

การสกัดแยกทองแดงออกจากสารละลายเจือน้ำโดยใช้เยื่อแผ่นเหลวแบบอิมัลชัน



นายพรเทพ คงคาเพชรวรรณ

ศูนย์วิทยพัทยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต

ภาควิชาวิศวกรรมเคมี

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

พ.ศ. 2539

ISBN 974-633-900-1

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

EMULSION LIQUID MEMBRANE SEPARATION OF COPPER
FROM AQUEOUS SOLUTION

MR. PORNTEP KONGKAPETCHAWAN



ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

A THESIS SUBMITTED IN PARTIAL FULFILLMENT OF THE REQUIREMENTS
FOR THE DEGREE OF MASTER OF ENGINEERING
DEPARTMENT OF CHEMICAL ENGINEERING
GRADUATE SCHOOL
CHULALONGKORN UNIVERSITY

1996

ISBN 974-633-900-1

Thesis Title EMULSION LIQUID MEMBRANE SEPARATION OF
COPPER FROM AQUEOUS SOLUTION.

By Mr. Porntep Kongkapetchawan

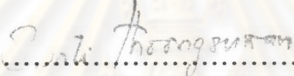
Department Chemical Engineering

Thesis advisor Associate Professor Ura Pancharoen

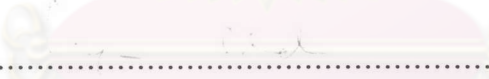
Thesis Co-advisor Associate Professor Chirakarn Muangnapoh





Accepted by the Graduate School, Chulalongkorn University, in
Partial Fulfillment of the Requirements for the Master's Degree.



.....Dean of Graduate School
(Associate Professor Santi Thoongsuwan, Ph.D.)

Thesis Committee


.....Chairman
(Professor Piyasan Praserttham, Dr.Ing.)


.....Thesis Advisor
(Associate Professor Ura Pancharoen, D.Eng.Sc.)


.....Thesis Co-advisor
(Associate Professor Chirakarn Muangnapoh, Dr.Ing.)


.....Member
(Varaporn Leepipatpiboon, Dr.rer.nat.)

พิมพ์ต้นฉบับบทความวิจัยวิทยานิพนธ์ภายในกรอบสี่เหลี่ยมนี้เพียงแผ่นเดียว



พรเทพ คงคาเพชรวรรณ : การสกัดแยกทองแดงออกจากสารละลายเจือน้ำโดยใช้เยื่อแผ่นเหลวแบบอิมัลชัน
(EMULSION LIQUID MEMBRANE SEPARATION OF COPPER FROM AQUEOUS SOLUTION)

อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์ ดร. อูรา ปานเจริญ, อาจารย์ที่ปรึกษาร่วม : รองศาสตราจารย์ ดร. จิรภานต์
เมืองนาโพธิ์, 159 หน้า. ISBN 974-633-900-1

ได้ทำการศึกษาการสกัดสารละลายทองแดงที่ภาวะสมดุลด้วยเครื่องที่มีตัวพาประจุบวกกรดไดเอทิลเฮกซิลฟอสฟอริกผสม
อยู่ โดยทำการศึกษาที่อุณหภูมิห้องเป็นเวลา 8 ชั่วโมง จากการทดลองดังกล่าวจะได้ค่าคงที่การสกัดที่ภาวะสมดุลเท่ากับ 8.2×10^{-4}
ลูกบาศก์เดซิเมตรต่อโมล และพบว่าทองแดง 1 โมลจะจับกับตัวพาประจุบวก 2 โมล เกิดเป็นสารประกอบเชิงซ้อนในชั้นของเยื่อแผ่น

