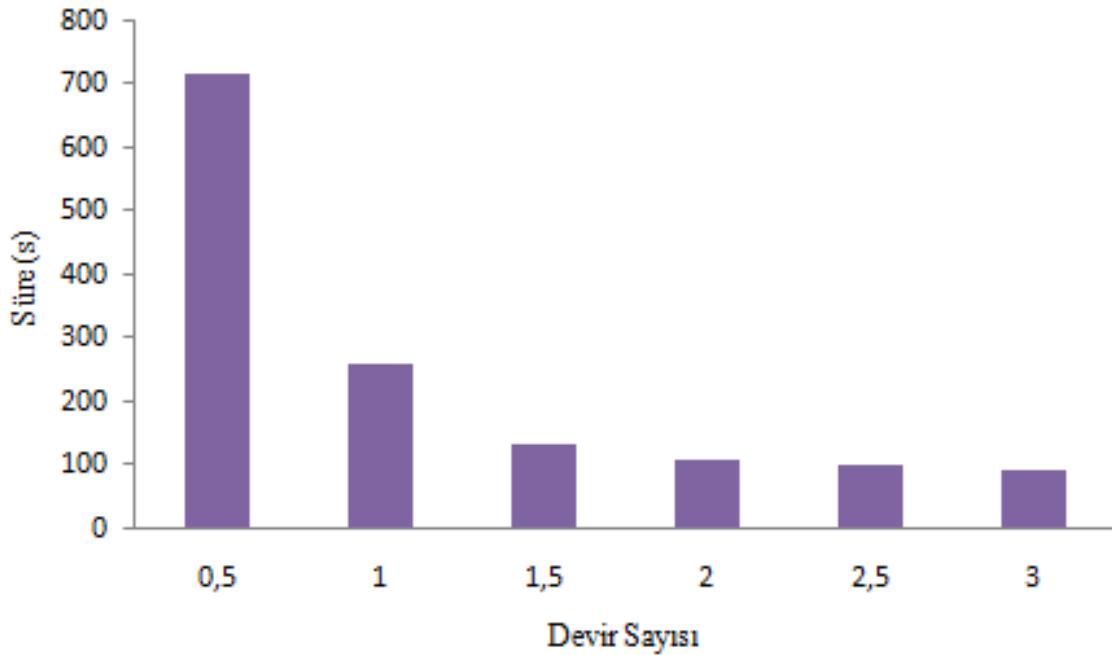


Şekil 8.2. Aljinik asit ve %1 CaCl₂ * %1 HCl çaprazbağlayıcılı aljinik asit membranlarının FTIR spektrumları

Şekil 8.2 de, hazırlanan membranların FTIR spektrumları verilmiştir. FTIR spektrumunda aljinik asitin O – H bağlarının gerilme titreşimleri 3000-3600 cm⁻¹ aralığına, alifatik C-H gerilme titreşim 2900-2800 cm⁻¹, 1605 ve 1395 cm⁻¹ deki bantlar ise sırasıyla -COO asimetrik ve simetrik gerilmesine karşılık gelir. 1024 ve 881 cm⁻¹deki bantlar, piranosil halkasının C - O gerilme titreşimine ve C - C - H ve C - O - H deformasyonunun katkıda bulunduğu C - O esnemesine karşılık gelir [90]. Kalsiyum aljinat, aljinik asitin IR spektrumuna kıyasla önemli farklılıklar göstermiştir. Kalsiyum aljinatta, O - H bağları aljinik asittekenden daha dar görünmektedir. Bu fark, kenetleme yapısını oluşturmak için aljinatın hidroksil ve karboksilat gruplarının kalsiyum iyonuna eklenmesinden ve sonuç olarak, kalsiyum aljinatta daha dar bir bant sağlayan hidroksil fonksiyonel gruplar arasındaki hidrojen bağının azalmasından kaynaklanmaktadır. Karboksilat iyonunun asimetrik gerilme titreşimi, sodyum aljinatta kalsiyum metal iyonlarının sodyum iyonlarının yerini aldığı anda, kationun yük yoğunluğu, yarıçapı ve atom ağırlığının değişmesine bağlı olarak, dalga boyları 1588 cm⁻¹den 1595cm⁻¹e; ve 1410 cm⁻¹ 1405 cm⁻¹e kaymıştır [90].

8.2. Selüloz Destek Tabakalı Aljinik Asit Membranı ile Uygun Aktarım Hızının Belirlenmesi

Filtrasyon işlemlerinde aktarım hızı ayırmayı etkileyen faktörlerden birisidir. Yüksek aktarım hızlarında, uzaklaştırılması istenen bileşenin membran materyali ile etkileşimi, yavaş aktarım hızlarına oranla düşüktür. Ancak ürünün de belli bir aktarım hızında alınması, filtrasyon süresi bakımından önemlidir. Bu nedenle, çapraz akışlı filtrasyon işleminde filtrasyon için uygun aktarım hızının belirlenmesi amacıyla selüloz destek tabakalı aljinik asit membranlar kullanılarak farklı hızlarda su geçişi yapılmıştır. Bu amaçla belli bir hacimde (100 mL) alınan saf su, hazırladığımız selüloz destekli AA membranlardan belli sürelerle aktararak, ÇAF sisteminin özelinde tanımlanmış olan 6 kademe (0,5-6 devir sayısı) için su aktarımı gerçekleştirilmiş, elde edilen sonuçlar Şekil 8.3 de verilmiştir.



Şekil 8.3. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından saf suyun aktarım hızına aktarım devir sayısının etkisi

Şekil 8.3 den de görüldüğü gibi yüksek devirlere çıkılmasıyla suyun aktarım süresi, kısalmıştır. Geçişlerin uzun sürede olması çözeltinin membran yüzeyi ile uzun süreli etkileşimine imkan sağlayacağından uzaklaştırılması hedeflenen türün tutunumunun daha yüksek olma ihtimalini yükseltecektir. Çözeltinin kısa sürede membran yüzeyinde kalması ise maddenin membran ile etkileşmesini azaltacağından ayrılma yüzdesini de düşük olacak yönde etkileyeceği düşünülmüştür. Ancak filtrasyon işleminde ürünü alma hızı da önemli olduğundan çalışmamız için en uygun aktarım hızı, devir sayısı 0,5 olarak

alındığında elde edilmiştir. Çözelti aktarımına farklı parametrelerin etkisini irdeleyebilmek amacıyla çalışma süresince geçişler aynı kademede gerçekleştirilmiştir.

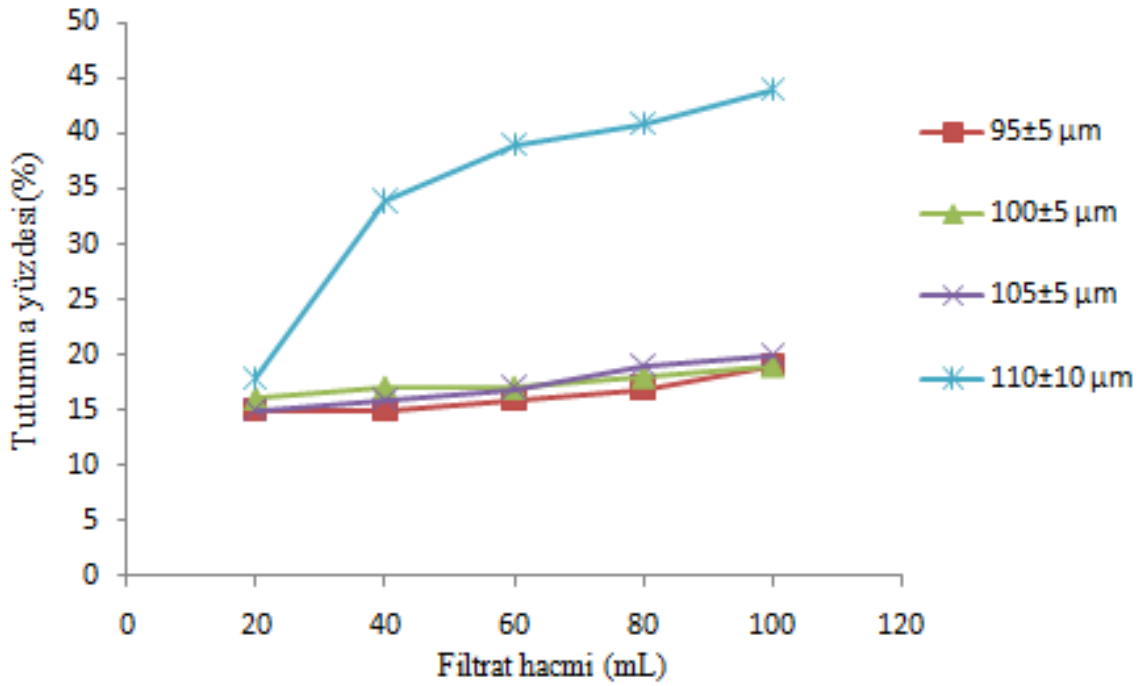
8.3. Selüloz Destek Tabakalı Aljinik Asit Membranlardan Tartrazin Filtrasyonuna Membran Kalınlığının Etkisi

Tartrazinin sulu çözeltilerden selüloz destek tabakalı AA membranlar kullanılarak ÇAF yöntemiyle uzaklaştırılmasına membran kalınlığının etkisini incelemek amacıyla, selüloz destek tabakalı membranların hazırlanması sırasında kullanılan polimer hacmi değiştirilerek çalışma için uygun membran kalınlığı belirlenmiştir. Bu amaçla 20 mL %0,75 lik AA çözeltisi üzerine yerleştirilen selüloz destek tabakasının yüzeyine dökümü yapılan polimer (% 0,75 AA, (m/v)) hacmi 20, 40, 60 ve 80 mL arasında değiştirilerek farklı kalınlıklarda membran hazırlanmıştır. Hazırlanan membranların kalınlıkları mikrometre yardımıyla en az 10 noktadan alınarak, ölçüm değerlerinin ortalamalarından nihai kalınlıkları belirlenmiş ve Çizelge 8.1 de verilmiştir.

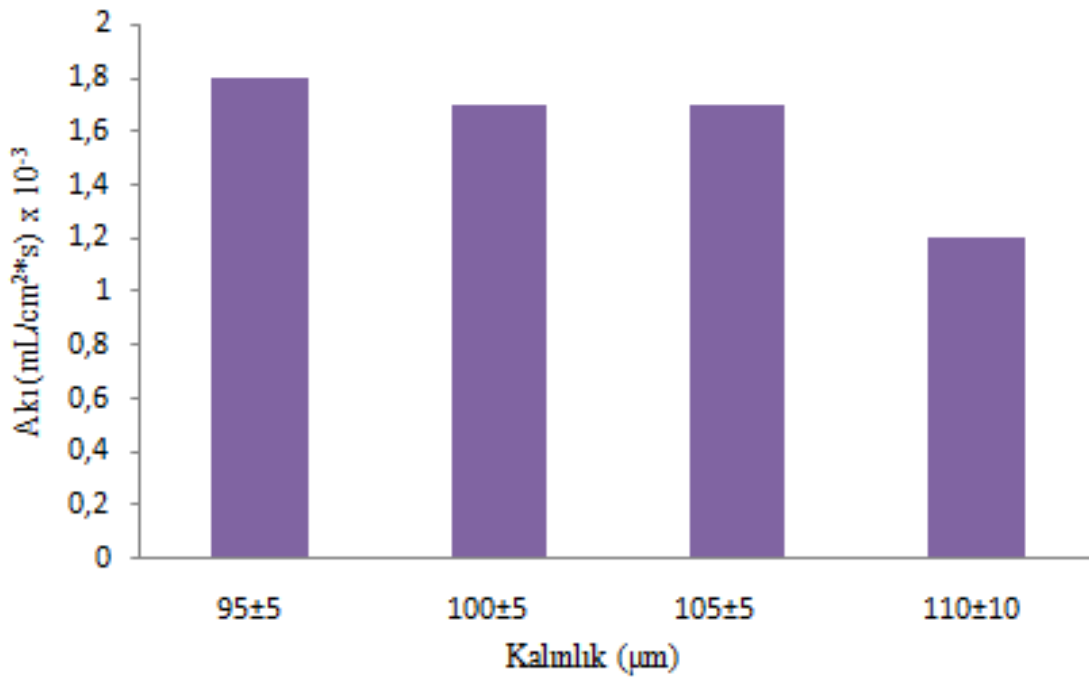
Çizelge 8.1. Selüloz destekli AA membranların kalınlıkları

MEMBRAN	KALINLIKLAR (μm)
% 0,75 (m/v) 20/20 mL AA	95 $\pm$ 5
% 0,75 (m/v) 20/40 mL AA	100 $\pm$ 5
% 0,75 (m/v) 20/60 mL AA	105 $\pm$ 5
% 0,75 (m/v) 20/80 mL AA	110 $\pm$ 10

Farklı kalınlıklarda hazırlanan membranlar, ÇAF sistemine yerleştirilmiş ve 100 ppm derişiminde hazırlanan 100 mL lik hacimlerdeki Tartrazin çözeltileri kullanılarak, belirlenen aktarım hızında (Devir sayısı = 0,5) filtrasyon yapılmıştır. pH değerleri 3,5 da sabit tutularak gerçekleştirilen Tartrazin filtrasyonu 20 mL lik örneklemelerle sürdürülmüş ve elde edilen numunelerin analizleri 426 nm de spektrofotometrik olarak yapılmıştır. Filtrasyon sonucunda elde edilen tutunma yüzdeleri Şekil 8.4 de, akı değerleri ise Şekil 8.5 de sunulmuştur.



Şekil 8.4. Farklı kalınlıklarda selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin filtrasyonunda tutunma yüzdelерinin membran kalınlığı ile değişimi (Tartrazin: 100 ppm; pH=3,5)



Şekil 8.5. Akının membran kalınlığı ile değişimi

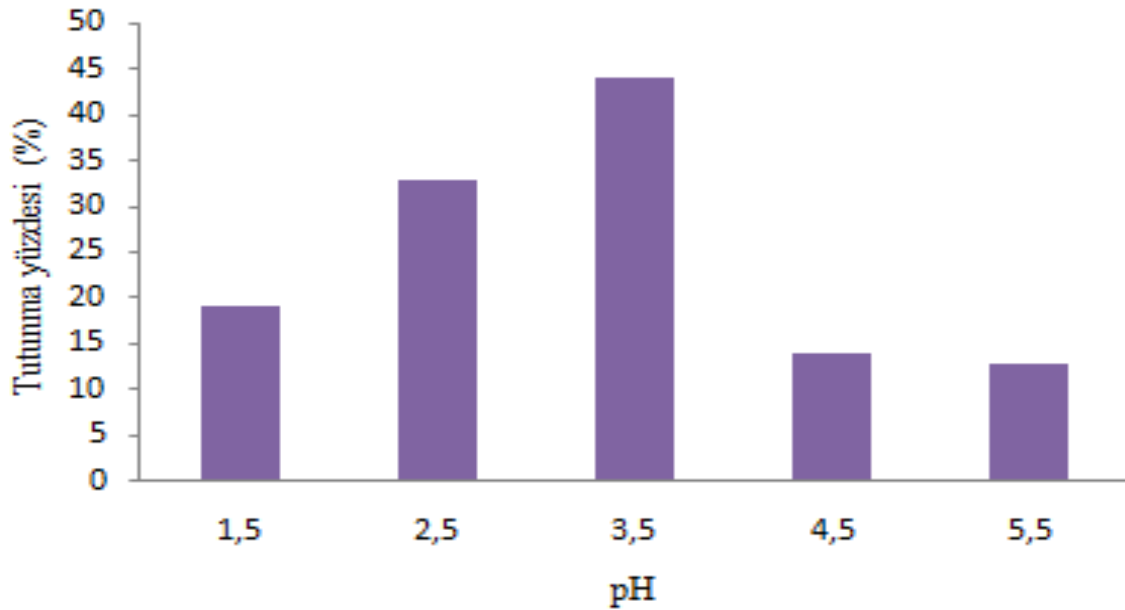
Şekil 8.4 den görüldüğü gibi en yüksek tutunma, toplamda 100 mL aljinik asit kullanılarak hazırlanan 110±10 µm kalınlığındaki membranlarla elde edilmiştir. Bu kalınlığın altındaki membranlarla % 20 ve altında tutunma yüzdeleri elde edilmiş,

kalınlıktaki artış ile membranlardan aktarım hızı azalma göstermiştir (Şekil 8.5). Aktarım hızındaki azalma çözeltinin membran ile etkileşim şansını arttırarak tutunma yüzdesindeki artış ile sonuçlanmıştır.

Yapılan çalışma sonucunda, en yüksek tutunma yüzdesinin elde edildiği % 0,75 (m/v) 20/80 mL AA döküm oranına sahip 110 ± 10 μm kalınlığındaki membran en uygun döküm hacimli membran olarak belirlenmiş, bu döküm hacminin üzerindeki hacimlere ve dolayısıyla kalınlıklara, yeterli aktarım gözlenememesi nedeniyle çıkılamamıştır.

8.4. Aljinik Asit Membranları ile Tartrazinin Uzaklaştırılmasına pH'nın Etkisi

Selüloz destek tabakalı AA membranlardan Tartrazin aktarımına pH'nın etkisini incelemek amacıyla 110 ± 10 μm kalınlıktaki membranlar kullanılarak 100 ppm Tartrazin çözeltilerinin filtrasyonuna çalışılmıştır. Bu amaçla farklı pH'larda (1,5- 5,5) hazırlanan Tartrazin çözeltileri filtrasyon işlemine tabi tutulmuş ve Şekil 8.6 da sunulan sonuçlar elde edilmiştir.



Şekil 8.6. Farklı pH'larda tartrazin sulu çözeltisinin selüloz destek tabakalı aljinik asit membranında tutunma yüzdesi

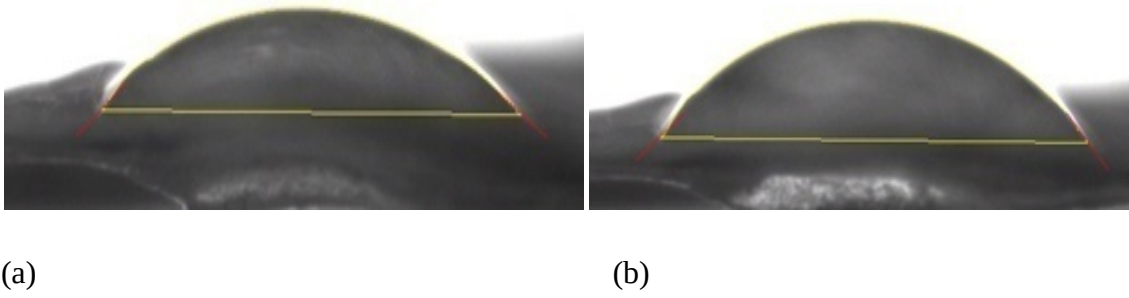
Şekil 8.6 dan da görüldüğü gibi en yüksek tutunma yüzdesi pH 3,5 da gözlemlenmiş, artan pH değeri ile tutunma yüzdesinde azalma belirlenmiştir. Bu durumun aljinik asitin polielektrolit yapısından kaynaklandığı, asidik koşullar altında, aljinik asitin protonlanması sonucunda negatif yüklü Tartrazini elektrostatik çekim yoluyla etkili bir şekilde

tutunmasına neden olduğu ve aljinik asit protonlanmasının pH'nın artmasıyla azaldığı düşünülmüştür.

Wu ve arkadaşları [91] anyonik bir boya olan amaranthı, 3-aminopropyltrimethoxysilane (3-APTS) ile modifiye ettikleri sodium aljinat ile kaplanmış hollow-glass mikroküreler (HGMs) kullanarak ayırmaya çalışmışlar; hazırladıkları küreler üzerinde amaranthın adsorpsiyon kapasitesine pH'nın etkisini incelemişlerdir. Boyanın adsorbsiyonunun pH arttıkça azaldığını, yani asidik koşullarda, adsorban üzerindeki amino grubunun protonlanması sonucunda elektrostatik çekim yoluyla negatif yüklü bir boya olan amaranth etkili bir şekilde yakalayabildiğini ancak bazik ortamda amino grubunun protonlanmasının azalması nedeniyle boyanın tutunma yüzdesinin azaldığını belirtmişlerdir.

Ghani ve arkadaşları [88] aljinat bazlı nanofibröz membran hazırlamışlar ve adsorpsiyon yöntemi ile anyonik (AR14) ve katyonik (BB41) boyaları ayırmaya çalışmışlardır. Yaptıkları çalışmada aljinik asitin pH'nın etkisiyle polimerik zincirleri üzerinde zıt elektrik yükleri taşıyabilen bir polielektrolit olması nedeniyle düşük pH değerinde hidroksil gruplarının (-OH) protonlanması sonucunda $-OH_2^+$ oluşturduklarını ve bu nedenle de anyonik boyalarla daha güçlü etkileşebildiklerini, bazik pH değerlerinde ise karboksil gruplarının (-COOH) deprotonizasyonu sonucunda oluşan $-COO^-$ gruplarının elektrostatik itmeler nedeniyle anyonik boyalarla daha az etkileştiklerini belirtmişlerdir.

Selüloz destekli AA membranların Tartrazin ve tampon çözeltileriyle yüzey etkileşimleri ve bu etkileşimler üzerine pH'nın etkisini inceleyebilmek amacıyla membran yüzeyinin farklı pH değerlerindeki tampon ve Tartrazin çözeltileriyle yüzey temas açıları incelenmiştir. Yapılan en az 5 ölçüm sonrasında elde edilen ortalama temas açıları Çizelge 8.2'de ve temas açıları da Şekil 8.7'de verilmiştir.