การศึกษากการสกัดแบบไม่ต่อเนื่องของทองแดงออกจากสารละลายเจือน้ำโดยกระบวนการเยื่อแผ่นเหลวแบบอิมัลชันโดยที่
เยื่อแผ่นเหลวประกอบด้วยสารตัวพาประจุบวกกรดไดเอทิลเฮกซิลฟอสฟอริก และสารลดแรงตึงผิวสเปน 80 ซึ่งละลายอยู่ในเคโรซีน ใน
วัฏภาคของสารละลายชั้นในใช้กรดไฮโดรคลอริก การทดลองจะทำการปรับค่าต่าง ๆ เพื่อหาภาวะที่เหมาะสมในการสกัดแยกทองแดง ผล
การทดลองพบว่าค่าความเป็นกรดเบสที่เหมาะสมในการแยกทองแดง 100 ส่วนในล้านส่วนออกจากสารละลายเจือน้ำคือ ในวัฏภาคสารชั้น
นอกอยู่ที่ความเป็นกรดเบสเท่ากับ 3.0 วัฏภาคของเยื่อแผ่นเหลวนั้นประกอบด้วยสารลดแรงตึง ความเข้มข้น 5 เปอร์เซ็นต์ (ปริมาตรต่อ
ปริมาตร) สารตัวพาประจุบวกความเข้มข้น 10 เปอร์เซ็นต์ (ปริมาตรต่อปริมาตร) ละลายอยู่ในเคโรซีน ส่วนความเข้มข้นของสารละลายกรด
ไฮโดรคลอริกที่เหมาะสมคือ 1 นอร์มอล การสกัดใช้ความเร็วรอบในการกวนเท่ากับ 400 รอบต่อนาที ภายใต้การสกัดที่ภาวะนี้เมื่อเวลา
ผ่านไป 5 นาที พบว่าสามารถสกัดทองแดงออกจากสารตั้งต้นได้มากกว่า 99 เปอร์เซ็นต์ เมื่อสิ้นสุดการสกัดพบว่า ความเข้มข้นของ
ทองแดงในวัฏภาคสารชั้นในมากกว่าในวัฏภาคสารชั้นนอก 20 เท่า

นอกจากนี้ได้ทำการทดลองในการสกัดแบบต่อเนื่อง พบว่าสามารถสกัดทองแดงออกจากสารตั้งต้นโดยใช้ภาวะที่เหมาะสมที่
ได้จากการศึกษาแบบไม่ต่อเนื่องได้ และเมื่อลดอัตราการไหลของสารละลายป้อนพบว่าอัตราการสกัดทองแดงเพิ่มขึ้น และสามารถสกัด
ทองแดงออกจากสารตั้งต้นได้มากกว่า 90 เปอร์เซ็นต์

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ภาควิชา วิศวกรรมเคมี
สาขาวิชา วิศวกรรมเคมี
ปีการศึกษา 2538

ลายมือชื่อนิติ
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา
ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม



ACKNOWLEDGMENTS

The author would like to express his gratitude and deep appreciation to his advisor, Associate Professor Ura Pancharoen, and his co-advisor, Associate Professor Chirakarn Muangnapoh, for their excellent guidance and assistance towards the completion of this thesis. He is also grateful to Professor Piyasarn Prasertthdam, who serves as the chairman.

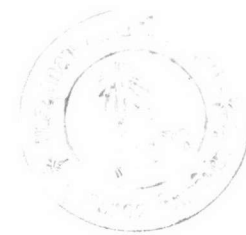
Special thanks to Dr. Varaporn Leepipatpiboon, for her advice, valuable help during this study, assistance in analyzing the copper concentration and especially her serving as a committee member.

The author wishes to express his appreciation to Miss Maneerat Ungsusriwong for her suggestions concerning the English Grammar in this thesis.

Thanks for financial support provided by the Graduate School and the Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Chulalongkorn University.

His sincere thanks are also due to all of his friends in the Department of Chemical Engineering who offered encouragement and assistance during this study.

Most of all, the author would like to express the highest gratitude to his mother and everyone in his family for their encouragement, patience, and financial support throughout this study.



CONTENTS

	Page
ABSTRACT IN THAI.....	IV
ABSTRACT IN ENGLISH.....	V
ACKNOWLEDGEMENT.....	VI
CONTENTS.....	VII
LIST OF TABLES.....	IX
LIST OF FIGURES.....	X
NOMEMCLATURE.....	XIV
CHAPTER	
I. INTRODUCTION	
Objectives.....	4
Scope of This Study.....	4
II. LITERATURE REVIEW	
General Application.....	8
Bioseparation Application.....	12
III. THEORY	
Supported Liquid Membrane.....	18
Emulsion Liquid Membrane.....	21
IV. EXPERIMENT	
Chemical Reagents.....	39
Extraction Equilibrium Experiment.....	41
Batch Operation.....	41
Continuous Operation.....	43
V. RESULTS AND DISCUSSION	
Effect of Carrier Concentration.....	48
Effect of Surfactant Concentration.....	55
Effect of Initial Feed Solution Acidity.....	62
Effect of Initial Acid Concentration in the Internal Phase.....	72

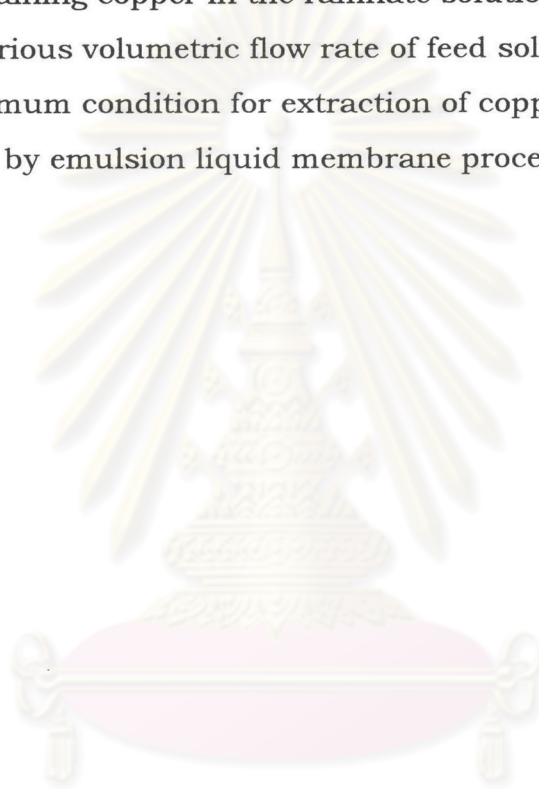
	Page
Effect of Emulsion Phase to External Phase Ratio.....	81
Effect of Agitation Speed.....	90
Continuous Operation.....	99
Comparison of Copper Loading Capacity between Solvent Extraction and Emulsion Liquid Membrane.....	102
Extraction Equilibrium of Copper.....	105
 VI CONCLUSIONS AND RECOMMENDATIONS	
Conclusions.....	110
Recommendations.....	111
REFERENCES.....	112
APPENDIX.....	117
VITA.....	144

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย



LIST OF TABLES

Table		Page
5-1	The remaining copper in the raffinate solution and %extraction when various volumetric flow rate of feed solution.....	101
7-1	The optimum condition for extraction of copper from aqueous solution by emulsion liquid membrane process.....	110



ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย



LIST OF FIGURES

Figure	Page
2-1 Mechanism of copper separation with emulsion liquid membrane...11	11
2-2 Schematic Diagram of Two Compartments Vessel for Extraction.....13	13
3-1 Schematic representation of the counter-transport mass transfer....18	18
3-2 Schematic Diagram of a Supported Liquid Membrane.....19	19
3-3 Schematic countercurrent flow in a hollow fiber cartridge.....20	20
3-4 Schematic of an Emulsion Liquid Membrane System.....22	22
3-5 Schematic of two facilitated mechanism.....25	25
3-6 Schematic of Counter Transport of Solute M^{2+} by Carrier HR...27	27
3-7 Schematic of Co-Transport of Solute A and B by the Carrier C.....28	28
3-8 Schematic representation of water transport.....38	38
4-1 Schematic diagram of batch operation experimental apparatus.....42	42
4-2 Schematic diagram of contonuous operation experimental apparatus.....44	44
4-3 Schematic Diagram of Two Compartments Vessel for Extraction.....45	45
5-1 Effect of carrier concentration on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 5% Span 80.....50	50
5-2 Effect of carrier concentration on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 7% Span 80.....51	51
5-3 Concentration of copper in the internal phase during extraction of copper at various carrier concentration.....52	52
5-4 Initial rate on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at various carrier concentration (at first 5 minutes interval.).....53	53
5-5 Effect of carrier concentration on % swelling on extraction of 100 ppm. copper by emulsion liquid membrane.....54	54
5-6 Effect of surfactant concentration on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA.....57	57

Figure	Page
5-7 Effect of surfactant concentration on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA.....	58
5-8 Concentration of copper in the internal phase during extraction of copper at various surfactant concentration.....	59
5-9 Initial rate on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at various surfactant concentration (at first 5 minutes interval.).....	60
5-10 Effect of surfactant concentration on % swelling on extraction of 100 ppm. copper by emulsion liquid membrane.....	61
5-11 Effect of pH of feed solution on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA and 5% Span 80.....	65
5-12 Effect of pH of feed solution on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 7% D2EHPA and 5% Span 80.....	66
5-13 Effect of pH of feed solution on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 7% D2EHPA and 7% Span 80.....	67
5-14 Effect of pH of feed solution on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA and 7% Span 80.....	68
5-15 Concentration of copper in the internal phase during extraction of copper at various pH of feed solution.....	69
5-16 Initial rate on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at various pH of feed solution (at first 5 minutes interval.).....	70
5-17 Effect of pH of feed solution on % swelling on extraction of 100 ppm. copper by emulsion liquid membrane.....	71
5-18 Effect of internal phase concentration on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA and 5% Span 80.....	74