Şekil 8.7. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranında (a) tampon ve (b) Tartrazinin temas açısı

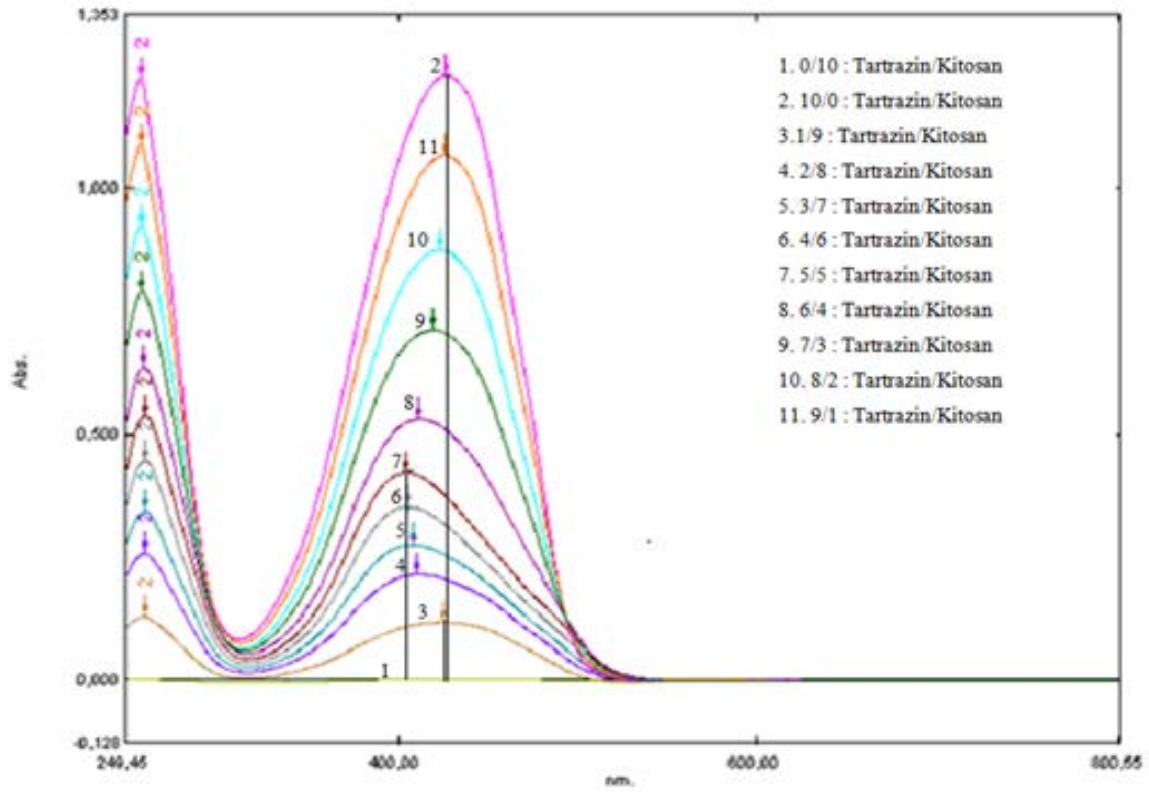
Çizelge 8.2. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranında tampon ve Tartrazinin temas açıları

pH	Temas açısı ($^{\circ}$)	
	Tampon	Tartrazin
1.5	50 ± 1	43 ± 1
2.5	46 ± 1	33 ± 1
3.5	28 ± 1	21 ± 1
4.5	63 ± 1	61 ± 1
5.5	73 ± 1	70 ± 1

Çizelge 8.2 den de açıkça görüldüğü gibi pH 3,5 değerinde yüzey temas açılarının en düşük değere ulaştığı belirlenmiştir. Temas açısındaki azalma yüzey ile daha güçlü etkileşim olduğunun bir kanıtıdır [92-94]. Elde edilen verilerden yüksek tutunma yüzdesinin pH 3,5 da daha yüksek yüzdelerde olmasının düşük temas açısı ile örtüştüğü, pH ile tutunma yüzdelesindeki değişimin de elde edilen temas açıları ile uyumlu bir değişim gösterdiği belirlenmiştir. Böylece, optimum pH ı 3,5 olmuştur.

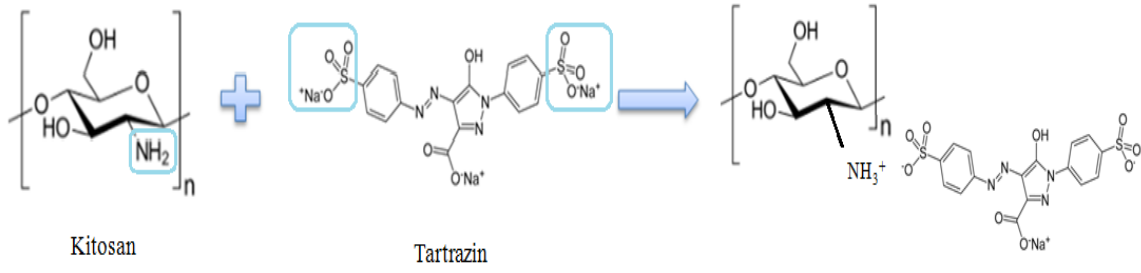
8.5. AA Membranlarla Tartrazin Filtrasyonuna Kompleksleştirici Polimerin Etkisi

Selüloz destek tabakalı AA membranlardan Tartrazin filtrasyonuna kompleksleştirici polimerin etkisini incelemek amacıyla, tartrazinin bir anyonik boya olması nedeniyle katyonik bir yeşil polimer olarak bilinen kitosan kompleksleştirici polimer olarak tercih edilmiştir. Tartrazin ve Kitosan arasında kompleks oluşumunu belirlemek amacıyla pH 3,5 da aynı derişimde (100 ppm) hazırlanan Tartrazin ve kitosan çözeltileri toplam hacim 10 mL olmak üzere farklı hacim oranlarında (0/10, 1/9, 2/8, 3/7, 4/6, 5/5, 6/4, 7/3, 8/2, 9/1, 10/0) karıştırılarak, kompleks oluşumu UV spektrometresiyle incelenmiştir. Dalgaboyu taramalarına ait sonuçlar Şekil 8.8 de verilmiştir.



Şekil 8.8. Tartrazin/Kitosan kompleksinin spektrofotometrik absorpsiyonu

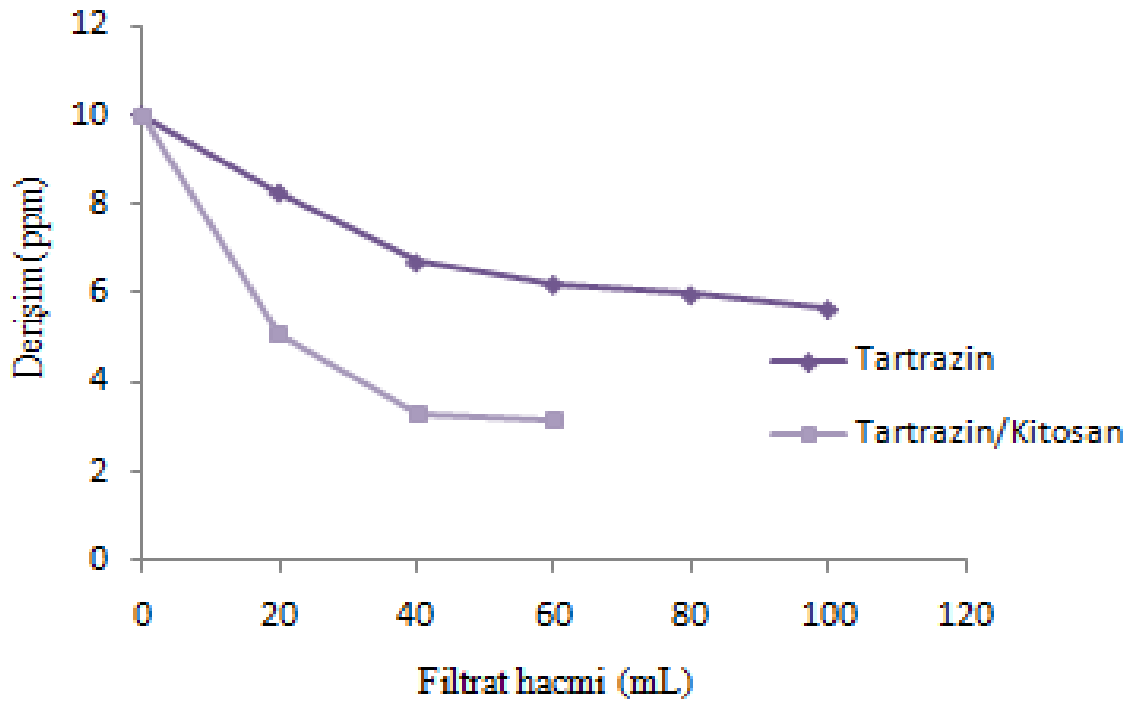
Şekil 8.8 de görüldüğü gibi, farklı hacim oranlarında alınan tartrazin/kitosan çözeltilerine ait spektrumlardaki maksimumlardaki ($\lambda_{\max}$) kaymalar dikkate alınarak kompleks oluşumu düşünülmüş, tartrazin için 426 nm de gözlenen maksimum, 1:1 oranında karıştırılan Tartrazin/Kitosan çözeltisi için 404,5 nm dalga boyu olarak belirlenmiştir. Kompleks oluşumunun boyanın sülfö grupları ile kitosanın $-\text{NH}_2$ gruplarının etkileşiminden kaynaklandığı [95-97] düşünülmüş, çözeltideki hidrojen atomları (H^+) kitosanın amin gruplarını ($-\text{NH}_2$) protonlamış ve tartrazinin sülfonat grupları ile etkileşmiştir [98-100]. En uygun kompleksleşme oranı, en yüksek dalga boyu kaymasının 7 no lu eğride gözlenmesi nedeniyle, 1:1 olarak belirlenmiştir. Kompleks oluşumuna ait diyagram Şekil 8.9 da verilmiştir.



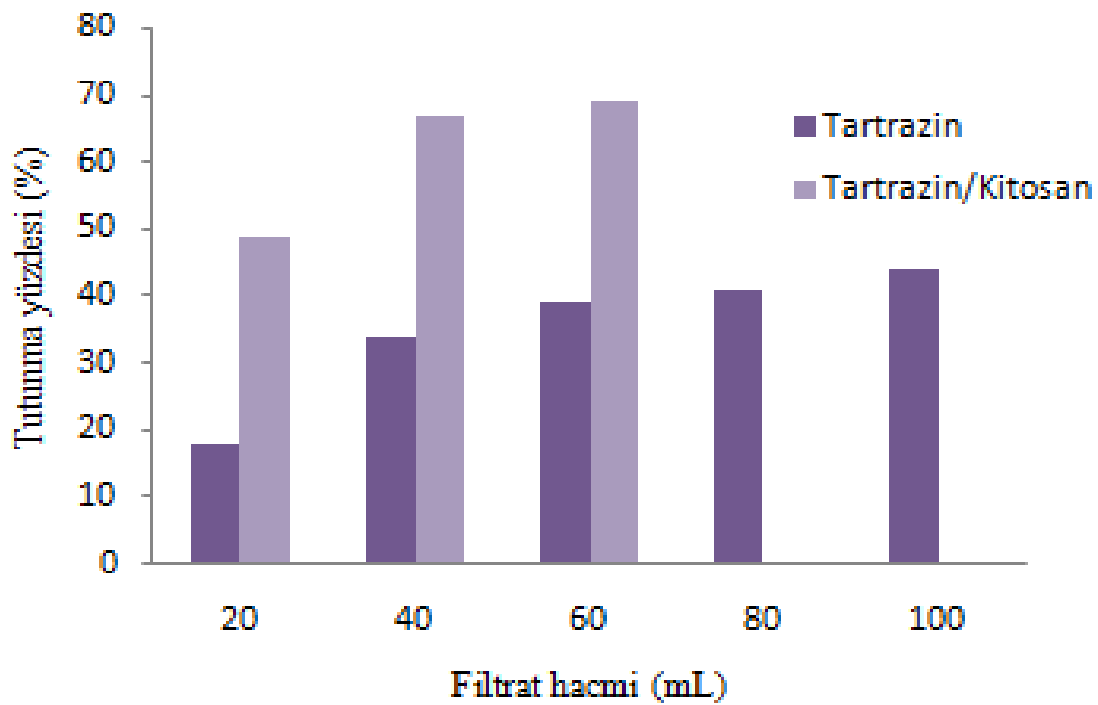
Şekil 8.9. Tartrazinin kitosan ile etkileşmesi

8.6. AA Membranlarla Tartrazinin ve Tartrazin/Kitosan Kompleksinin Filtrasyonuna Derişimin Etkisi

Selüloz destek tabakalı AA membranlardan Tartrazinin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin uzaklaştırılmasına derişimin etkisini incelemek amacıyla 110 ± 10 μm kalınlıktaki membranlar kullanılarak, hacimce 1:1 oranında karıştırılan, 10, 20, 30 ppm Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleks çözeltilerinin filtrasyonuna çalışılmıştır. Bu amaçla pH 3,5 da hazırlanan Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleks çözeltileri filtrasyon işlemine tabi tutulmuş ve filtrasyon süresince elde edilen filtratların derişimleri Şekil 8. 10-8. 12 de verilmiştir.

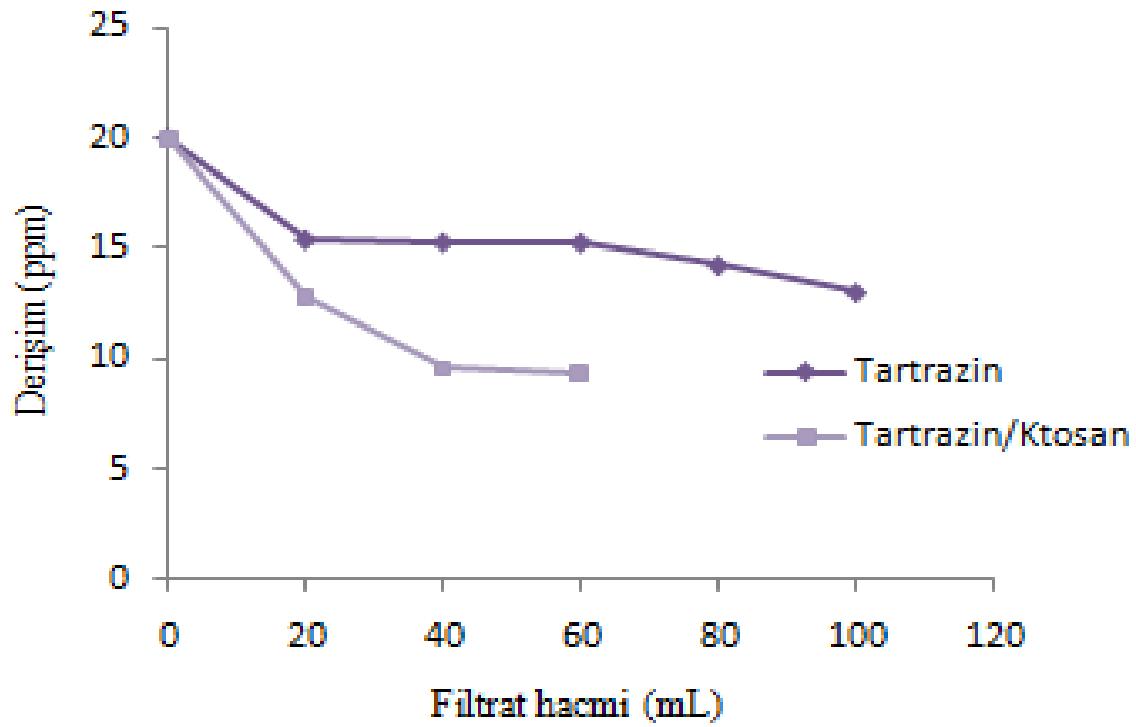


(a)

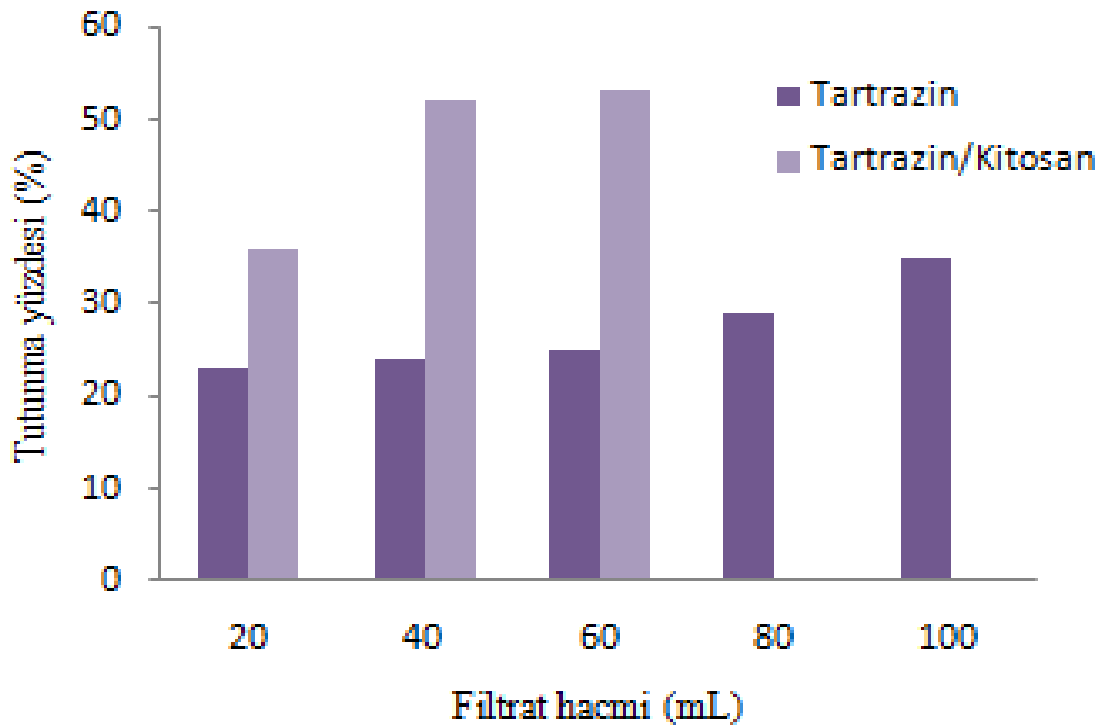


(b)

Şekil 8.10. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonu (a) Tartrazin Derişiminin hacimla değişimi (b) Tartrazin/Kitosan derişimin tutunma yüzdesine etkisi ($110 \pm 10 \mu\text{m}$ AA, Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan derişim=10 ppm, pH=3,5)

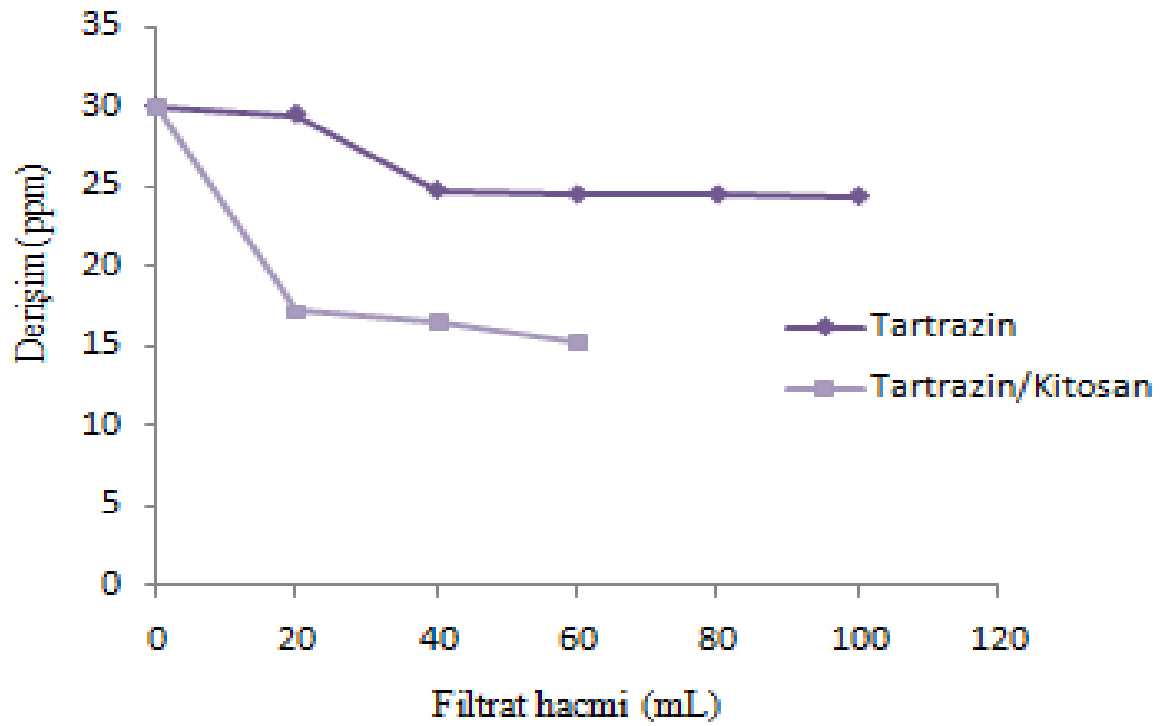


(a)

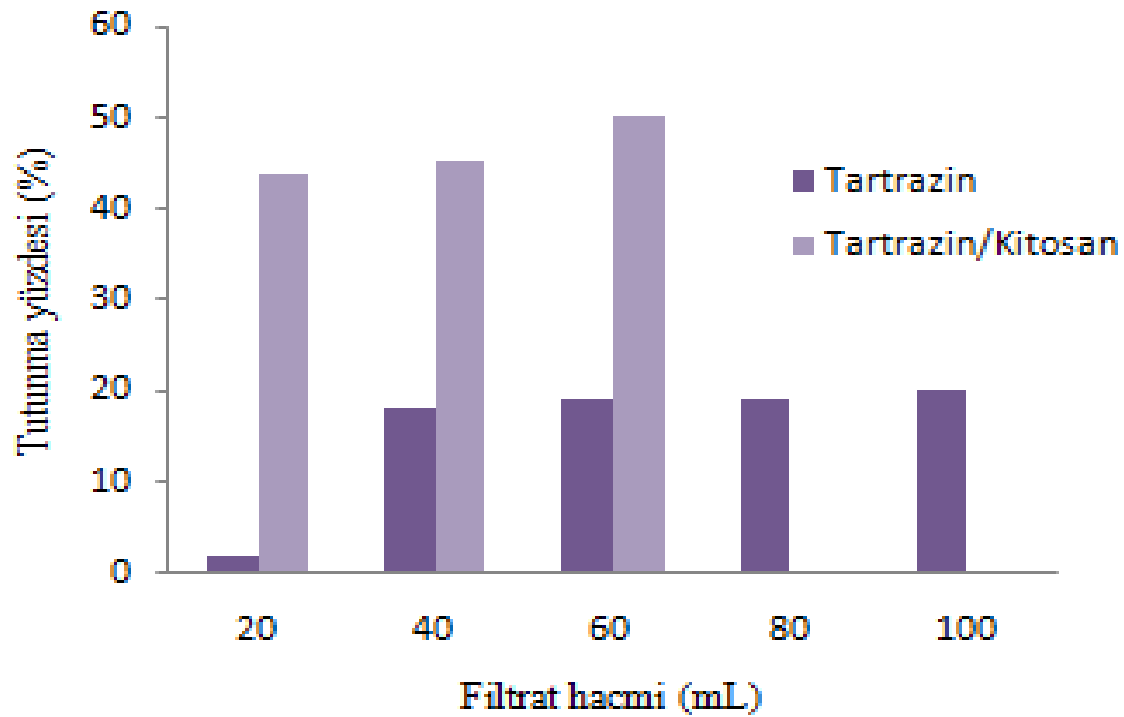


(b)

Şekil 8.11. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonu (a) Tartrazin Derişiminin hacimla değişimi (b) Tartrazin/Kitosan derişiminin tutunma yüzdesine etkisi ($110 \pm 10 \mu\text{m}$ AA, Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan derişim=20 ppm, pH=3,5)



(a)



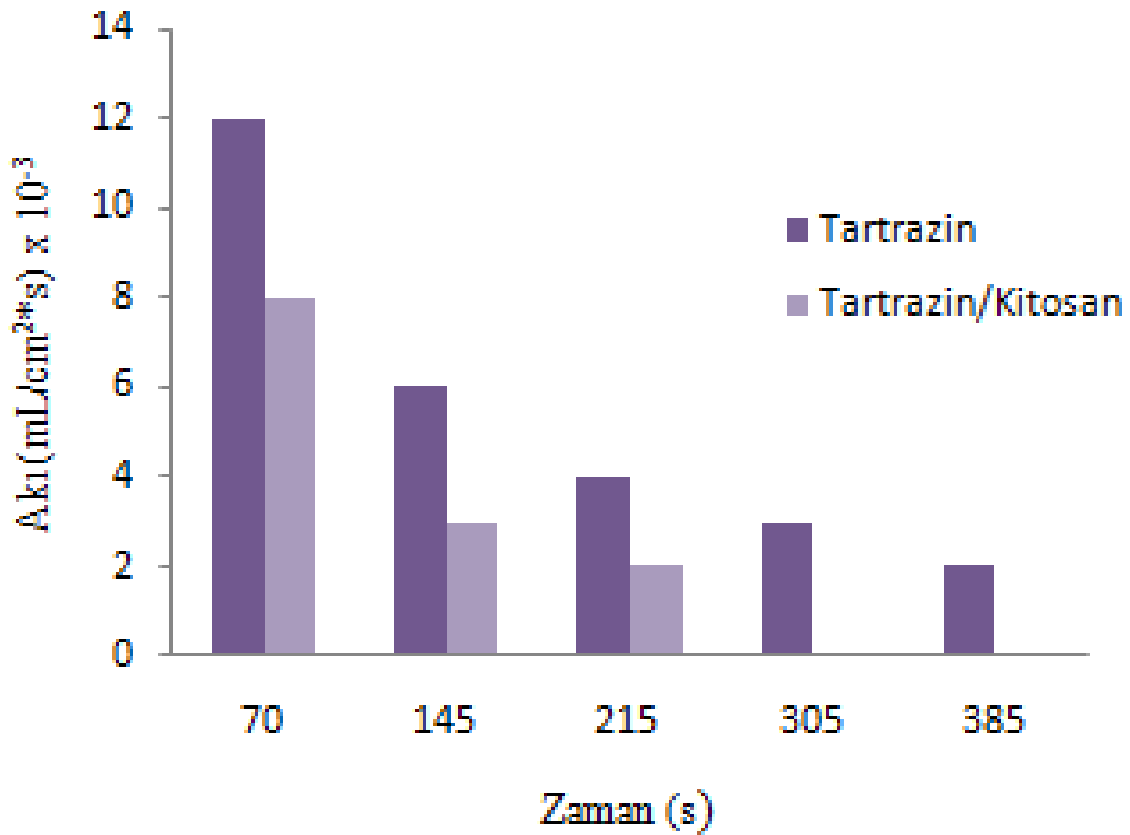
(b)

Şekil 8.12. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonu (a) Tartrazin Derişiminin hacimla değişimi (b) Tartrazin/Kitosan derişimin tutunma yüzdesine etkisi ($110 \pm 10 \mu\text{m}$ AA, Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan derişim=30 ppm, pH=3,5)

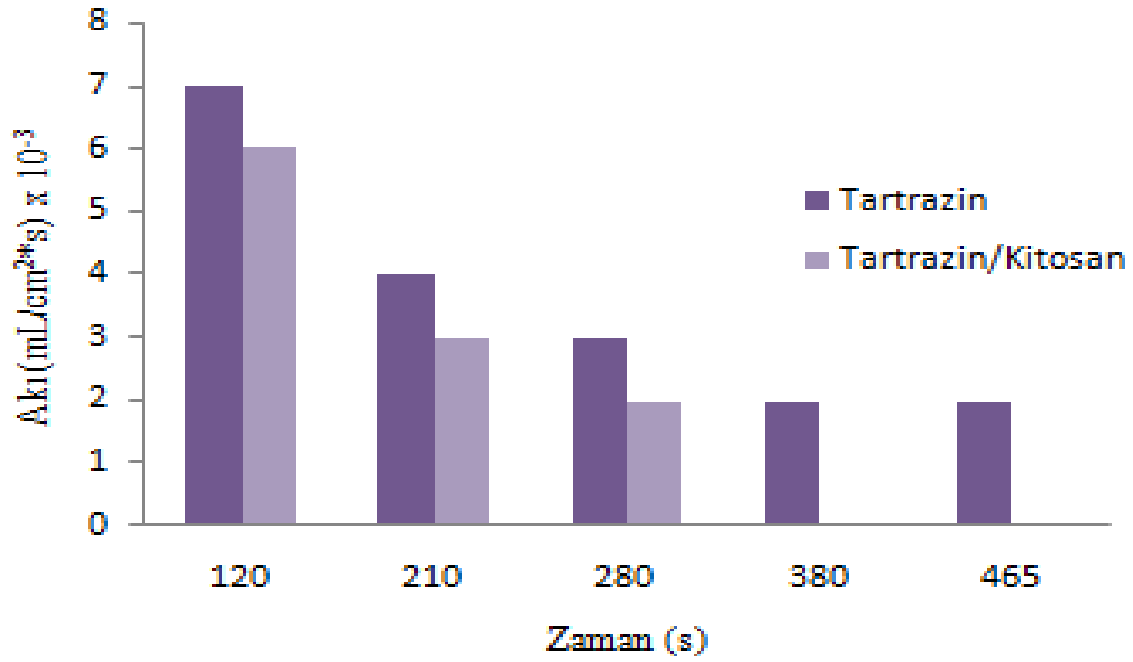
Şekil 8.10 - 8.12 den görüldüğü gibi Tatrazin ve Tartrazin/Kitosan komplekslerinin derişimlerdeki artış ile filtrat derişiminde artış, tutunma yüzdesinde azalma gözlemlenmiştir.

Aljinik asit polimerik zincirleri üzerinde zıt elektrik yükleri taşıyabilen bir polielektrolit olması olduğundan pH'nın etkisiyle düşük pH değerinde hidroksil grupları (-OH) protonlanarak $-OH_2^+$ oluşturur [88]. Kitosan derişimindeki artış ile tutunma yüzdesindeki azalmanın, kitosanın katyonik bir polimer olması nedeniyle, kitosan derişimindeki artış ile protonlanmış aljinik asitin elektrostatik itmelerinden kaynaklandığı düşünülmüştür. Tartrazin derişimindeki artış ile tutunma yüzdesindeki azalmanın da, derişim polarizasyonu nedeniyle yüksek derişimdeki tartrazin gruplarıyla etkileşebilecek yeterlilikte $-OH_2^+$ gruplarının bulunmamasından kaynaklandığı düşünülmüştür.

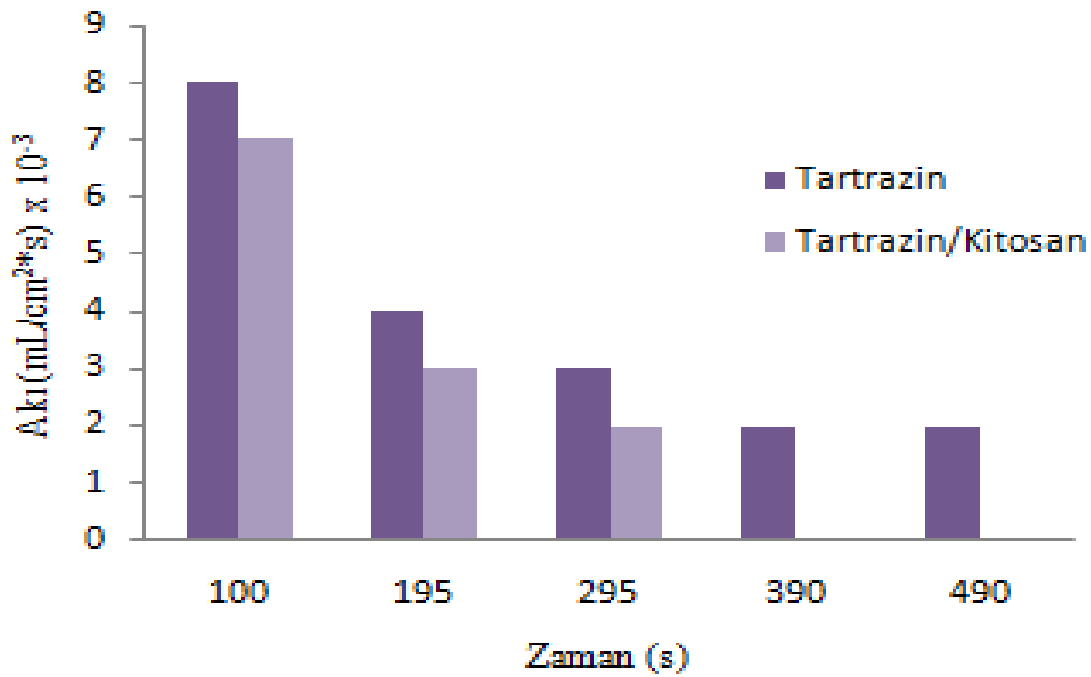
Şekil 8.13-8.15 de farklı derişimlerde hazırlanan Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleks çözeltilerinin akılarının zamanla değişimleri verilmektedir.



Şekil 8.13. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonuna akının etkisi (110±10 µm AA, derişim=10 ppm, pH=3,5)



Şekil 8.14. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonuna akının etkisi (110±10 µm AA, derişim=20 ppm, pH=3,5)



Şekil 8.15. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonuna akının etkisi (110±10 µm AA, derişim=30 ppm, pH=3,5)

Şekil 8.13 - 8.15 den görüldüğü gibi Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan komplek çözeltisi ile akı zamanla azalma göstermiş, Tartrazin/Kitosan kompleks çözeltilerinin filtrasyonunda

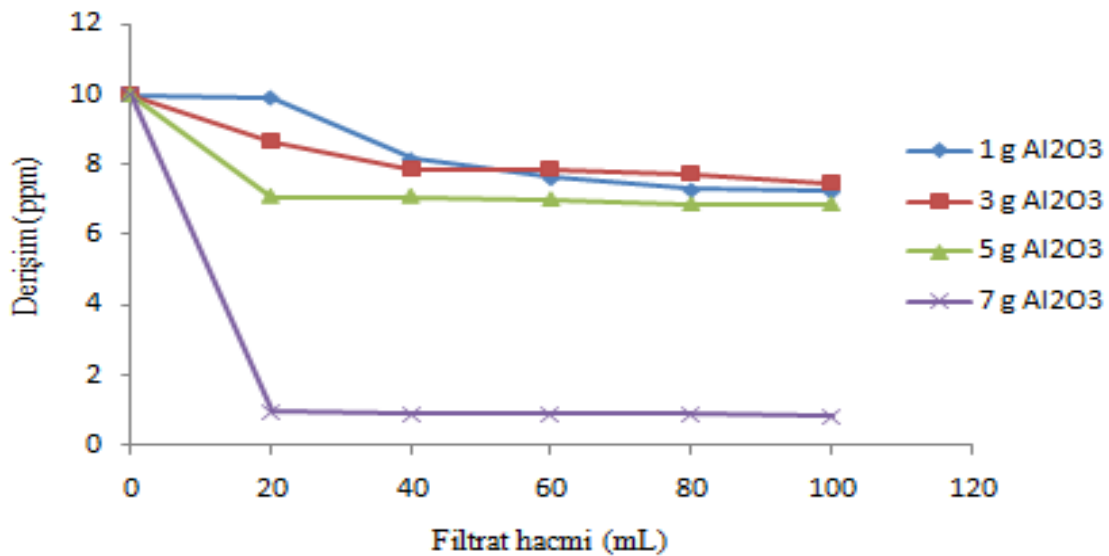
belli bir süre sonunda membranlardan aktarım durma noktasına gelmiştir. Bu durumun, Tartrazin/Kitosan kompleks çözeltilerinin filtrasyonunda, aljinik asitte oluşan $-OH_2^+$ grupları ile kitosan arasındaki elektrostatik itmeler nedeniyle membran yüzeyinde oluşan ve akının düşmesine yol açan derişim polarizasyonundan kaynaklandığı düşünülmüştür; derişim polarizasyonu sonucunda oluşan basınç yükselmesi (40-80 kPa, 6-12 psi), membran yüzeyinde çözelti sirkülasyonuna direnç oluşturmuş, bu nedenle membranın tıkanması sonucunda filtrat aktarımı bütünüyle durmuş ve ürün elde edilememiştir.

8.7. AA/Al₂O₃ Kompozit Membranlarından Filtrasyon

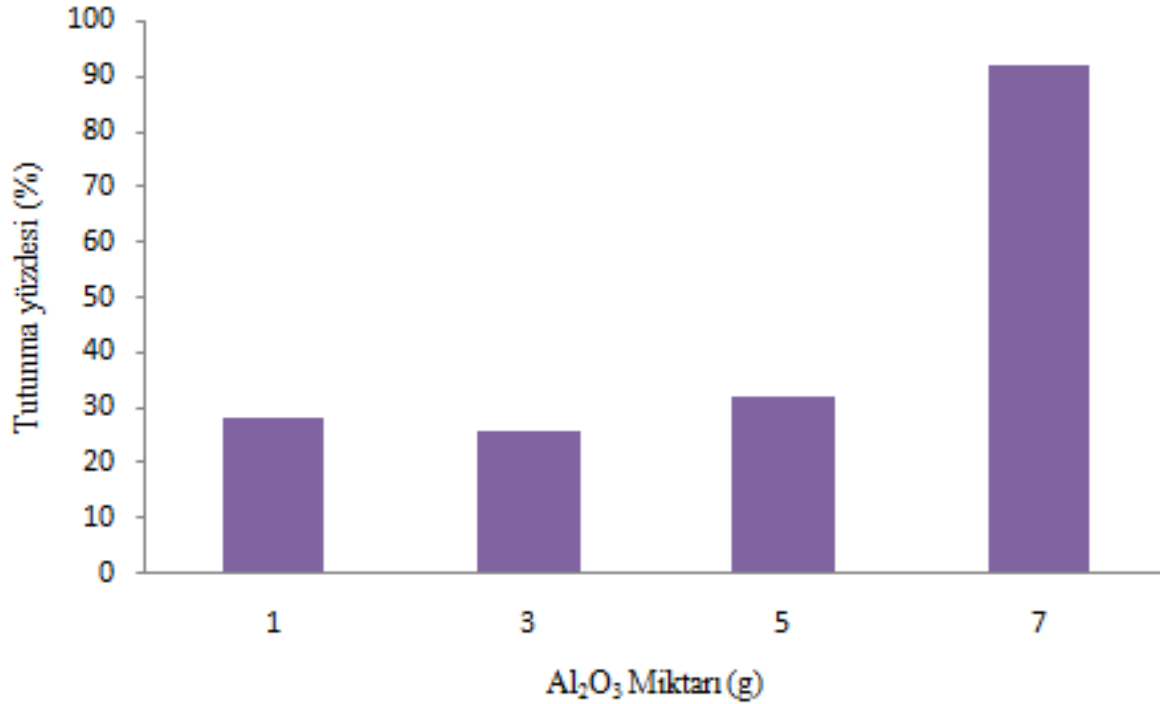
Selüloz destek tabakalı aljinik asit alüminyum oksit kompozit membranı kullanılarak Al₂O₃ katkısının Tartrazinin tutunma yüzdesine etkisi incelenmiştir.

8.7.1. AA/Al₂O₃ kompozit membranlarından filtrasyona Al₂O₃ miktarının tutunma yüzdesine etkisi

Selüloz destek tabakalı AA/Al₂O₃ kompozit membranlarından Tartrazinin uzaklaştırılmasında kompozit miktarının derişim ve tutunma yüzdesi üzerinde etkisini incelemek amacıyla AA membranlar üzerine farklı miktarlarda (1-7 g) Al₂O₃ eklenerek hazırlanan kompozit membranlar kullanılmış ve 10 ppm Tartrazin çözeltilerinin filtrasyonuna çalışılmıştır. Bu amaçla pH 3,5 da hazırlanan Tartrazin çözeltileri filtrasyon işlemine tabi tutulmuş ve elde edilen sonuçlar Şekil 8. 16 ve 8. 17 de verilmiştir.

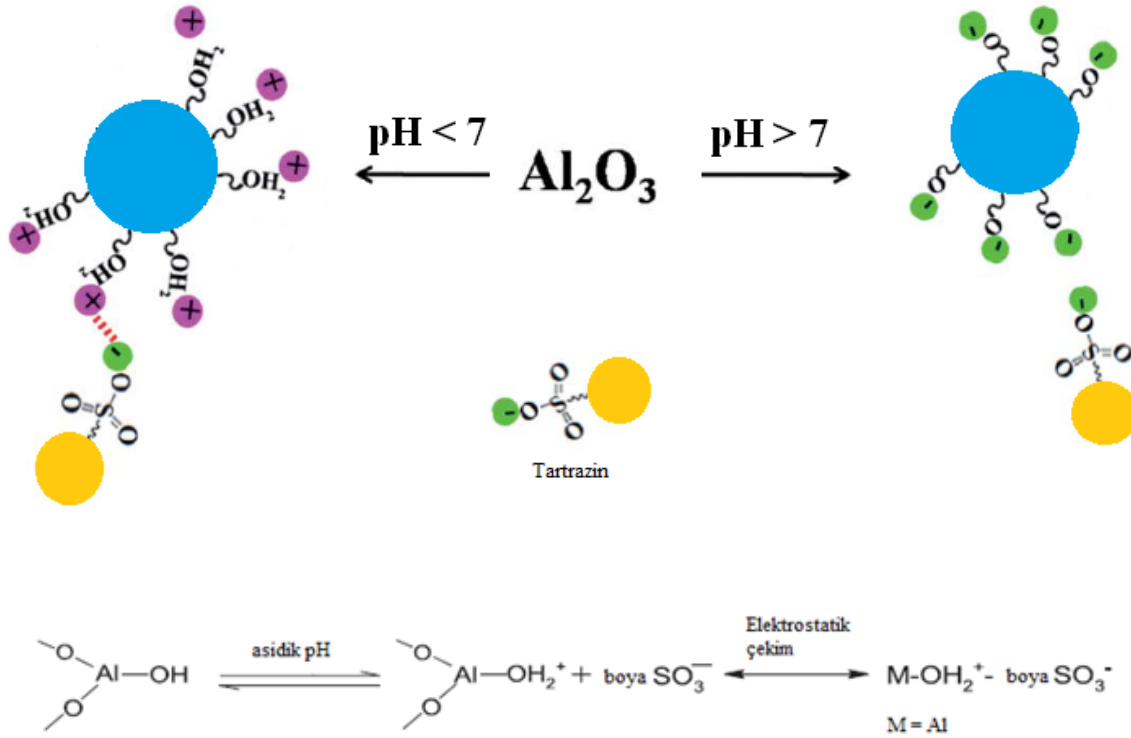


Şekil 8.16. Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda Al₂O₃ miktarının etkisi (Tartrazin derişimi =10 ppm, pH=3,5)



Şekil 8.17. Tartrazinin sulu çözeltisinin filtrasyonunda tutunma yüzdesine Al₂O₃ miktarının etkisi (Tartrazin derişimi =10 ppm, pH=3,5)

Şekil 8.16 ve 8.17 den de görüldüğü gibi, membranlara eklenen Al₂O₃ miktarının artmasıyla uzaklaştırılan Tartrazin miktarı 1-5 g Al₂O₃ için büyük bir değişim göstermemekle birlikte, filtrattaki en düşük Tartrazin derişimi ve en yüksek tutunma yüzdesi 7 g Al₂O₃ kullanılarak pH 3,5 da elde edilmiştir. pH yüzey yüklerini etkileyerek tutunmayı belirleyen faktörlerden biridir. Al₂O₃ pH 7 de sıfır noktasında bulunur [101]. pH 7 nin altında oksitleri yoluyla negatif yüzeyi olurken (AlO⁻ grupları), pH değeri 7 nin üzerine çıktığında AlOH₂⁺ grupları oluşturarak yüzeyini pozitif yüklü hale getirir (Şekil 8. 18). Sonuç olarak AA/Al₂O₃ kompozit membranının yüzeyi asidik ortamda pozitif, bazik ortamda ise negatif yüklüdür [101, 102]. Dolayısıyla anyonik bir boya olan Tartrazin pH 3,5 da pozitif yüklü yüzey ile elektrostatik etkileşimler yoluyla daha yüksek yüzdede tutunur.



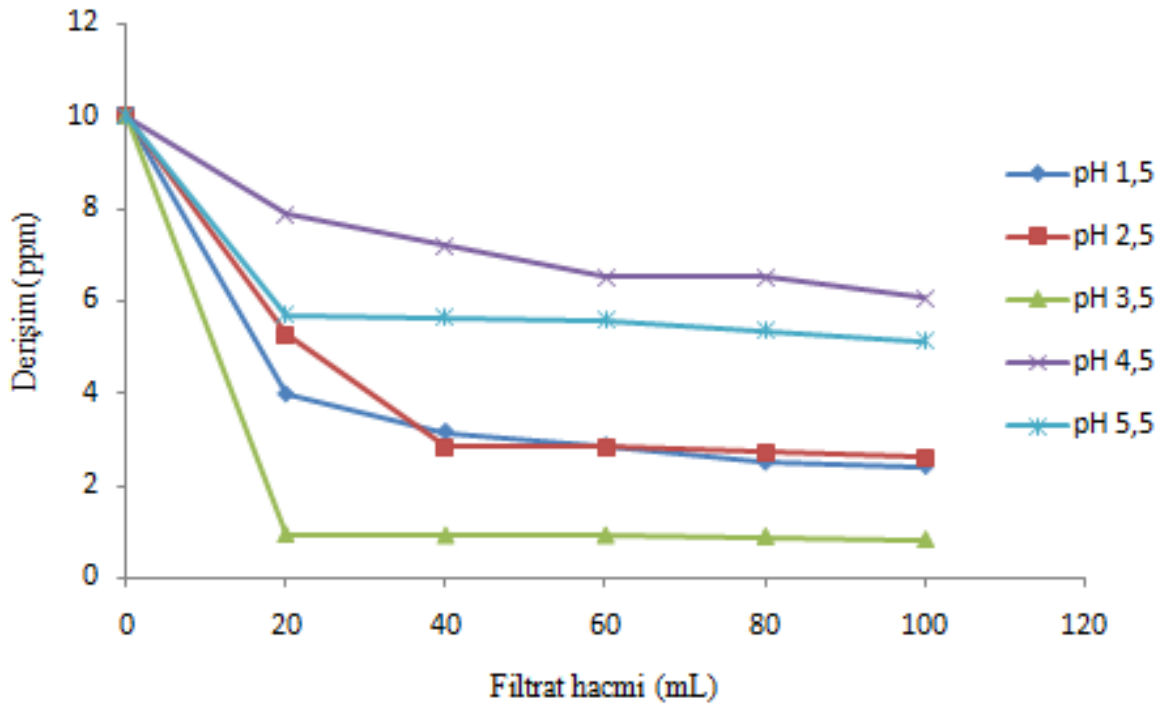
Şekil 8.18. AA/Al₂O₃ kompozit membranıyla Tartrazin'in uzaklaştırılması mekanizması [102, 103]

Zhang ve arkadaşları [102] mikro katı faz ekstraksiyon yöntemi ile nano-Al₂O₃ içeren membranları ile anyonik boya olan Tartrazin (TA) ve gün batımı sarısının (SY) adsorbsiyonunu çalışmışlardır. Yaptıkları çalışmada membran üzerindeki nano-Al₂O₃ partiküllerinin asidik ortamda pozitif yüke sahip olması nedeniyle anyonik boya olan Tartrazin ve gün batımı sarısının yüksek adsorpsiyon verimi ile sonuçlandığını bulmuşlar. Daha çok miktarda nano-Al₂O₃ kullanıldığında membranın yüzeyinde pozitif yüklü partiküllerin artması nedeniyle daha çok boya uzaklaştırmışlardır. Elde ettikleri bu sonuç bulduğumuz sonucu desteklemektedir.

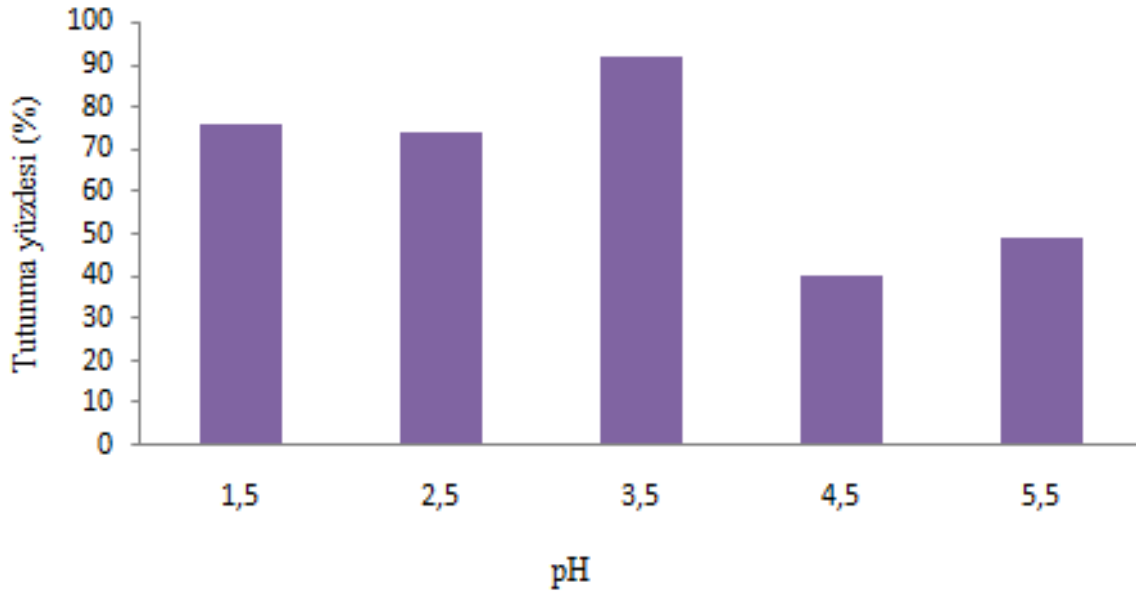
Banerjee ve arkadaşları [103] adsorpsiyon yöntemi ile alümina nanopartikülleri kullanarak anyonik bir boya olan turuncu G (OG) sulu çözeltilerden uzaklaştırılmasına çalışmışlardır. Yaptıkları bu çalışmada alümina nanopartikülleriyle asidik ortamda anyonik boya olan turuncu G'nin yüksek adsorpsiyon verimiyle uzaklaştırılmasını elde etmişler.

8.7.2. AA/Al₂O₃ kompozit membranlarından tartrazinin uzaklaştırılmasına pH'nın etkisi

AA/Al₂O₃ kompozit membranlardan Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonuna pH'nın etkisini incelemek amacıyla, en yüksek tutunma yüzdesinin elde edildiği 7 g Al₂O₃ içeren kompozit membranlar kullanılarak, Tartrazin çözeltilerinin pH'sı 1,5-5,5 aralığına ayarlanmıştır. Yapılan filtrasyon sonucunda, filtrat derişiminin hacimle deęişimi Şekil 8. 19 de, tutunma yüzdelерinin pH ile deęişimi Şekil 8. 20 da sunulmuştur.



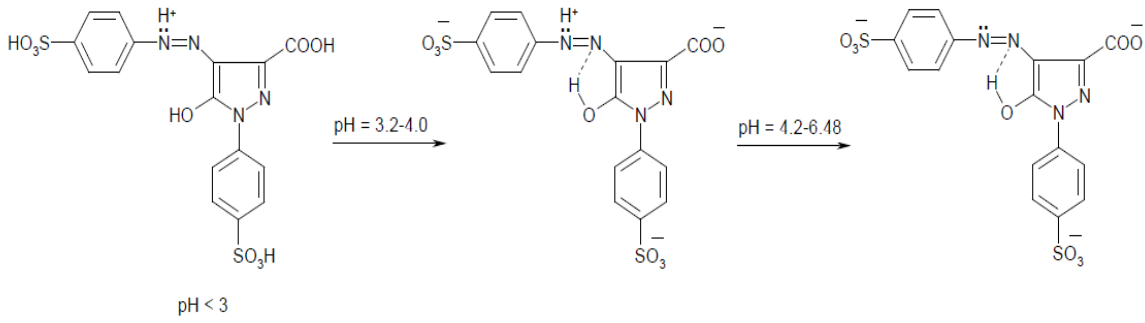
Şekil 8.19. AA/Al₂O₃ kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda pH'nın etkisi (7g Al₂O₃, pH=1,5; 2,5; 3,5; 4,5; 5,5, Tartrazin derişimi=10 ppm)



Şekil 8.20. AA /Al₂O₃ kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda pH'nın tutunma yüzdesine etkisi (7g Al₂O₃, Tartrazin derişim=10 ppm)

Grafiklerden de görüldüğü gibi en düşük filtrat derişimi ve en yüksek tutunma yüzdesi pH 3,5 da elde edilmiş, pH 3,5 dan daha asidik pH değerleri olan pH 1,5-2,5 da tutunma yüzdesinin, pH 3,5 da elde edilenden daha düşük olduğu belirlenmiştir. pH 3,5 da tartrazinin negatif yüklü sülfonat gruplarıyla ($-\text{SO}_3^-$) Al₂O₃ yüzeyinin pozitif yüklü $-\text{OH}_2^+$ grupları arasında güçlü elektrostatik etkileşimi sonucunda daha yüksek tutunma yüzdesi gözlemlenmiştir. pH 1,5-2,5 da ise Tartrazinin protonlanmış yapısı Al₂O₃ yüzeyinin pozitif yüklü $-\text{OH}_2^+$ gruplarıyla ve aljinik asitin düşük ayrışma sabitine (10^{-4}) sahip olması nedeniyle karboksil gruplarının bir kısmı pozitif olması sonucunda tutunma yüzdesinde azalma olmuştur. pH 4,5-5,5 da ise Tartrazinin negatif yüklü gruplarıyla ($-\text{SO}_3^-$, COO^-) Al₂O₃ yüzeyinin pozitif yüklü $-\text{OH}_2^+$ gruplarının etrafındaki aljinik asitin negatif karboksil grupları arasındaki elektrostatik itmesinden kaynaklanarak tutunma yüzdesi daha da azalmıştır.

Tartrazin ya da diğer adı ile tri-sodyum-3-karboksi-5-hidroksi-1-p-sulfofenil--4-p-sulfofenilazopirazol, anyonik bir boyadır ve polar fonksiyonel grupları ($-\text{SO}_3\text{Na}$, $-\text{OH}$, $-\text{COOH}$ ve NH_2), polar yapılar yüzeyinde daha güçlü tutunmalarına imkan sağlar [104]. Tartrazinde bulunan sülfonat grupları düşük pHlarda değişiklik göstermeden kalırlar ve elektrostatik etkileşimlerle pozitif yüklü Al₂O₃ yüzeyi ile etkileşimleri, pH 3 değerinin üstündeki pHlarda elde edilenden daha düşük oranlarda elde edilir.



Şekil 8.21. Tartrazinin pH'nın etkisiyle protonlanma yapısı [105]

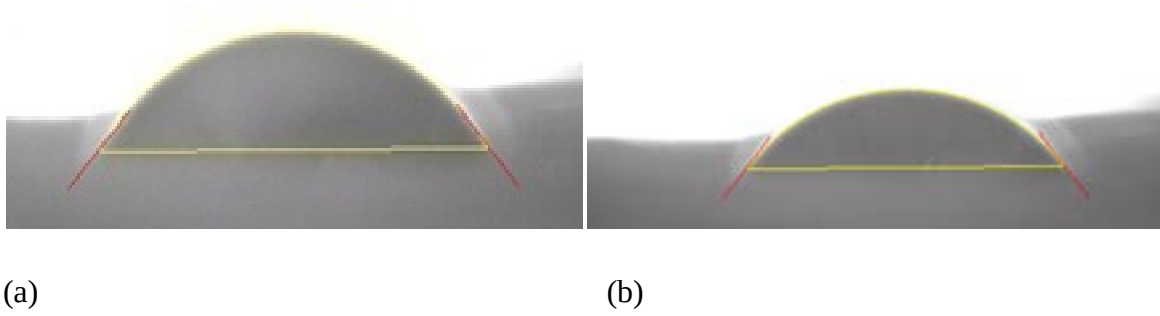
Şekil 8. 21 de pH'nın tartrazinin kimyasal yapısı üzerindeki etkisi verilmektedir. Şekilden de açıkça görüldüğü gibi, pH 3,0'un altında Tartrazin anyonik yapısını koruyor olmakla birlikte, pH 3,2 ile pH 4,0 arasında N=N grupları protonlanarak nükeofilik yapıda daha etkin bir yapı kazanmaktadır [105]. Bu durum, pH 3,5 de tartrazinin daha yüksek tutunma yüzdesi ile uzaklaştırılmasına imkan sağlamaktadır.

Bununla birlikte, pH değeri 4,5-5,5 olduğunda ise tartrazinde gözlenen intramoleküler hidrojen bağı oluşumu nedeniyle, tutunma yüzdesinde gözlenen azalmanın alüminyum oksitin protonlanmasının azalmasından [88] kaynaklandığı düşünülmüştür.

Barakat ve arkadaşları [106] Al_2O_3 / grafen oksit / hallosit nanotüp (Al_2O_3 / GO / HNT) nanokompozit sentezlenmişler ve atık sudan katyonik metilen mavisi (MB) ve anyonik kongo kırmızısı (CR) boyalarının ayrılması için adsorpsiyon yöntemini kullanmışlardır. Yaptıkları çalışmada en iyi adsorpsiyon yüzdesini, bir anyonik boya olan CR için pH 3 de elde etmişlerdir.

Ghulam ve arkadaşları [107] alümina (Al_2O_3) kullanarak atık sulardan anyonik reaktif yeşil-19 (RG 19) boyasının uzaklaştırılmasına çalışmışlar. Adsorpsiyon yöntemi kullanarak yaptıkları çalışmada pH'nın etkisini araştırmak amacıyla çözelti pH'sını pH 3 ile 11 arasında değiştirmişler ve en yüksek tutunma yüzdesini pH 3 de % 92,4 olarak belirlemişlerdir.

Selüloz destekli AA/ Al_2O_3 kompozit membranların Tartrazin ve tampon çözeltileriyle yüzey etkileşimleri ve bu etkileşimler üzerine pH'nın etkisini inceleyebilmek amacıyla membran yüzeyinin farklı pH değerlerindeki tampon ve Tartrazin çözeltileriyle yüzey temas açıları incelenmiş, elde edilen veriler Şekil 8.22 ve Çizelge 8.3 de verilmiştir.



Şekil 8.22. Selüloz destek tabakalı AA/Al₂O₃ kompozit membranında (a) tampon ve (b) Tartrazinin temas açısı

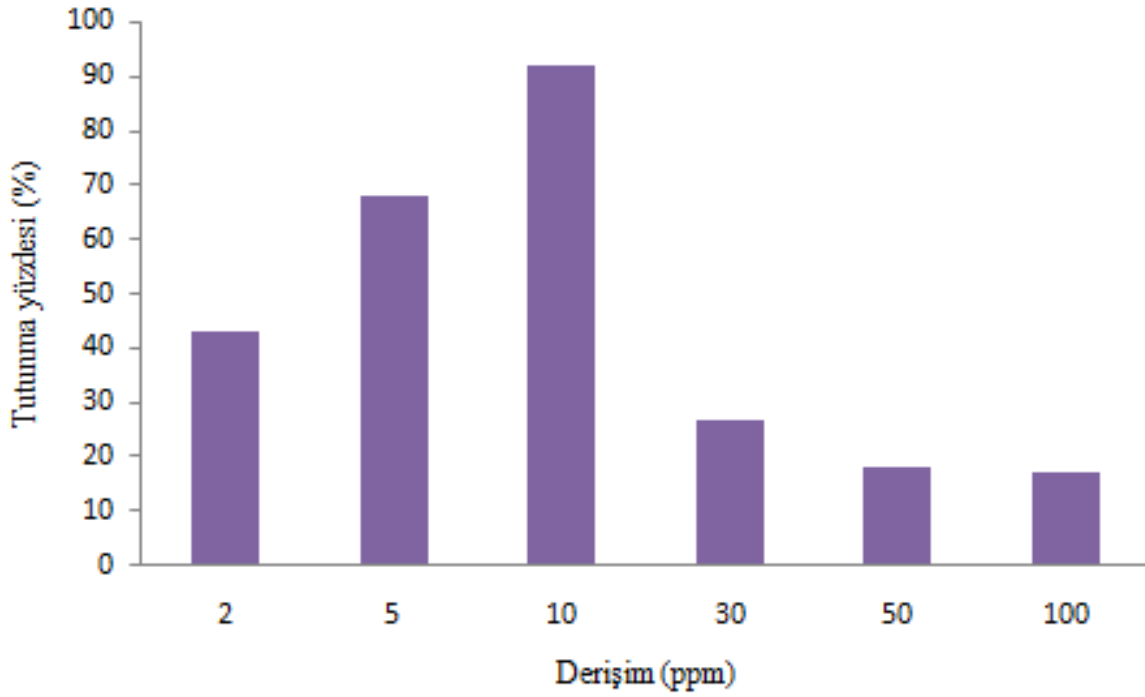
Çizelge 8.3. Selüloz destek tabakalı AA/Al₂O₃ kompozit membranında tampon ve Tartrazinin temas açıları

Aljinik asit (AA)/Al ₂ O ₃		Temas açısı (°)	
pH	Tampon	Tartrazin	
1.5	66±1	62±1	
2.5	58±1	54±1	
3.5	44±1	35±1	
4.5	72±1	70±1	
5.5	86±1	79±1	

Çizelge 8.3 den de açıkça görüldüğü gibi pH 3,5 değerinde yüzey temas açılarının en düşük değere ulaştığı belirlenmiştir. Temas açısındaki azalma yüzey ile daha güçlü sterik ve elektrostatik etkileşim olduğunun bir kanıtıdır [101]. Elde edilen verilerden yüksek tutunma yüzdesinin pH 3,5 da daha yüksek yüzdelerde olmasının düşük temas açısı ile örtüştüğü, pH ile tutunma yüzdelesindeki değişimin de elde edilen temas açıları ile uyumlu bir değişim gösterdiği belirlenmiştir. Bu gözlemler dikkate alındığında en düşük derişimin ve en yüksek tutunma yüzdesinin pH 3,5 da optimal olduğu belirlenmiştir.

8.7.3. AA/Al₂O₃ kompozit membranlarından tartrazinin uzaklaştırılmasına derişimin etkisi

AA/Al₂O₃ kompozit membranlarından tartrazinin uzaklaştırılmasına derişimin etkisini incelemek amacıyla 7 g Al₂O₃ kompozit kullanılarak hazırlanan selüloz destek tabakalı AA/Al₂O₃ kompozit membrandan pH 3,5 da farklı derişimlerde (2, 5, 10, 30, 50, 100 ppm) Tartrazin çözeltilerinin filtrasyonu yapılmış ve tutunma yüzdeleri hesaplanmıştır. Şekil 8.23 de selüloz destek tabakalı AA/ Al₂O₃ kompozit membranı kullanarak farklı derişimlerdeki tartrazin çözeltilerinin filtrasyonunda elde edilen tutunma yüzdeleri verilmiştir.



Şekil 8.23. AA /Al₂O₃ kompozit membranında tartrazin sulu çözeltilisinin filtrasyonunda derişimin etkisi (7g Al₂O₃, pH=3,5)

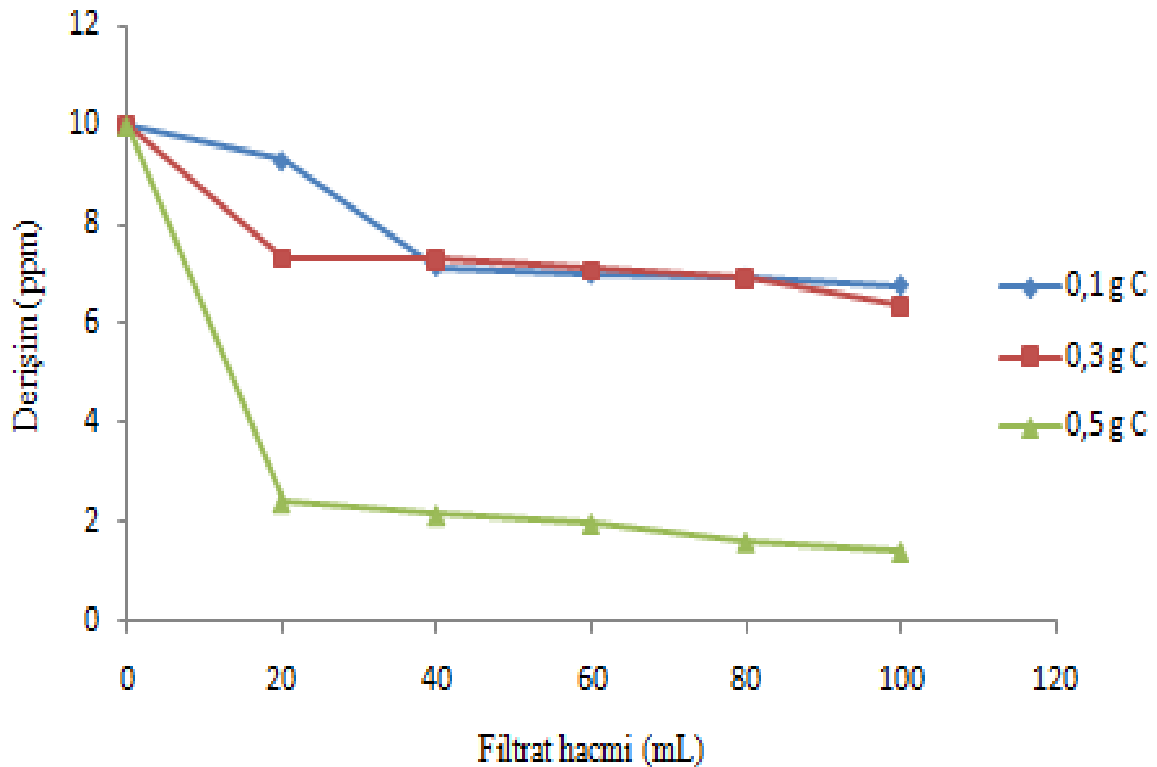
Grafikden de görüldüğü gibi AA/Al₂O₃ kompozit membranında farklı derişimlerde hazırlanan Tartrazin sulu çözeltilerinin filtrasyonunda, başlangıçta artan Tartrazin derişimi ile tutunma yüzdesinde bir artış olmuş, derişim 10 ppm e yükseldiğinde tutunma yüzdesi % 91,9 olduğu halde derişimin daha yüksek değerleri için tutunma yüzdesinde azalma gözlemlenmiştir. Bu durumunun, artan tartrazin miktarıyla doyunluğa erişen membran yüzeyinde tutunamayan tartrazinden kaynaklandığı düşünülmüştür [102, 65].

8.8. Aljinik Asit/C Kompozit Membranlardan Tartrazin Çözeltilerinin Filtrasyonu

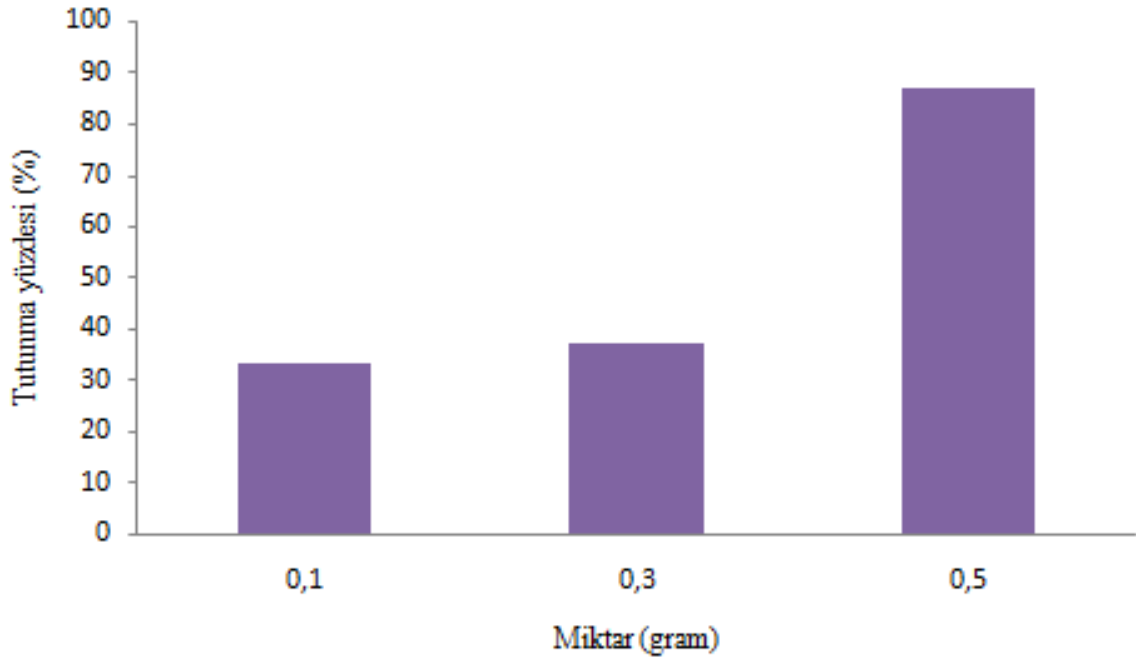
Selüloz destek tabakalı aljinik asit grafit kompozit membranı kullanılarak C katkısının Tartrazin tutunma yüzdesine etkisi incelenmiş kullanılan C miktarının, çözelti pH sın ve tartrazin çözelti derişiminin etkileri araştırılmıştır.

8.8.1. AA/C kompozit membranlarından filtrasyona C miktarının tutunma yüzdesine etkisi

Selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranlarından Tartrazin uzaklaştırılmasında kompozit miktarının filtrat derişimi ve tutunma yüzdesi üzerinde etkisini incelemek amacıyla AA membranlar üzerine farklı miktarlarda (0,1 - 0,5 g) C eklenerek hazırlanan kompozit membranlar kullanılarak 10 ppm Tartrazin çözeltilerinin filtrasyonuna çalışılmıştır. Bu amaçla pH 1,5 da hazırlanan Tartrazin çözeltileri filtrasyon işlemine tabi tutulmuş ve Şekil 8.24 ve 8.25 de sunulan sonuçlar elde edilmiştir.



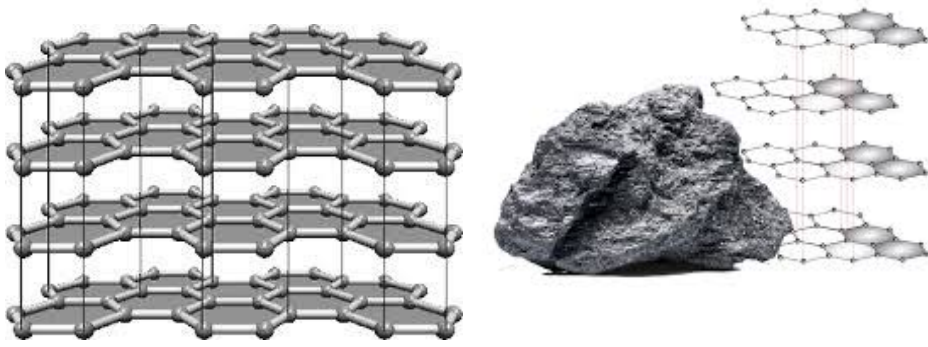
Şekil 8.24. Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda C miktarının derişim üzerinde etkisi (0,1; 0,3; 0,5 g C, Tartrazin derişim=10 ppm, pH=1,5)



Şekil 8.25. Tartrazinin sulu çözeltisinin filtrasyonunda AA/C kompozit membranının tutunma yüzdesi (farklı C miktarlarında)

Şekil 8.24 ve 8.25 den de görüldüğü gibi, membranlara eklenen C miktarının artmasıyla uzaklaştırılan Tartrazin miktarı 0,1- 0,3 g C için büyük bir değişim göstermemekle birlikte, filtrattaki en düşük tartrazin derişimi ve en yüksek tutunma yüzdesi 0,5 g kullanıldığında en yüksek tutunma yüzdesi elde edilmiştir.

Grafit - karbon atomları birbirleriyle kovalent tipi kimyasal bağlarla bağlanarak levhamsı düzlem oluşturan (C-C bağ uzunluğu: 0,134 nm), hekzagonal yapıda, yumuşak, yağlı, kâğıt üzerinde iz bırakan, siyah renkli, parlak katı bir maddedir (Şekil 8.26). Grafit karbonun en kararlı allotropu olup yüksek sıcaklıklara dayanabilen kristal yapıdadır. Erime sıcaklığı 3527°C dir ve yüksek elektrik iletkenliğine sahiptir. Organik maddelerin ve ağır metal iyonlarının zenginleştirilmesinde kullanılan dikkat çekici bir maddedir [102]. C katyon- π etkileşimleri yoluyla yüksek seçicilik gösteren bir materyal olarak anılmaktadır [108].

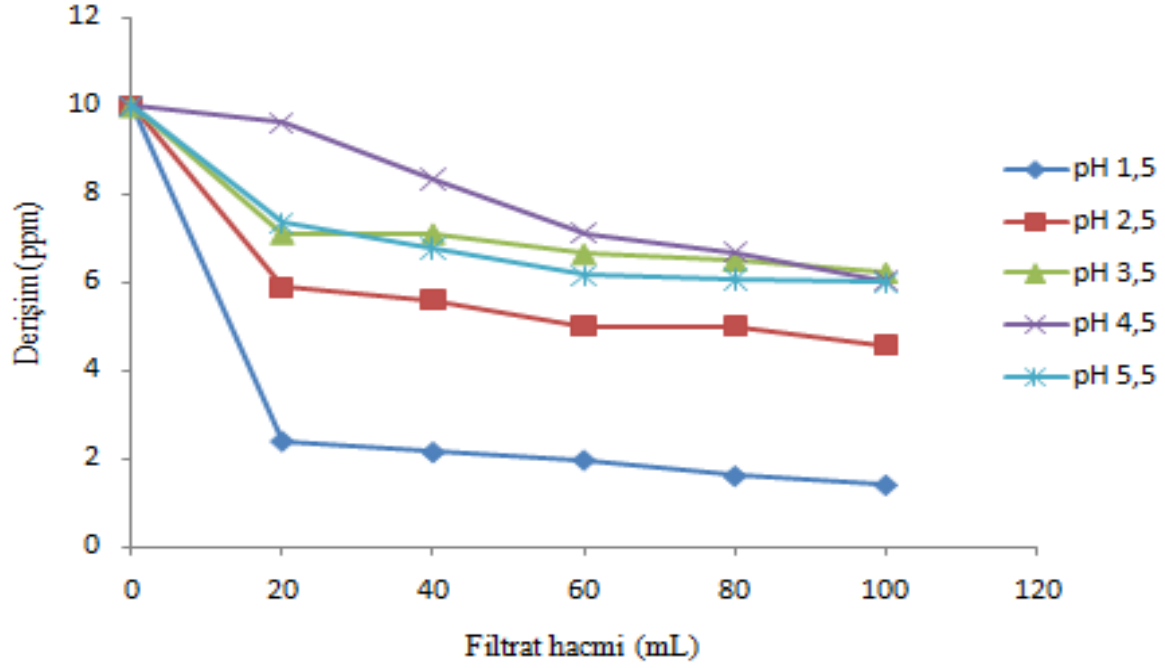


Şekil 8.26. Grafitin yapısı

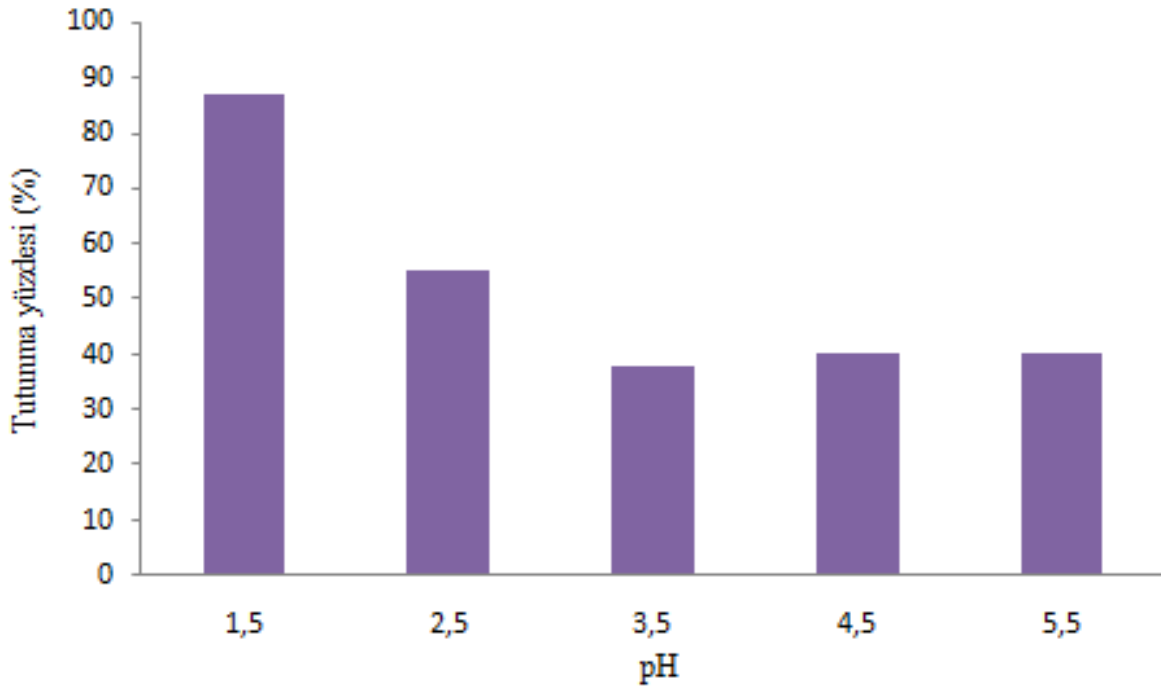
AA/C kompozit membranında, artan grafit miktarı ile Tartrazin tutunma yüzdesindeki artışın, daha fazla miktarda Tartrazinin tutunabileceği yüzeyin artmasından ve membran yüzeyinin katyon- π etkileşimleri sonucunda Tartrazin ile etkileşmesinden kaynaklandığı düşünülmektedir [108].

8.8.2. AA/C kompozit membranlarından tartrazinin uzaklaştırılmasına pH'nın etkisi

AA/C kompozit membranlardan Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonuna pH'nın etkisini araştırmak amacıyla, 0,5 g C içeren kompozit membranlar kullanılarak, Tartrazin çözeltilerinin pH'sı 1,5-5,5 aralığına ayarlanmıştır. Yapılan filtrasyon sonucunda, filtrat derişiminin filtrat hacmi ile deęişimi Şekil 8.27 de, tutunma yüzdelerinin pH ile deęişimi Şekil 8.28 de sunulmuştur.



Şekil 8.27. AA / C kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda pH'nin etkisi (0,5g C, pH=1,5; 2,5; 3,5; 4,5; 5,5, derişim=10 ppm)

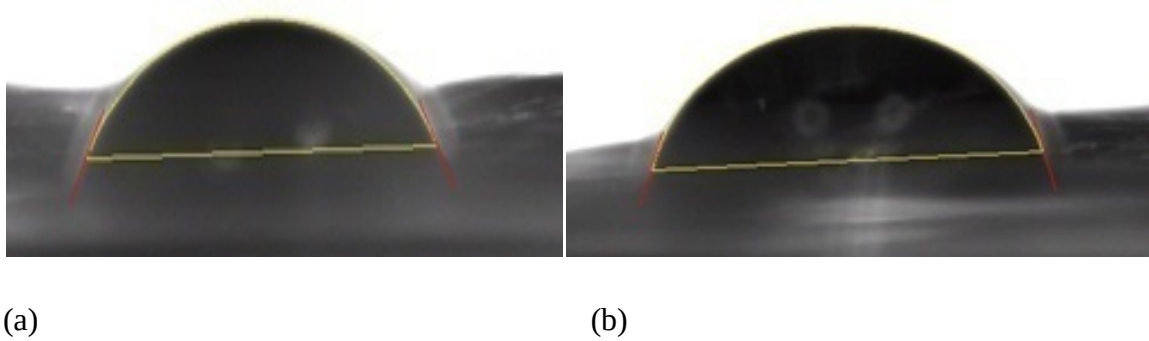


Şekil 8.28. AA/ C kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda pH'nin etkisinin tutunma yüzdesi (0,5g C, derişim=10 ppm)

Grafiklerden de görüldüğü gibi Tartrazinin maksimum uzaklaştırılmasının pH 1,5 da % 87 olduğu tespit edilmiştir. pH'nin 1,5 dan 5,5 a çıkarılması sırasında, Tartrazinin uzaklaştırılması % 87 den % 40 a hızla düşmüştür. Bunun başlıca nedeni, membranda yüzey yük durumlarının ve Tartrazin moleküllerinin yapısının pH a bağlı olmasıdır. Düşük

pH da Tartrazinin N=N atomları, $= N^+$ ya protonlanarak pozitif yüklü gruplar oluşur. Yüksek pH da ise Tartrazin yapısında aromatik halkalarda sülfonik grupların varlığından dolayı negatif yükler vardır. Sonuç olarak düşük pH da Tartrazinin protonlanmış yapısıyla membran yüzeyinin katyon- π etkileşimleri sonucunda daha yüksek verimde tutunmasına yol açtığı; yüksek pH değerlerinde ise anyonik yapıya sahip olan Tartrazinin, grafitin elektron dekolazasyonu oluşturabilen yapısı nedeniyle membran yüzeyinde oluşacak olası elektrostatik itmeler nedeniyle tutunma yüzdesinin azaldığı düşünülmüştür [108-110].

Selüloz destekli AA/C kompozit membranların Tartrazin ve tampon çözeltileriyle yüzey etkileşimleri ve bu etkileşimler üzerine pH'nın etkisini inceleyebilmek amacıyla membran yüzeyinin farklı pH değerlerindeki tampon ve Tartrazin çözeltileriyle yüzey temas açıları incelenmiş, elde edilen veriler Şekil 8.29 ve Çizelge 8.4 de verilmiştir.



Şekil 8.29. Selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranında (a) tampon ve (b) Tartrazinin temas açısı

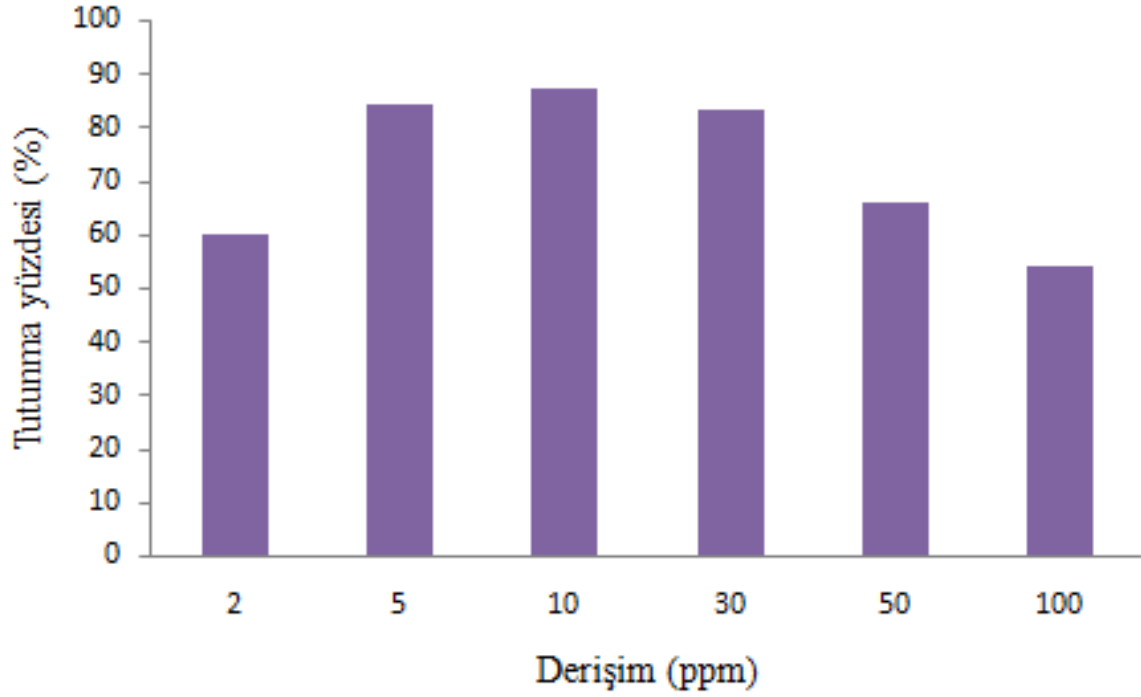
Çizelge 8.4. Selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranında tampon ve Tartrazinin temas açıları

Aljinik asit (AA)/C		Temas açısı (°)	
pH	Tampon	Tartrazin	
1.5	19±1	13±1	
2.5	32±1	30±1	
3.5	48±1	42±1	
4.5	62±1	56±1	
5.5	73±1	69±1	

Çizelge 8.4 den de görüldüğü gibi pH 1,5 değerinde yüzey temas açılarının en düşük değere ulaştığı belirlenmiştir. Temas açısındaki azalma yüzey ile daha güçlü elektrostatik çekim olduğunun bir kanıtıdır [110]. Elde edilen verilerden yüksek tutunma yüzdesinin pH 1,5 da daha yüksek yüzdelerde olmasının düşük temas açısı ile örtüştüğü, pH ile tutunma yüzdelerindeki değişimin de elde edilen temas açıları ile uyumlu bir değişim gösterdiği belirlenmiştir. Böylece, optimum pH değeri 1,5 olarak belirlenmiştir.

8.8.3. AA/C kompozit membranlarından tartrazinin uzaklaştırılmasına derişimin etkisi

AA/C kompozit membranlarından Tartrazinin uzaklaştırılmasına derişimin etkisini incelemek amacıyla 0,5 g C kompozit kullanılarak hazırlanan selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membrandan pH 1,5 da farklı derişimlerde (2, 5, 10, 30, 50, 100 ppm) Tartrazin çözeltilerinin filtrasyonu yapılmış ve tutunma yüzdeleri hesaplanmıştır. Şekil 8.30 da selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranı kullanarak farklı derişimlerde elde edilen tutunma yüzdeleri verilmiştir.



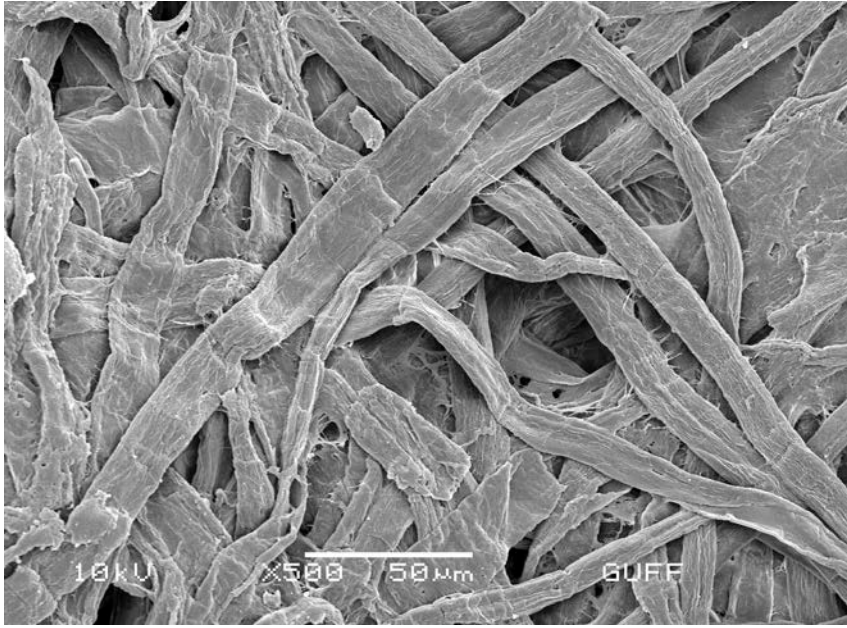
Şekil 8.30. AA/C kompozit membranında Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda derişimin etkisi (0,5 g C, pH=1,5)

Şekil 8.30 dan da görüldüğü gibi AA/C kompozit membranında farklı derişimlerde hazırlanan Tartrazin sulu çözeltilerinin filtrasyonunda derişim 10 ppm e yükseldiğinde tutunma yüzdesi % 87 olduğu halde derişimin artmasıyla tutunma yüzdesinde azalma gözlemlenmiş ve % 54 olduğu belirlenmiştir. Bu durumun, membran yüzeyinin belli bir derişim değerinin üzerinde doygunluğa ulaşmasından kaynaklandığı düşünülmüştür [110].

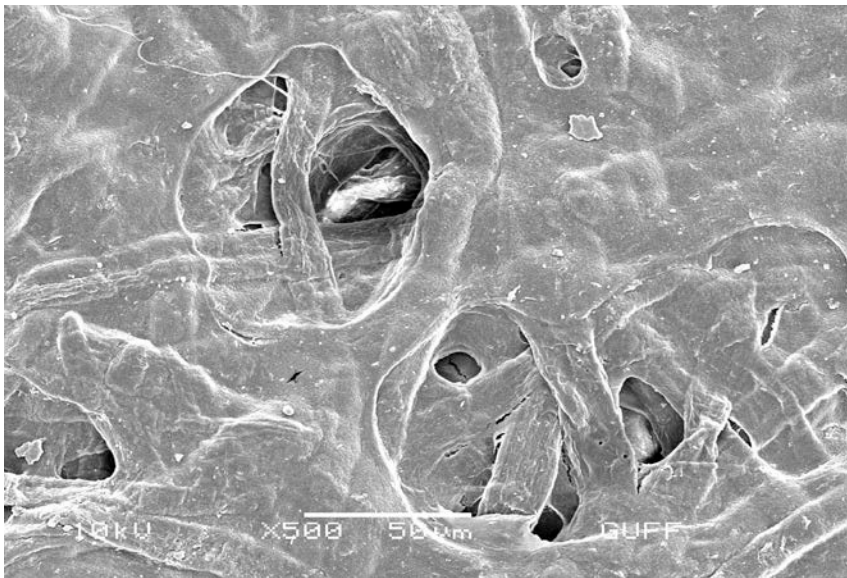
9. AA, AA/C ve AA/Al₂O₃ MEMBRANLARIN KARŞILAŞTIRILMASI

Çalışmamızda hazırladığımız membranların, morfolojik özellikleri bakımından inceleyerek karşılaştırmak amacıyla SEM analizleri yapılmıştır.

Şekil 8.31 - 8.32 de destek tabakası olarak kullanılan selüloz ve AA ile kaplı selüloz destek tabakalı membran verilmektedir.



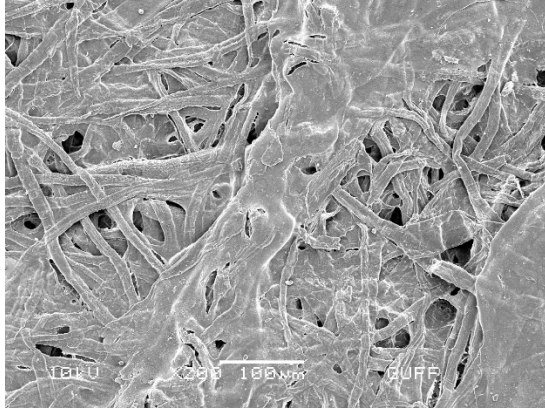
Şekil 8.31. Selüloz destek tabakasının SEM görüntüsü



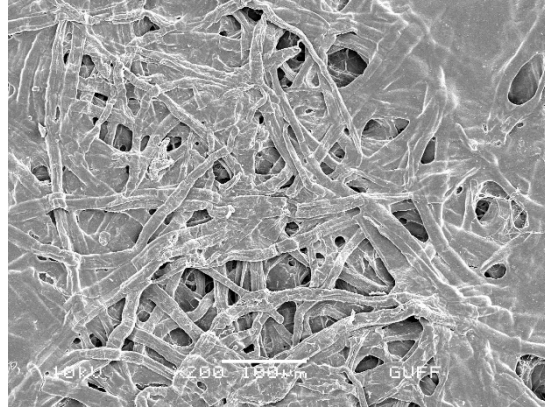
Şekil 8.32. AA ile kaplanmış selüloz destek tabakasının SEM görüntüsü (20/80 mL % 0,75 (m/v) AA)

Şekil 8.31 - 8.32 den de görüldüğü gibi selüloz destek tabakasının AA polimeri ile bütünüyle örtüldüğü belirlenmiştir.

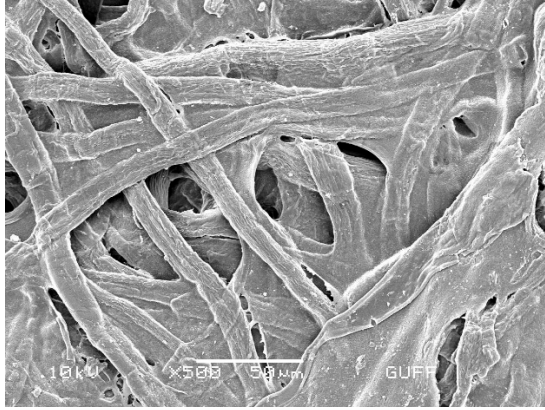
Şekil 8.33 - 8.34 de Selüloz destek tabakalı AA kaplanmış membranların alt/ üst yüzey ve kesit görüntüleri verilmektedir.



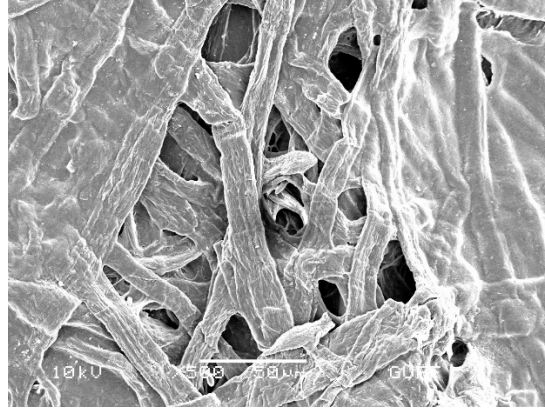
X200 AA ALT



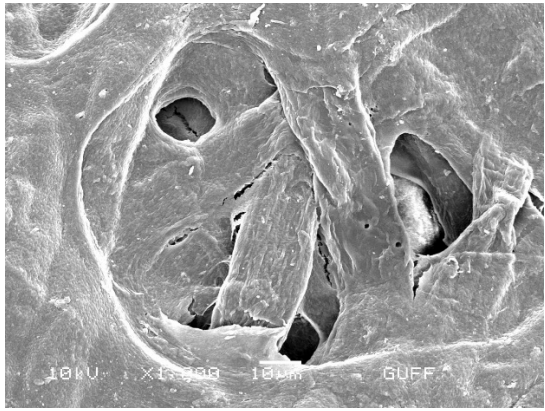
X200 AA ÜST



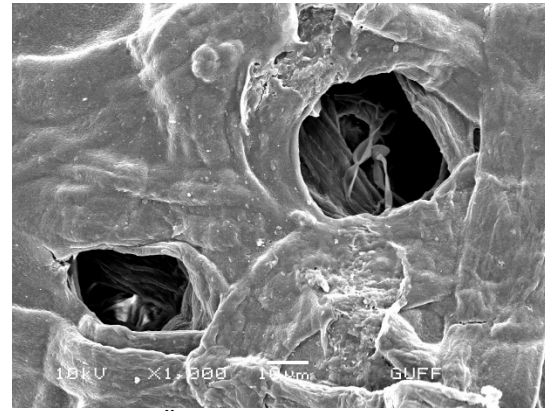
X500 AA ALT



X500 AA ÜST

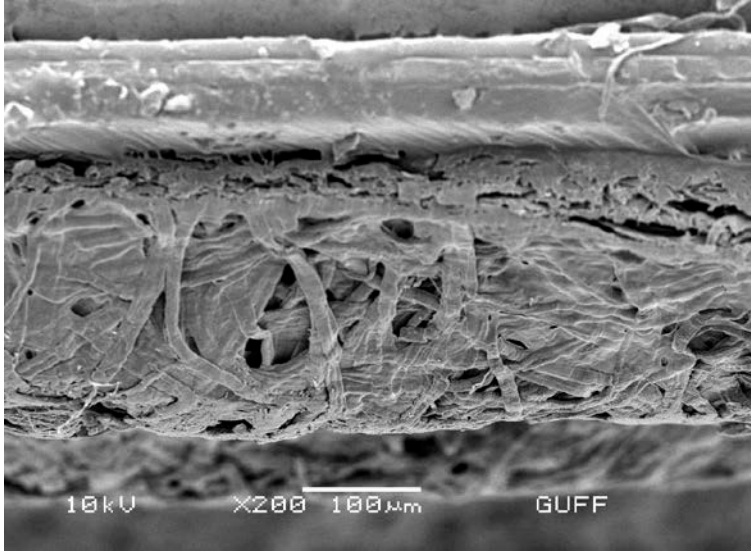


X1000 AA ALT

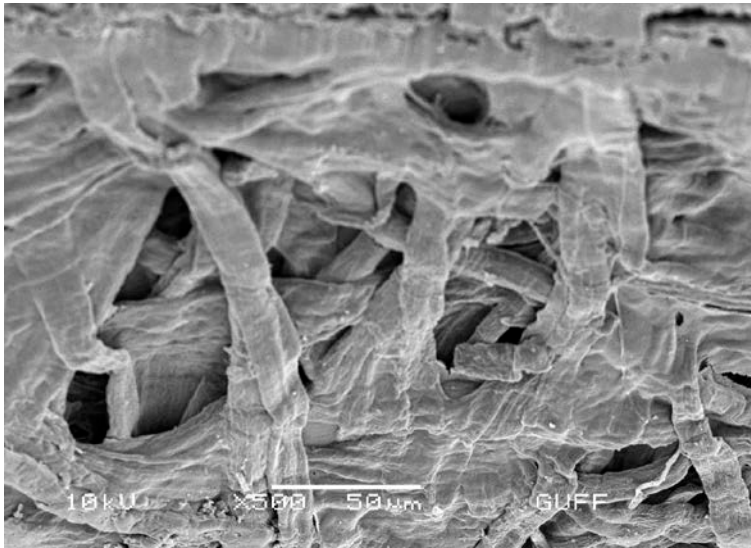


X1000 AA ÜST

Şekil 8.33. Selüloz destek tabakalı AA kaplanmış membranların alt ve üst yüzey SEM görüntüleri



(a)

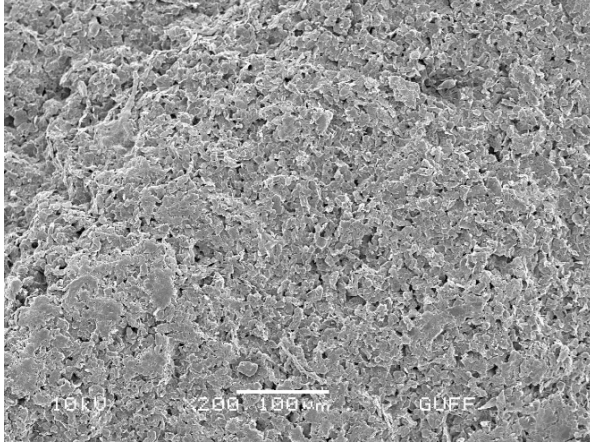


(b)

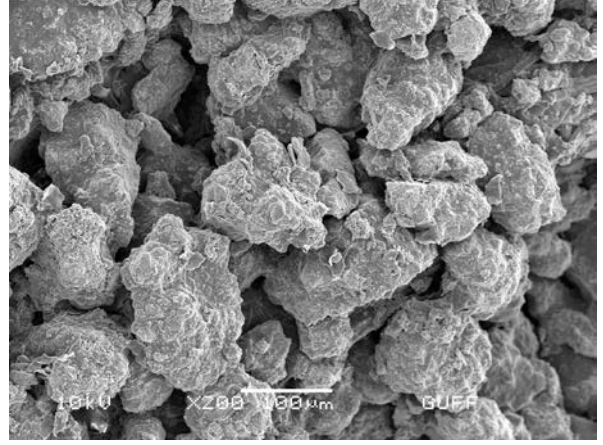
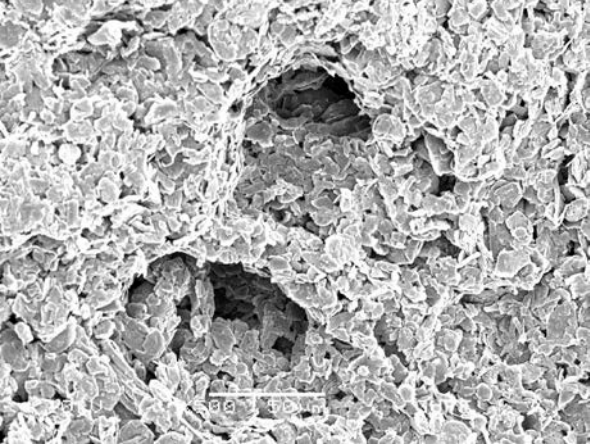
Şekil 8.34. Selüloz destek tabakalı AA kaplanmış membran kesitlerinin SEM görüntüleri (a) X200 (b) X500

Şekil 8.33 - 8.34 e baktığımızda polimerin selüloz destek tabakasında homojen dağılmış ve kesit görüntülerinden de görüldüğü gibi AA polimeri selüloz destek tabakasının tüm liflerinin etrafını sardığı belirlenmiştir.

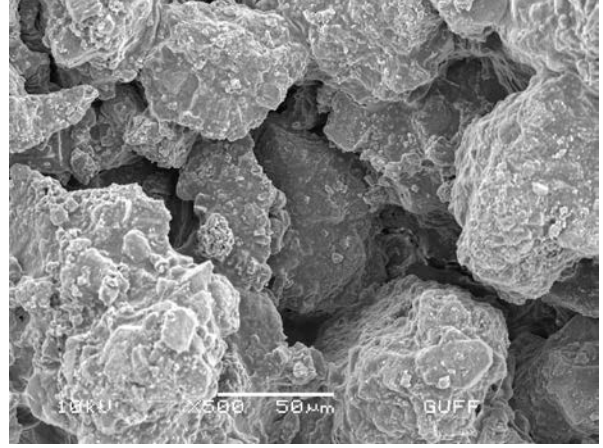
Selüloz destek tabakalı AA/C ve AA/Al₂O₃ membranlarının yüzey ve kesit SEM görüntüleri Şekil 8.35 ve Şekil 8.36 - 8.37 de verilmiştir.



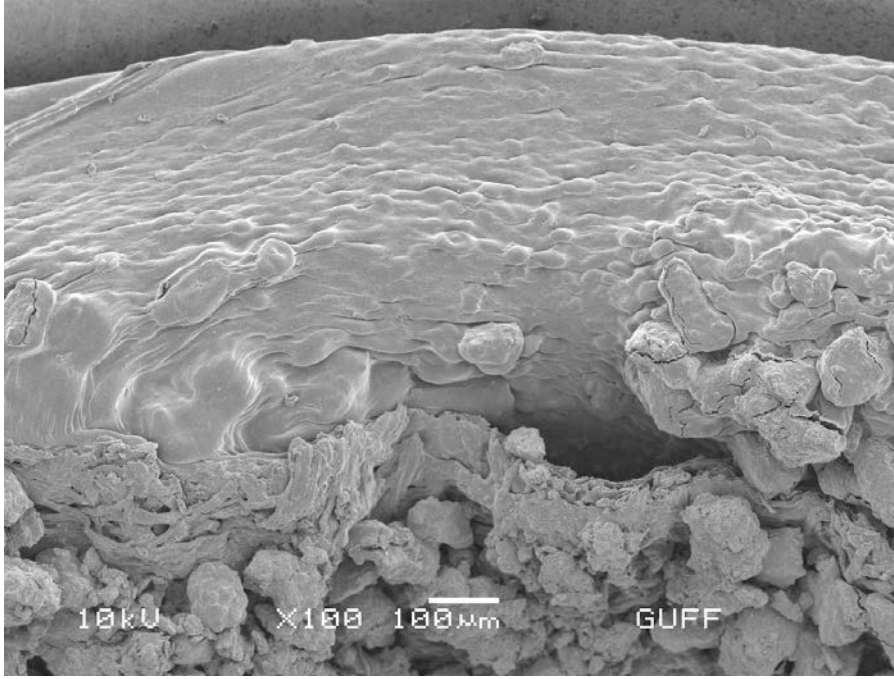
X200 AA/C

X200 AA/Al₂O₃

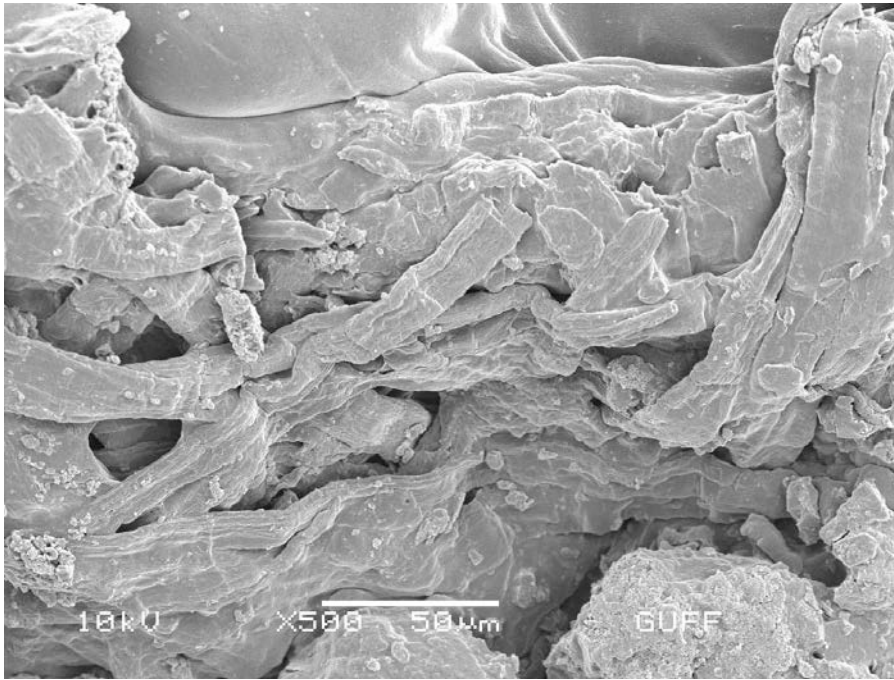
X500 AA/C

X500 AA/Al₂O₃

Şekil 8.35. Selüloz destek tabakalı AA/C ve AA/Al₂O₃ membranlarının SEM görüntüleri

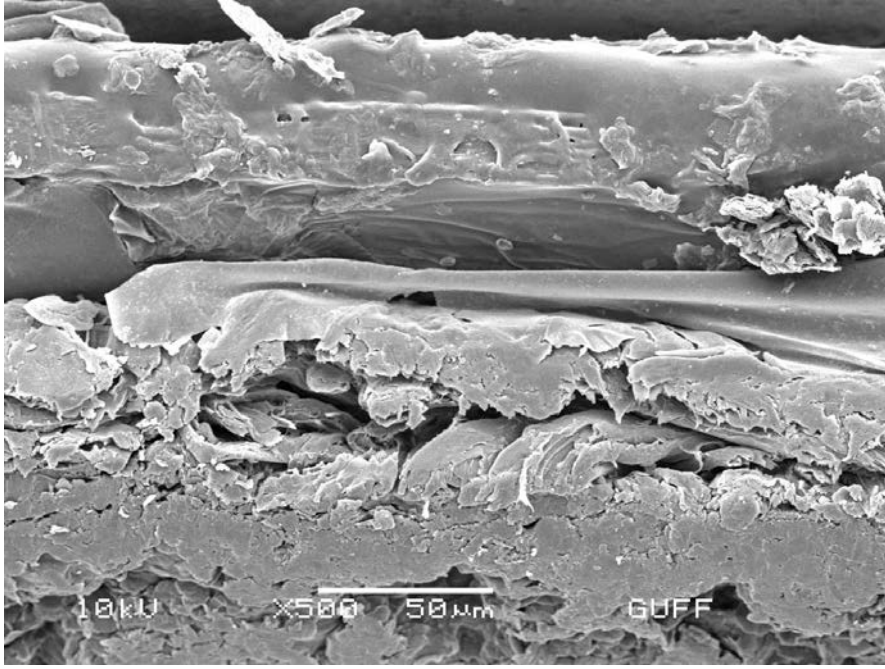


(a)

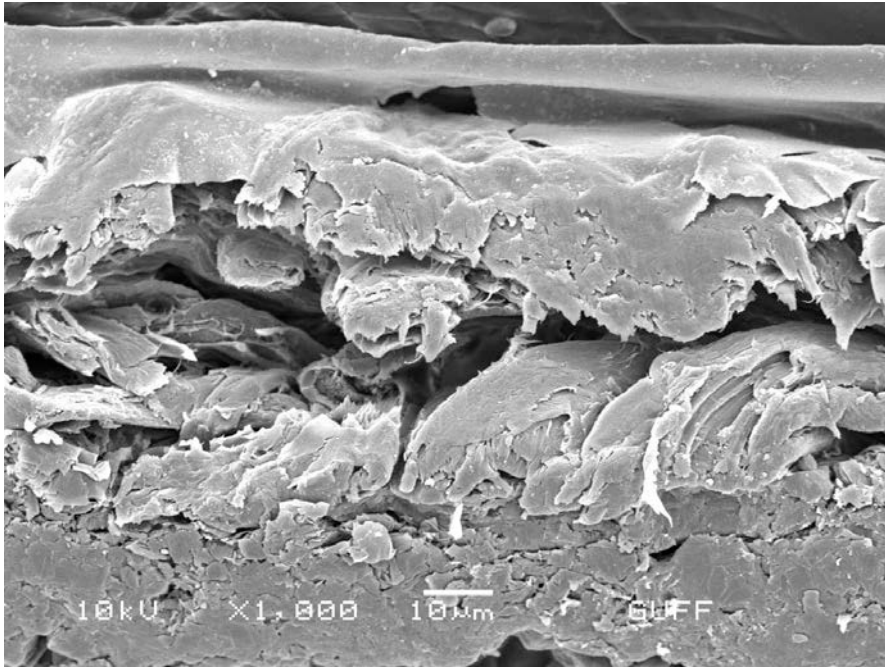


(b)

Şekil 8.36. Selüloz destek tabakalı AA/Al₂O₃ membranların kesit SEM görüntüleri (a) X100 (b) X500



(a)



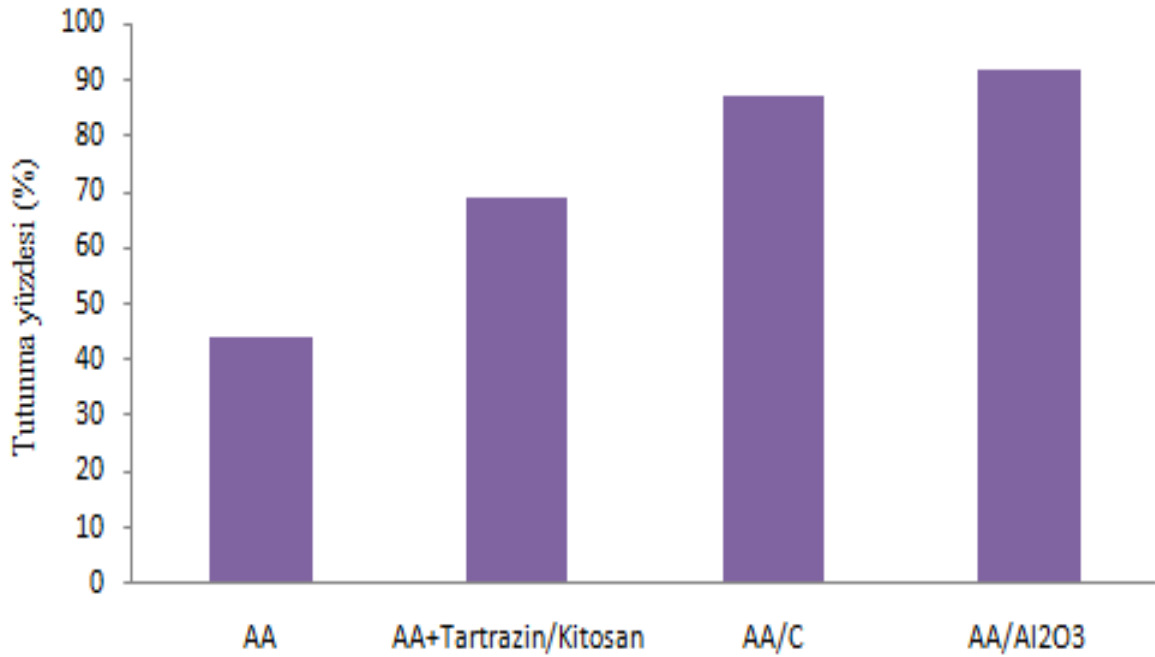
(b)

Şekil 8.37. Selüloz destek tabakalı AA/C membranların kesit SEM görüntüleri (a) X500 (b) X1000

Şekillerden de görüldüğü gibi AA/C membranlarında küçük partikül dağılımı olduğu, AA/Al₂O₃ membranlarında ise büyük partiküllerle membranın sarıldığı gözlemlenmiştir.

Membranların kesit SEM görüntülerine baktığımızda da ilave edilen katkı maddelerimiz C ve Al_2O_3 patiküllerinin membranın tüm gözeneklerinin etrafına sarıldığı belirlenmiştir.

Sellüloz destek tabakalı AA, AA/C ve AA/ Al_2O_3 membranlarının yüzey SEM görüntüleriyle destekleyerek tutunma yüzdeleri karşılaştırmak amacıyla, Tartrazin sulu çözeltilerinin filtrasyonundaki tutunma yüzdeleri Şekil 8.38 de özetlenmiştir.



Şekil 8.38. AA, AA/C ve AA/ Al_2O_3 membranlarından Tartrazin sulu çözeltisinin filtrasyonunda tutunma yüzdeleri

Şekil 8.38 den de görüldüğü gibi tutunma yüzdesi AA membranında Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan için % 44 ve % 69 olduğu halde kompozit kullanılarak hazırlanan AA/C ve AA/ Al_2O_3 membranlarında tutunma yüzdesi sırasıyla % 87, % 91,9 verimle elde edilmiştir. AA/ Al_2O_3 membranların daha geniş yüzey alanı tutunma yüzdesine daha büyük katkı sağlamıştır.

10. SONUÇLAR

1. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranlar ile Tartrazinin sulu çözeltilerden filtrasyonunda membranın kalınlığı incelenmiştir. Genel olarak membranın kalınlığı arttıkça tutunmanın arttığı, tespit edilen kalınlığın üstünde ise akının düştüğü, tutunmanın azaldığı, kısa zamanda membranın tılandığı ve geçişlerin olmadığı bulunmuştur. En yüksek tutunma % 0,75 (m/v) 100 mL aljinik asit kullanılarak hazırlanan 110 ± 10 μm kalınlığındaki membranlarla % 44 verimle elde edilmiştir.

2. Selüloz destek tabakalı AA membranlardan Tartrazinin uzaklaştırılmasına pH'nın etkisini incelenmiştir. 110 ± 10 μm kalınlıktaki membranlar kullanılarak pH 1,5 - 5,5 aralığında hazırlanan 100 ppm Tartrazin çözeltilerinin filtrasyonunda asidik ortamda tutunma yüzdesi artmış, pH değerindeki artışla tutunma yüzdesi azalmış ve en yüksek tutunma yüzdesi pH 3,5 da elde edilmiştir.

3. Selüloz destek tabakalı aljinik asit membranlarından Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonunda derişimin etkisi araştırılmış, derişim arttıkça tutunmanın azaldığı gözlemlenmiştir. 110 ± 10 μm kalınlığındaki membran kullanılarak pH 3,5 da Tartrazin ve Tartrazin/Kitosan kompleksinin filtrasyonunda 10 ppm, 20 ppm, ve 30 ppm derişimler için tutunma yüzdeleri sırasıyla % 44, % 69, % 35 ve % 53, % 20 ve % 50 olarak bulunmuştur.

4. Selüloz destek tabakalı AA/ Al_2O_3 kompozit membranıyla Tartrazinin sulu çözeltilerden filtrasyonunda Al_2O_3 miktarının etkisi incelenmiştir. Al_2O_3 miktarının artmasıyla tutunma yüzdesi artmış ve en yüksek uzaklaştırılma 7 g Al_2O_3 içerikli selüloz destek tabakalı membran kullanılarak % 91,9 olarak bulunmuştur.

5. Selüloz destek tabakalı AA/ Al_2O_3 kompozit membranıyla Tartrazinin sulu çözeltilerinin filtrasyonuna pH'nın etkisi araştırılmış ve en yüksek tutunma yüzdesi pH 3,5 da elde edilmiştir.

6. Selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranıyla Tartrazinin sulu çözeltilerden filtrasyonunda C miktarının etkisi incelenmiştir. C miktarının artmasıyla tutunma yüzdesi

artmış ve en yüksek tutunma yüzdesi 0,5 g C kullanılarak hazırlanan selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranıyla % 87 olarak bulunmuştur.

7. Selüloz destek tabakalı AA/C kompozit membranıyla Tartrazinin sulu çözeltilerinin filtrasyonuna pH'nın etkisi araştırılmış ve en yüksek tutunma yüzdesi pH 1,5'de elde edilmiştir.

KAYNAKLAR

1. Dilrukshi, P. T., Munasinghe, H., Silva, A. B. G., and De Silva, P. G. S. M. (2019). Identification of Synthetic Food Colours in Selected Confectioneries and Beverages in Jaffna District, Sri Lanka. *Journal of Food Quality*, 1-8.
2. Zhang, R., Zhang, M., Zhang, Y., Yan, H., Li, X., and Xie, W. H. (2019). The simultaneous detection of food dyes from different samples in a 96-well plate by spectrophotometry. *Analytical Methods*, 11(45), 5793-5802.
3. Pieczykolan, B., and Plonka, I. (2019). Application of excess activated sludge as waste sorbent for dyes removal from their aqueous solutions. *Ecological Chemistry and Engineering S*, 26(4), 773-784.
4. Sahnoun, S., and Boutahala, M. (2018). Adsorption removal of tartrazine by chitosan/polyaniline composite: kinetics and equilibrium studies. *International Journal of Biological Macromolecules*, 114, 1345-1353.
5. Banerjee, S., and Chattopadhyaya, M. C. (2017). Adsorption characteristics for the removal of a toxic dye, tartrazine from aqueous solutions by a low cost agricultural by-product. *Arabian Journal of Chemistry*, 10, 1629-1638.
6. Reck, I. M., Paixão, R. M., Bergamasco, R., Vieira, M. F., and Vieira, A. M. S. (2018). Removal of tartrazine from aqueous solutions using adsorbents based on activated carbon and Moringa oleifera seeds. *Journal of Cleaner Production*, 171, 85-97.
7. Bacioiu, I. G., Stoica, L., Constantin, C., and Stanescu, A. M. (2017). Removal of tartrazine from aqueous solution by adsorption on activated red mud. *Water, Air, and Soil Pollution*, 228(8), 298-307.
8. Vieira, M. L., Martinez, M. S., Santos, G. B., Dotto, G. L., and Pinto, L. A. (2018). Azo dyes adsorption in fixed bed column packed with different deacetylation degrees chitosan coated glass beads. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 6(2), 3233-3241.
9. Aliabadi, R. S., and Mahmoodi, N. O. (2018). Synthesis and characterization of polypyrrole, polyaniline nanoparticles and their nanocomposite for removal of azo dyes; sunset yellow and Congo red. *Journal of Cleaner Production*, 179, 235-245.
10. Aoudjit, L., Martins, P. M., Madjene, F., Petrovykh, D. Y., and Lanceros-Mendez, S. (2018). Photocatalytic reusable membranes for the effective degradation of tartrazine with a solar photoreactor. *Journal of hazardous materials*, 344, 408-416.
11. Sebti, A., Souahi, F., Mohellebi, F., and Igoud, S. (2017). Experimental study and artificial neural network modeling of tartrazine removal by photocatalytic process under solar light. *Water Science and Technology*, 76(2), 311-322.
12. Zhang, C., Ren, G., Wang, W., Yu, X., Yu, F., Zhang, Q., and Zhou, M. (2019). A new type of continuous-flow heterogeneous electro-Fenton reactor for Tartrazine degradation. *Separation and Purification Technology*, 208, 76-82.

13. Albadarin, A. B., Charara, M., Tarboush, B. J. A., Ahmad, M. N. M., Kurniawan, T. A., Naushad, M., and Mangwandi, C. (2017). Mechanism analysis of tartrazine biosorption onto masau stones; a low cost by-product from semi-arid regions. *Journal of Molecular Liquids*, 242, 478-483.
14. Vedat Uyak, Serkan Güçlü ve İsmail Koyuncu. (2018). *Membran teknolojileri ve su arıtma*. (Birinci baskı). Ankara: Türkiye çevre koruma vakfı, 53-57.
15. Kislik, V. S. (Ed.). (2009). *Liquid membranes: principles and applications in chemical separations and wastewater treatment*. Burlington: Elsevier, 1-15.
16. Jokić, A., Pajčin, I., Grahovac, J., Lukić, N., Dodić, J., Rončević, Z., and Šereš, Z. (2020). Improving energy efficiency of *Bacillus velezensis* broth microfiltration in tubular ceramic membrane by air sparging and turbulence promoter. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, 95(4), 1110-1115.
17. Marszałek, A., and Puszczalo, E. (2020). Effect of Photooxidation on Nanofiltration Membrane Fouling During Wastewater Treatment from the Confectionery Industry. *Water*, 12(3), 793-806.
18. Zhang, X., Li, H., Wang, J., Peng, D., Liu, J., and Zhang, Y. (2019). In-situ grown covalent organic framework nanosheets on graphene for membrane-based dye/salt separation. *Journal of Membrane Science*, 581, 321-330.
19. Rajakumaran, R., Boddu, V., Kumar, M., Shalaby, M. S., Abdallah, H., and Chetty, R. (2019). Effect of ZnO morphology on GO-ZnO modified polyamide reverse osmosis membranes for desalination. *Desalination*, 467, 245-256.
20. Wang, H., Zhao, S., Liu, Y., Yao, R., Wang, X., Cao, Y., and Wang, B. (2019). Membrane adsorbers with ultrahigh metal-organic framework loading for high flux separations. *Nature communications*, 10(1), 1-9.
21. Cheng, P., Chen, Y., Gu, Y. H., Yan, X., and Lang, W. Z. (2019). Hybrid 2D WS₂/GO nanofiltration membranes for finely molecular sieving. *Journal of Membrane Science*, 591, 117308-117316.
22. Hakami, M. W., Alkhudhiri, A., Zacharof, M. P., and Hilal, N. (2019). Towards a sustainable water supply: Humic acid removal employing coagulation and tangential cross flow microfiltration. *Water*, 11(10), 2093-2110.
23. Ng, Q. H., Lim, J. K., Shuit, S. H., and Low, S. C. (2019). Feasibility and Practicability of Magnetophoretic-Augmented Composite Membrane in Treating Polluted River Water: Real Case Application. *Environmental Progress and Sustainable Energy*, 38(5), 13185.
24. Behroozi, A. H., Kasiri, N., and Mohammadi, T. (2019). Empirical modeling coupled with pore blocking for predicting cake formation of electric field effects on oily waste water cross-flow microfiltration. *Journal of Membrane Science*, 584, 120-136.

25. Arahman, N., Mulyati, S., Fahrina, A., Muchtar, S., Yusuf, M., Takagi, R., and Bilad, M. R. (2019). Improving Water Permeability of Hydrophilic PVDF Membrane Prepared via Blending with Organic and Inorganic Additives for Humic Acid Separation. *Molecules*, 24(22), 4099.
26. Guerrini, L., Calamai, L., Cappelli, A., Angeloni, G., Masella, P., and Parenti, A. (2019). Cross-flow filtration of lees grape juice for non-aromatic white wine production: a case study on an Italian PDO. *European Food Research and Technology*, 245(12), 2697-2703.
27. Beluci, N. D. C. L., Mateus, G. A. P., Miyashiro, C. S., Homem, N. C., Gomes, R. G., Fagundes-Klen, M. R., and Vieira, A. M. S. (2019). Hybrid treatment of coagulation/flocculation process followed by ultrafiltration in TiO₂-modified membranes to improve the removal of reactive black 5 dye. *Science of the Total Environment*, 664, 222-229.
28. Yu, W., Liu, Y., Xu, Y., Li, R., Chen, J., Liao, B. Q., and Lin, H. (2019). A conductive PVDF-Ni membrane with superior rejection, permeance and antifouling ability via electric assisted in-situ aeration for dye separation. *Journal of Membrane Science*, 581, 401-412.
29. Parakala, S., Moulik, S., and Sridhar, S. (2019). Effective separation of methylene blue dye from aqueous solutions by integration of micellar enhanced ultrafiltration with vacuum membrane distillation. *Chemical Engineering Journal*, 375, 122015.
30. Bouazizi, A., Breida, M., Achiou, B., Ouammou, M., Calvo, J. I., Aaddane, A., and Younssi, S. A. (2017). Removal of dyes by a new nano-TiO₂ ultrafiltration membrane deposited on low-cost support prepared from natural Moroccan bentonite. *Applied clay science*, 149, 127-135.
31. Liu, Y., Zhu, W., Guan, K., Peng, C., and Wu, J. (2018). Freeze-casting of alumina ultra-filtration membranes with good performance for anionic dye separation. *Ceramics International*, 44(10), 11901-11904.
32. Zavastin, D. E., Gherman, S. I. M. O. N. A., and Cretescu, I. G. O. R. (2012). Removal of direct blue dye from aqueous solution using new polyurethane-cellulose acetate blend micro-filtration membrane. *Rev Chim*, 63(10), 1075.
33. İnternet: Gıda Boyası, URL: <https://wmaraci.com/nedir/gida-boyasi>, Son Erişim Tarihi: 20.03.2020.
34. İnternet: Dyeing process/Different types of dyes/Classifacation of dyes, URL: https://textilelearner.blogspot.com/2011/07/dyeing-process-different-types-of-dye_1720.html, Son Erişim Tarihi: 03.07.2020.
35. İnternet: Gıda Boyası, URL: https://tr.qwe.wiki/wiki/Food_coloring, Son Erişim Tarihi: 20.03.2020.
36. İnternet: Gıda Boyası, URL: https://en.wikipedia.org/wiki/Food_coloring#cite_ref-6, Son Erişim Tarihi: 27.04.2020.

37. İnternet: Avrupa birliğinde gıda renklerinin düzenlenmesi, URL: <http://www.kimyaevi.org/TR/Genel/BelgeGoster.aspx?F6E10F8892433CFF7EE1F1486EE5030EB3C88D4C36927DEF>, Son Erişim Tarihi: 27.04.2020.
38. İnternet: E kodları listesi ve anlamları, URL: <https://www.gidahatti.com/e-kodlari-nedir-e-kodlari-listesi-e-kodlari-ve-anlamlari-140174/>, Son Erişim Tarihi: 03.07.2020.
39. İnternet: Gıda Boyası, URL: <https://wmaraci.com/nedir/gida-boyasi#:~:text=Do%C4%9Fal%20G%C4%B1da%20Boyas%C4%B1%20Nedir%3F,i%C3%A7in%20t%C3%BCketiciler%20taraf%C4%B1ndan%20tercih%20edilmektedir>, Son Erişim Tarihi: 03.07.2020.
40. Ameer, F. Z., Mehedi, N., Rivas, C. S., Gonzalez, A., Kheroua, O., and Saidi, D. (2020). Effect of tartrazine on digestive enzymatic activities: in vivo and in vitro studies. *Toxicological Research*, 36(2), 159-166.
41. İnternet: Tartrazin (E102), URL: [https://ansiklopedi.halisinden.com/Tartrazin_\(E102\)](https://ansiklopedi.halisinden.com/Tartrazin_(E102)), Son Erişim Tarihi: 27.04.2020.
42. Jadhav, S., and Jaspal, D. (2020). Adsorptive eradication of tartrazine from aqueous solutions onto doped polyaniline. *Journal of the Serbian Chemical Society*, 85(2), 251-263.
43. Rovina, K., Siddiquee, S., and Shaarani, S. M. (2017). A review of extraction and analytical methods for the determination of tartrazine (E 102) in foodstuffs. *Critical Reviews in Analytical Chemistry*, 47(4), 309-324.
44. Gümrükçüoğlu, A., Başoğlu, A., Kolaylı, S., Dinç, S., Kara, M., Ocak, M., ve Ocak, Ü. (2020). Highly sensitive fluorometric method based on nitrogen-doped carbon dot clusters for tartrazine determination in cookies samples. *Turkish Journal of Chemistry*, 44(1), 99-111.
45. İnternet: Tartrazin, URL: <https://www.acarchemicals.com/sayfalar.asp>, Son Erişim Tarihi: 27.04.2020.
46. İnternet: Health effects of yellow 5 food coloring, URL: <https://www.livestrong.com/article/370945-health-effects-of-yellow-5-food-coloring>, Son Erişim Tarihi: 27.04.2020.
47. İnternet: Tartrazine, URL: https://www.naturalnews.com/032169_tartrazine_food_colors.html, Son Erişim Tarihi: 27.04.2020.
48. Dorraji, P. S., and Jalali, F. (2017). Electrochemical fabrication of a novel ZnO/cysteic acid nanocomposite modified electrode and its application to simultaneous determination of sunset yellow and tartrazine. *Food chemistry*, 227, 73-77.
49. Hu, D., Wan, X., Li, X., Liu, J., and Zhou, C. (2017). Synthesis of water-dispersible poly-l-lysine-functionalized magnetic Fe₃O₄-(GO-MWCNTs) nanocomposite hybrid with a large surface area for high-efficiency removal of tartrazine and Pb (II). *International journal of biological macromolecules*, 105, 1611-1621.

50. Zhang, L., Sellaoui, L., Franco, D., Dotto, G. L., Bajahzar, A., Belmabrouk, H., and Li, Z. (2020). Adsorption of dyes brilliant blue, sunset yellow and tartrazine from aqueous solution on chitosan: Analytical interpretation via multilayer statistical physics model. *Chemical Engineering Journal*, 382, 122952.
51. Darwish, M., Mohammadi, A., and Assi, N. (2016). Microwave-assisted polyol synthesis and characterization of pvp-capped cds nanoparticles for the photocatalytic degradation of tartrazine. *Materials Research Bulletin*, 74, 387-396.
52. Naama, S., Hadjersi, T., Menari, H., Nezzal, G., Ahmed, L. B., and Lamrani, S. (2016). Enhancement of the tartrazine photodegradation by modification of silicon nanowires with metal nanoparticles. *Materials Research Bulletin*, 76, 317-326.
53. Souza, I. P., Pezoti, O., Bedin, K. C., Cazetta, A. L., Melo, S. A., Souza, L. S., and Almeida, V. C. (2018). Chemometric study of thermal treatment effect on the P25 photoactivity for degradation of tartrazine yellow dye. *Ceramics International*, 44(11), 12292-12300.
54. dos Santos, T. C., Zocolo, G. J., Morales, D. A., de Aragão Umbuzeiro, G., and Zanoni, M. V. B. (2014). Assessment of the breakdown products of solar/UV induced photolytic degradation of food dye tartrazine. *Food and chemical toxicology*, 68, 307-315.
55. Tekin, G., Ersöz, G., and Atalay, S. (2018). Visible light assisted Fenton oxidation of tartrazine using metal doped bismuth oxyhalides as novel photocatalysts. *Journal of environmental management*, 228, 441-450.
56. Chekir, N., Tassalit, D., Benhabiles, O., Merzouk, N. K., Ghenna, M., Abdessemed, A., and Issaadi, R. (2017). A comparative study of tartrazine degradation using UV and solar fixed bed reactors. *International journal of hydrogen energy*, 42(13), 8948-8954.
57. Bahadori, E., Vaiano, V., Esposito, S., Armandi, M., Sannino, D., and Bonelli, B. (2018). Photo-activated degradation of tartrazine by H₂O₂ as catalyzed by both bare and Fe-doped methyl-imogolite nanotubes. *Catalysis Today*, 304, 199-207.
58. Liu, C., Cheng, L., Zhao, Y., and Zhu, L. (2017). Interfacially crosslinked composite porous membranes for ultrafast removal of anionic dyes from water through permeating adsorption. *Journal of hazardous materials*, 337, 217-225.
59. Koyuncu, İ., ve Şengür-Taşdemir, R. (2018). *Membran teknolojileri ve su arıtma*. (Birinci baskı). Ankara: Türkiye çevre koruma vakfı, 44-48.
60. İsmail Koyuncu, ve Reyhan Şengür-Taşdemir. (2018). *Membran teknolojileri ve su arıtma*. (Birinci baskı). Ankara: Türkiye çevre koruma vakfı, 13.
61. Patel, D., Kellici, S., and Saha, B. (2014). Green process engineering as the key to future processes. *Processes*, 2(1), 311-332.

62. Aksu, H. (2019). *Türkiye’de içme suyu arıtımında membran uygulamaları ve uygulama aşamasında karşılaşılan işletme problemleri*. Uzmanlık tezi, Tarım ve Orman Bakanlığı, Ankara.
63. Thakur, A. K., Singh, S. P., Thamaraiselvan, C., Kleinberg, M. N., and Arnusch, C. J. (2019). Graphene oxide on laser-induced graphene filters for antifouling, electrically conductive ultrafiltration membranes. *Journal of Membrane Science*, 591, 117322.
64. İnternet: Green chemistry, URL: https://en.wikipedia.org/wiki/Green_chemistry, Son Erişim Tarihi: 27.04.2020.
65. Armentano, I., Bitinis, N., Fortunati, E., Mattioli, S., Rescignano, N., Verdejo, R., and Kenny, J. M. (2013). Multifunctional nanostructured PLA materials for packaging and tissue engineering. *Progress in Polymer Science*, 38(10-11), 1720-1747.
66. Singh, A. V. (2011). Biopolymers in drug delivery: a review. *Pharmacologyonline*, 1, 666-674.
67. Rao, M. G., Bharathi, P., and Akila, R. M. (2014). A comprehensive review on biopolymers. *Sci. Revs. Chem. Commun*, 4(2), 61-68.
68. Afife Binnaz Hazar Yoruç , Volkan Uğraşkan. (2017). Green Polymers and Applications. *AKU J. Sci. Eng.* 17, 318-337.
69. EFSA Panel on Food Additives and Nutrient Sources added to Food (ANS), Younes, M., Aggett, P., Aguilar, F., Crebelli, R., Filipič, M., and Kuhnle, G. G. (2017). Re-evaluation of alginic acid and its sodium, potassium, ammonium and calcium salts (E 400–E 404) as food additives. *EFSA Journal*, 15(11), 5049.
70. İnternet: Algler, URL: https://www.google.com/search?q=kahverengi+algler&sxsrf=ALeKk00xlUuOzFFI-os99ceNPdmETGOyCQ:1601471237402&tbm=isch&source=iu&ictx=1&fir=5E-eMQrNSTA4gM%252CMffdmUg_S6Du8M%252C_&vet=1&usg=AI4_kTbKS1PHvQTzUh5QgHrQkTzs5nXPQ&sa=X&ved=2ahUKEwi4reSh-ZDsAhULxoUKHQO5C6oQ9QF6BAgLEDg&biw=1920&bih=937#imgsrc=5E-eMQrNSTA4gM, Son Erişim Tarihi: 27.04.2020.
71. İnternet: Deniz yosunları, URL: https://www.google.com/search?q=kahverenfi+deniz+yosunu&tbm=isch&ved=2ahUKEwjWm5Xv-pDsAhUPRBoKHcRFB80Q2-cCegQIABAA&oq=kahverenfi+deniz+yosunu&gs_lcp=CgNpbWcQAzoECCMQJzoECAAQZoFCAAQsQM6BwgAELEDEEM6AggAOgYIABAKEBhQpD9YpIkBYO6NAWgBcAB4AIABqgGIAbwZkgEEMC4yNJgBAKABAAoBC2d3cy13aXotaW1nwAEB&scient=img&ei=tIR0X9bxBo-IacSLnegM&bih=937&biw=1920#imgsrc=bRAXZVIYYdBIvM, Son Erişim Tarihi: 14.08.2020.
72. İnternet: Kahverengi deniz yosunları, URL: <https://encrypted-tbn0.gstatic.com/images?q=tbn%3AAND9GcSiIjaNroqtbRZbrEYj4lNcsRHLYU1bUZWQ&usqp=CAU>, Son Erişim Tarihi: 14.08.2020.

73. Lee, S. J., Hann, T., and Park, S. H. (2020). Seawater Desalination Using MOF-Incorporated Cu-Based Alginate Beads without Energy Consumption. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 12(14), 16319-16326.
74. Segal, Y., Linker, R., and Dosoretz, C. G. (2011). Quantitative estimation of protein fouling of ultra-filtration membranes by photoacoustic spectroscopy. *Desalination*, 271(1-3), 231-235.
75. Çifci, C., and Polat, Ş. (2009). Polymer-enhanced ultrafiltration of Fe (III) and Cu (II) aqueous solutions using poly (vinyl alcohol)-alginate acid/cellulose membranes. *Journal of Macromolecular Science Part A: Pure and Applied Chemistry*, 46(7), 682-687.
76. Wu, Q. X., Lin, D. Q., and Yao, S. J. (2014). Design of chitosan and its water soluble derivatives-based drug carriers with polyelectrolyte complexes. *Marine drugs*, 12(12), 6236-6253.
77. Deepthi, S., Venkatesan, J., Kim, S. K., Bumgardner, J. D., and Jayakumar, R. (2016). An overview of chitin or chitosan/nano ceramic composite scaffolds for bone tissue engineering. *International journal of biological macromolecules*, 93, 1338-1353.
78. İnternet: Kitosan, URL: <https://tr.wikipedia.org/wiki/Kitosan>, Son Erişim Tarihi: 03.07.2020.
79. Garba, M. D., Usman, M., Mazumder, M. A. J., and Al-Ahmed, A. (2019). Complexing agents for metal removal using ultrafiltration membranes: a review. *Environmental Chemistry Letters*, 1-14.
80. Dasgupta, J., Sikder, J., Mandal, T., and Adhikari, U. (2015). Reactive red 120 retention through ultrafiltration enhanced by synthetic and natural polyelectrolytes. *Journal of hazardous materials*, 299, 192-205.
81. Wu, F. C., Tseng, R. L., and Juang, R. S. (2001). Kinetic modeling of liquid-phase adsorption of reactive dyes and metal ions on chitosan. *Water research*, 35(3), 613-618.
82. İnternet: Azo dyes, URL: <http://www.chm.bris.ac.uk/webprojects2002/price/azo.htm>, Son Erişim Tarihi: 27.04.2020.
83. Noormohamadi, H. R., Fat'hi, M. R., and Ghaedi, M. (2018). Fabrication of polyethyleneimine modified cobalt ferrite as a new magnetic sorbent for the micro-solid phase extraction of tartrazine from food and water samples. *Journal of colloid and interface science*, 531, 343-351.
84. Akbari, A., Desclaux, S., Rouch, J. C., and Remigy, J. C. (2007). Application of nanofiltration hollow fibre membranes, developed by photografting, to treatment of anionic dye solutions. *Journal of membrane science*, 297(1-2), 243-252.

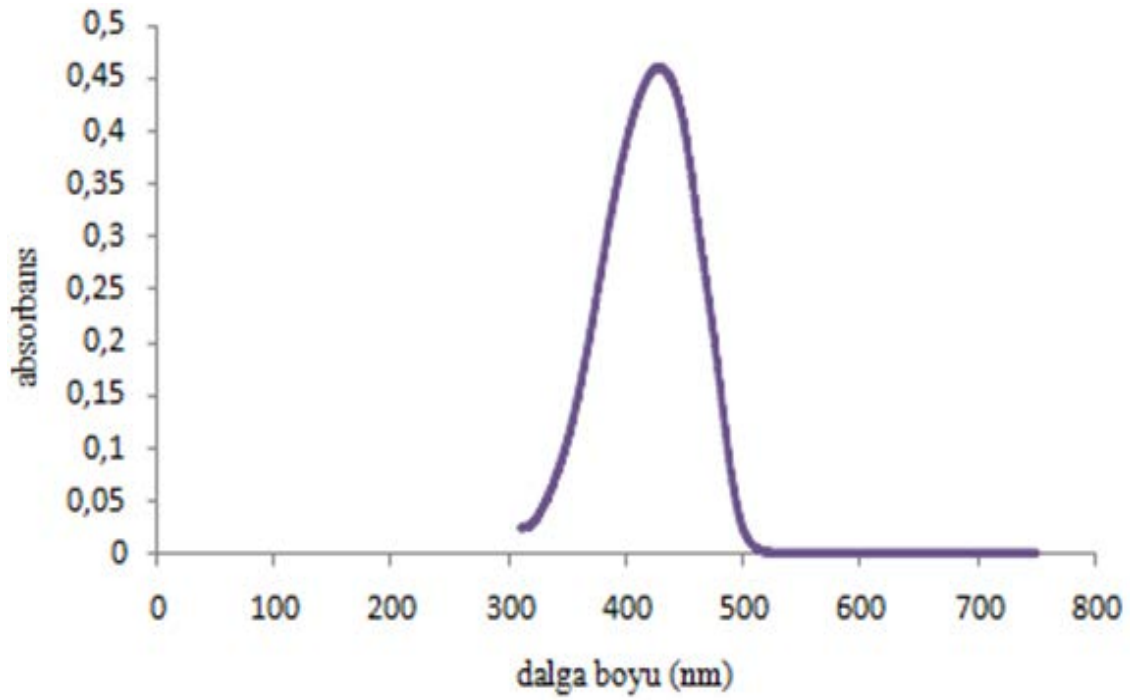
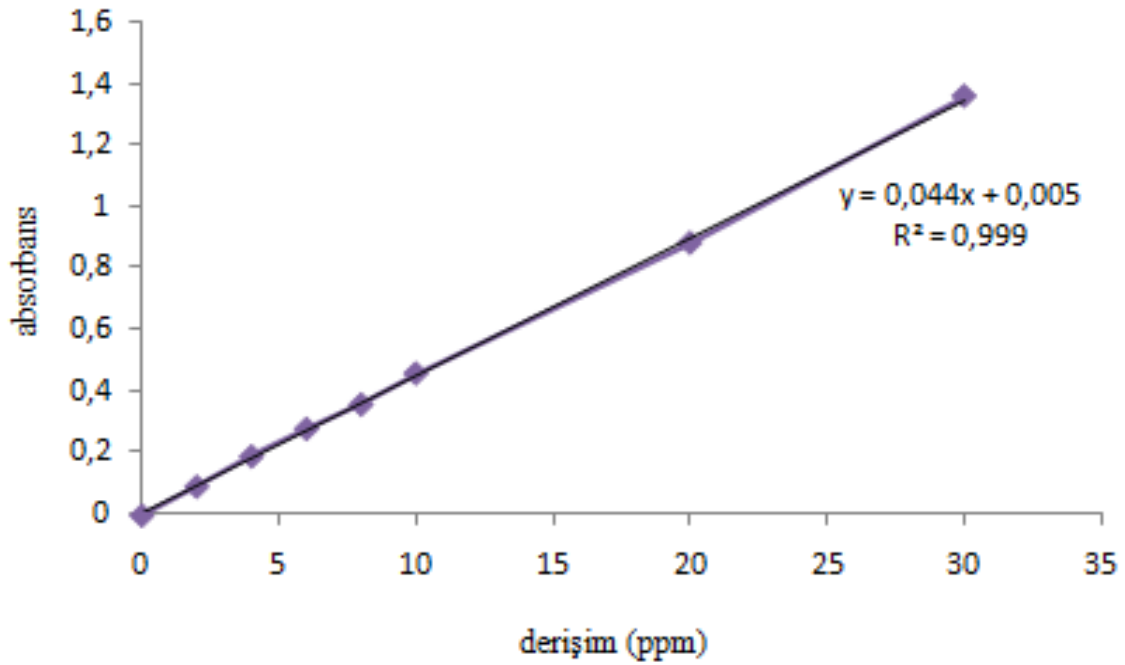
85. Song, Y., Sun, Y., Chen, M., Huang, P., Li, T., Zhang, X., and Jiang, K. (2020). Efficient removal and fouling-resistant of anionic dyes by nanofiltration membrane with phosphorylated chitosan modified graphene oxide nanosheets incorporated selective layer. *Journal of Water Process Engineering*, 34, 101086.
86. Lü, Z., Hu, F., Li, H., Zhang, X., Yu, S., Liu, M., and Gao, C. (2019). Composite nanofiltration membrane with asymmetric selective separation layer for enhanced separation efficiency to anionic dye aqueous solution. *Journal of hazardous materials*, 368, 436-443.
87. da Rocha, H. D., Reis, E. S., Ratkovski, G. P., da Silva, R. J., Gorza, F. D., Pedro, G. C., and de Melo, C. P. (2020). Use of PMMA/(rice husk ash)/polypyrrole membranes for the removal of dyes and heavy metal ions. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 110, 8-20.
88. Ghani, M., Rezaei, B., Ghare Aghaji, A. L. I. A. K. B. A. R., and Arami, M. (2016). Novel Cross-linked Superfine Alginate-Based Nanofibers: Fabrication, Characterization, and Their Use in the Adsorption of Cationic and Anionic Dyes. *Advances in Polymer Technology*, 35(4), 428-438.
89. Zhao, Y., Qiu, J., Xu, J., Gao, X., and Fu, X. (2017). Effects of crosslinking modes on the film forming properties of kelp mulching films. *Algal research*, 26, 74-83.
90. Daemi, H., and Barikani, M. (2012). Synthesis and characterization of calcium alginate nanoparticles, sodium homopolymannuronate salt and its calcium nanoparticles. *Scientia Iranica*, 19(6), 2023-2028.
91. Wu, S., Yu, Y., Zhang, C., and Chen, F. (2020). Colorimetric determination of amaranth followed enrichment and separation using buoyant adsorbents. *Journal of Analytical Science and Technology*, 11(1), 1-9.
92. Karbassi, E., Asadinezhad, A., Lehocký, M., Humpolíček, P., Vesel, A., Novák, I., and Sába, P. (2014). Antibacterial performance of alginic acid coating on polyethylene film. *International journal of molecular sciences*, 15(8), 14684-14696.
93. Phanikumar, V. V. N., Rikka, V. R., Das, B., Gopalan, R., Rao, B. A., and Prakash, R. (2019). Investigation on polyvinyl alcohol and sodium alginate as aqueous binders for lithium-titanium oxide anode in lithium-ion batteries. *Ionics*, 25(6), 2549-2561.
94. Amri, C., Mudasir, M., Siswanta, D., and Roto, R. (2016). In vitro hemocompatibility of PVA-alginate ester as a candidate for hemodialysis membrane. *International journal of biological macromolecules*, 82, 48-53.
95. Desbrières, J., and Guibal, E. (2018). Chitosan for wastewater treatment. *Polymer International*, 67(1), 7-14.
96. Lipatova, I. M., Mezina, E. A., and Butina, Y. V. (2013). A spectrophotometric study of the ionic complexation between chitosan and anionic dyes. *Russian Journal of Applied Chemistry*, 86(4), 575-580.

97. Guibal, E., Van Vooren, M., Dempsey, B. A., and Roussy, J. (2006). A review of the use of chitosan for the removal of particulate and dissolved contaminants. *Separation science and technology*, 41(11), 2487-2514.
98. Dotto, G. L., Vieira, M. L., and Pinto, L. A. (2012). Kinetics and mechanism of tartrazine adsorption onto chitin and chitosan. *Industrial & engineering chemistry research*, 51(19), 6862-6868.
99. Alver, E., Bulut, M., Metin, A. Ü., and Çiftçi, H. (2017). One step effective removal of Congo Red in chitosan nanoparticles by encapsulation. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 171, 132-138.
100. Liu, B., Wang, D., Yu, G., and Meng, X. (2013). Adsorption of heavy metal ions, dyes and proteins by chitosan composites and derivatives—A review. *Journal of Ocean University of China*, 12(3), 500-508.
101. Grządka, E., and Matusiak, J. (2017). The effect of ionic and non-ionic surfactants and pH on the stability, adsorption and electrokinetic properties of the alginic acid/alumina system. *Carbohydrate polymers*, 175, 192-198.
102. Zhang, Z., Wang, L., Liu, X., Zhang, D., Zhang, L., and Li, Q. (2015). Nano-Al₂O₃-based micro solid-phase filter membrane extraction for simultaneous determination of tartrazine and sunset yellow in food. *RSC Advances*, 5(105), 86445-86452.
103. Banerjee, S., Dubey, S., Gautam, R. K., Chattopadhyaya, M. C., and Sharma, Y. C. (2019). Adsorption characteristics of alumina nanoparticles for the removal of hazardous dye, Orange G from aqueous solutions. *Arabian Journal of Chemistry*, 12(8), 5339-5354.
104. Mendoza-Huizar, L. H. (2014). A theoretical study of chemical reactivity of tartrazine through DFT reactivity descriptors. *Journal of the Mexican Chemical Society*, 58(4), 416-423.
105. Saleh, M. M., Hashem, E. Y., and Al-Salahi, N. O. (2016). Oxidation and complexation-based spectrophotometric methods for sensitive determination of tartrazine E102 in some commercial food samples. *Computational Chemistry*, 4(02), 51-64.
106. Barakat, M. A., Kumar, R., Balkhyour, M., and Taleb, M. A. (2019). Novel Al₂O₃/GO/halloysite nanotube composite for sequestration of anionic and cationic dyes. *RSC advances*, 9(24), 13916-13926.
107. Ghulam, N. A., Abbas, M. N., and Sachit, D. E. (2019). Preparation of synthetic alumina from aluminium foil waste and investigation of its performance in the removal of RG-19 dye from its aqueous solution. *Indian Chemical Engineer*, 1-13.
108. Shi, G., Liu, J., Wang, C., Song, B., Tu, Y., Hu, J., and Fang, H. (2013). Ion enrichment on the hydrophobic carbon-based surface in aqueous salt solutions due to cation- π interactions. *Scientific reports*, 3(1), 1-5.

109. Mahmoud, M. E., Amira, M. F., Seleim, S. M., and Abouelanwar, M. E. (2019). In situ microwave-assisted oxidation of graphite into partially oxidized graphite nanoparticles for microwave-sorptive removal of anionic and cationic dyes. *Journal of Molecular Liquids*, 288, 110979.
110. Yokwana, K., Kuvarega, A. T., Mhlanga, S. D., and Nxumalo, E. N. (2018). Mechanistic aspects for the removal of Congo red dye from aqueous media through adsorption over N-doped graphene oxide nanoadsorbents prepared from graphite flakes and powders. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 107, 58-70.

EKLER

EK-1. Tartrazinin (E102) dalga boyu

EK-2. Farklı derişimlerde Tatrazinin kalibrasyon eğrisi ($\lambda_{\max}=426$ nm)

ÖZGEÇMİŞ

Kişisel Bilgiler

Soyadı,adı : GAHRAMANLI, Sahila
Uyruğu : Azerbaycan
Doğum tarihi ve yeri : 03.03.1992, Bakü
Telefon : 0 (538) 208 02 88
e-mail : gehremanli.sahile.gs@gmail.com



Eğitim

Derece	Eğitim Birimi	Mezuniyet Tarihi
Yüksek lisans	Gazi Üniversitesi/Kimya	Devam ediyor
Lisans	Bakü Devlet Üniversitesi/Kimya	2014

İş Deneyimi

-

Yabancı Dil

Azerice, İngilizce, Rusça

Yayınlar

1. Gahramanli, S. ve Asman, G. (2020). *Çapraz akışlı filtrasyon yöntemi ile sulu çözeltilerden tartrazinin uzaklaştırılması*. 3rd International Eurasian Conference on Biological and Chemical Sciences (EurasianBioChem 2020), March 2020, 647.

Hobiler

Seyahat, Voleybol



GAZİ GELECEKTİR..