Figure	Page
5-19 Effect of internal phase concentration on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 7% D2EHPA and 5% Span 80.....	75
5-20 Effect of internal phase concentration on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 7% D2EHPA and 7% Span 80.....	76
5-21 Effect of internal phase concentration on extraction of 100 ppm. copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA and 7% Span 80.....	77
5-22 Concentration of copper in the internal phase during extraction of copper at various internal phase concentration.....	78
5-23 Initial rate on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at various internal phase concentration (at first 5 minutes interval.).....	79
5-24 Effect of internal phase concentration on % swelling on extraction of 100 ppm. copper by emulsion liquid membrane.....	80
5-25 Effect of ratio of emulsion phase to feed solution on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA and 5% Span 80.....	83
5-26 Effect of ratio of emulsion phase to feed solution on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at 7% D2EHPA and 5% Span 80.....	84
5-27 Effect of ratio of emulsion phase to feed solution on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at 7% D2EHPA and 7% Span 80.....	85
5-28 Effect of ratio of emulsion phase to feed solution on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA and 7% Span 80.....	86
5-29 Concentration of copper in the internal phase during extraction of copper at various ratio of emulsion phase to feed solution.....	87

Figure	Page
5-30 Initial rate on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at various ratio of emulsion phase to feed solution (at first 5 minutes interval.).....	88
5-31 Effect of internal phase concentration on % swelling on extraction of 100 ppm. copper by emulsion liquid membrane.....	89
5-32 Effect of speed of agitator on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA and 5% Span 80.....	92
5-33 Effect of speed of agitator on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at 7% D2EHPA and 5% Span 80.....	93
5-34 Effect of speed of agitator on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at 7% D2EHPA and 7% Span 80.....	94
5-35 Effect of speed of agitator on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at 10% D2EHPA and 5% Span 80.....	95
5-36 Concentration of copper in the internal phase during extraction of copper at various speed of agitator.....	96
5-37 Initial rate on extraction of 100 ppm.copper ions by emulsion liquid membrane at various speed of agitator (at first 5 minutes interval.).....	97
5-38 Effect of internal phase concentration on % swelling on extraction of 100 ppm. copper by emulsion liquid membrane.....	98
5-39 The remaining copper in the raffinate phase at various volumetric flow rate of feed solution.....	100
5-40 Copper extraction in each consecutive stage using solvent extraction and emulsion liquid membrane.....	104
5-41 Log of Distribution Coefficient of Cu^{2+} vs. $-\text{Log} [\text{H}^+]_{\text{eq}}$	107
5-42 Distribution Coefficient of Cu^{2+} vs. $[\text{H}^+]_{\text{eq}}$	107
5-43 $\text{Log} [\text{D}^+][\text{H}^+]_{\text{eq}}$ vs. $\text{Log} [(\text{HR})_2]_{\text{eq}}$ of Copper.....	108
5-44 $[\text{D}^+][\text{H}^+]_{\text{eq}}$ vs. $[(\text{HR})_2]_{\text{eq}}$ of Copper.....	108
5-45 K_{ex} of Copper vs. $[(\text{HR})_2]_{\text{eq}}$	109

NOMENCLATURES

K_{ex}	extraction equilibrium constant (dm^3/mol)
D^+	distribution coefficient of copper ion in the cationic form
$[\text{Cu}^{2+}]_i$	copper ion concentration at initial state (mol/dm^3)
$[\text{Cu}^{2+}]_{eq}$	copper ion concentration in aqueous phase (mol/dm^3)
$[\text{CuR}(\text{HR})_{2m-1}]$	copper/carrier concentration in aqueous phase (mol/dm^3)
$[\text{H}^+]$	hydrogen ion concentration in aqueous phase (mol/dm^3)
$\overline{[\text{Cu}^{2+}]}$	copper ion concentration in membrane phase (mol/dm^3)
$\overline{[\text{CuR}(\text{HR})_{2m-1}]}$	copper/carrier concentration in membrane phase (mol/dm^3)
$\overline{(\text{HR})}_2$	dimer of carrier molecule in the membrane phase
m	stoichiometric coefficient
$[\text{C}]_i$	copper concentration in the external phase (ppm.)
$[\text{C}]_o$	initial copper concentration in the external phase (ppm.)

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย