

## بهینه‌سازی شرایط عملیاتی لیچینگ باطری‌های دورریز نیکل-کادمیم با روش تاگوچی

غلامرضا خیاطی<sup>۱\*</sup>، کمال جانقربان<sup>۲</sup>، سمیرا مرتضایی مهین<sup>۱</sup>

۱. دانشگاه شهید باهنر کرمان (khayati@uk.ac.ir)

۲. دانشگاه شیراز (janghor@shirazu.ac.ir)

### چکیده

در پژوهش حاضر با استفاده از روش تاگوچی- روست، شرایط عملیاتی لیچینگ باطری‌های دورریز نیکل-کادمیم در اسید کلریدریک بهینه‌سازی شده است. برای رسیدن به این هدف، پارامترهای دما، نرمالیت، زمان و نسبت اسید به فاز جامد به عنوان متغیرهای عملیاتی انتخاب شدند. همچنین مقدار انحلال یا درصد وزنی نیکل، کادمیم و آهن در محلول لیچینگ به عنوان مشخصه مورد آنالیز لحاظ شد. نتایج نشان داد که دما و نرمالیت اسید کلریدریک موثرترین عوامل اثرگذار در فرآیند لیچینگ بوده‌اند. همچنین، شرایط بهینه لیچینگ از لحاظ میزان انحلال به صورت دمای ۹۰ درجه سانتیگراد، زمان ۶۰ دقیقه، نرمالیت اسید کلریدریک ۹ و نسبت اسید به جامد ۱۰ به ۱ تعیین گردید.

### مشخصات مقاله

تاریخچه مقاله:

دریافت: ۱۸ آبان ۹۰

دریافت پس از اصلاح: ۵ بهمن ۹۰

پذیرش نهایی: ۲۶ بهمن ۹۰

کلمات کلیدی:

لیچینگ

باطری‌های دورریز نیکل-کادمیم

روش تاگوچی

بهینه‌سازی

## ۱- مقدمه

سیر فزاینده توسعه و استفاده از لوازم الکتریکی نسل جدید باعث افزایش تقاضا برای انواع باتری‌ها و به طور خاص نوع قابل شارژ آن در سال‌های اخیر شده است. به عنوان مثال می‌توان به باتری‌های نیکل-کادمیم اشاره نمود که به واسطه‌ی مشخصه‌های دمایی نظیر کار در دمای بالا، نرخ سریع تخلیه و بادوام بودن بر سایر انواع موجود برتری دارند. این باتری‌های دارای الکتروود مثبت ساخته شده از هیدروکسید نیکل، الکتروود منفی شامل ماده فعال دربردارنده هیدروکسید کادمیم و هیدروکسید پتاسیم به عنوان الکتروولیت هستند [۱، ۲]. دفع نادرست این باتری‌ها از یک طرف با توجه به ترکیبات موجود در آنها مخاطرات زیست محیطی جبران ناپذیری را به دنبال داشته و از طرف دیگر موجب زایل شدن یک منبع عالی از مواد اولیه می‌شود چرا که این دورریزها حاوی درصد بالایی از مواد باارزش مانند نیکل و کادمیم هستند. بر این اساس و با توجه محدودیت‌های زیست محیطی اعمال شده، روش‌های متعددی جهت بازیافت این مواد توسعه یافته است [۳، ۴]. به طور کلی بازیافت باتری‌ها بر پایه دو روش پیرومتالورژی و هیدرومتالورژی صورت می‌گیرد. در روش‌های پیرومتالورژی که عموماً در دمای بالا کار می‌کنند کادمیم وارد فاز بخار شده و کندانس می‌گردد در حالی که نیکل به صورت آلیاژی و در ترکیب با آهن تولید می‌شود [۵-۹]. در مقابل روش‌های هیدرومتالورژی قرار دارند که دمای پایینی داشته و در آنها از حلال‌های اسیدی متنوعی مانند اسید سولفوریک، اسید نیتریک، اسید فسفریک جهت لیچینگ باتری‌ها استفاده می‌شود که پس از تصفیه وارد مرحله الکترولیز می‌شود. در نهایت نیکل و کادمیم فلزی تولید می‌گردد [۱۰-۱۵].

علیرغم وجود حجم وسیعی از دورریزهای نیکل کادمیم در کشور، تاکنون مطالعات سیستماتیکی در خصوص امکان بازیافت و استفاده از این منبع عظیم ماده اولیه صورت نگرفته است. پژوهش حاضر به بازیافت این دسته از مواد بر مبنای استفاده از روش هیدرومتالورژی صورت گرفته و به بهینه‌سازی شرایط عملیاتی لیچینگ به عنوان اولین مرحله بازیافت پرداخته است. با توجه به بررسی‌های انجام شده متغیرهای عملیاتی متنوعی نظیر دما، زمان، نرمالیته اسید کلریدریک و نسبت اسید به فاز جامد می‌توانند روی عملیات لیچینگ اثر بگذارند [۱۶، ۱۷]. ارتباط بین متغیرهای مذکور پیچیده بوده و آنالیز آن به منظور بهینه‌سازی شرایط عملیاتی امری

وقت‌گیر می‌باشد. از اینرو استفاده از روش‌های آنالیز متداول چندان مرسوم نیست. بنابراین از روش تاگوچی-روبست<sup>۱</sup> استفاده گردید [۱۸-۲۰]. اهداف پژوهش را می‌توان به صورت ارزیابی متغیرهای عملیاتی روی مقدار انحلال نیکل، کادمیم و آهن به همراه بهینه‌سازی لیچینگ دورریزهای نیکل-کادمیم در اسید کلریدریک با استفاده از روش تاگوچی-روبست بیان نمود.

## ۲- روش آزمایش

## ۲-۱- آماده سازی مواد اولیه

مواد اولیه شامل باتری‌های دورریز نیکل-کادمیم مورد استفاده در گوشی‌های تلفن خانگی می‌باشد. این مواد پس از جدا کردن جداره فلزی نگهدارنده خرد شده و از غربالی به ابعاد ۱۰ میلی‌متر عبور داده می‌شوند. این مرحله باعث حذف الکتروولیت‌های موجود و افزایش سطح تماس ذرات با حلال می‌شود. در ادامه و با هدف حذف ناخالص‌های آهن موجود، مواد بعد از غربال کردن در معرض آهنربا قرار می‌گیرند. این مرحله حذف قابل توجه ناخالصی آهن را به دنبال دارد [۲۱]. جدول ۱ آنالیز شیمیایی XRF پودرهای مورد استفاده را نشان می‌دهد. از اسید کلریدریک به عنوان حلال استفاده شد. همچنین تعیین درصد وزنی نیکل، کادمیم و آهن در محلول لیچینگ با استفاده از آنالیز ICP Varien مدل Vista pro صورت گرفت. شایان ذکر است که مقدار پودر مورد استفاده در هر مرحله ۱۰ گرم بوده که به همراه حلال مورد استفاده درون ارلن قرار گرفته و با شدت ۱۰ دور بر دقیقه همزده شدند برای اینکار از همزن مدل rzf2021 Heidolph استفاده گردید.

## ۲-۲- روش تاگوچی-روبست

به منظور تعیین شرایط بهینه و ترتیب اثرگذاری فاکتورهای عملیاتی بر انحلال نیکل، کادمیم و آهن از روش تاگوچی-روبست استفاده شد. این روش ترکیبی از روش‌های آماری و محاسباتی است و در مطالعات تجربی مورد استفاده قرار می‌گیرد. مهمترین مشخصه این روش اقتصادی بودن آن برای

## بهبودسازی شرایط عملیاتی لیچینگ باطری‌های دورریز نیکل-کادمیم با روش تاگوچی

شده، بایستی اثر هر متغیر در سطوح مختلف تفکیک شود. برای نیل به این هدف میانگین نسبت S/N مربوط به فاکتور A در سطح i به صورت رابطه ۲ تعریف می‌شود [۱۱].

$$M_{nA} = \frac{1}{n_A} \sum_{i=1}^{L_A} \left( \frac{S}{N} \right)_{A_i} \quad (2)$$

که در آن  $n_A$  بیانگر سطحی است که متغیر A در آرایه ارتوگونال گرفته و  $\left( \frac{S}{N} \right)_{A_i}$  برابر نسبت S/N متغیر A در سطح i است.

در روش تاگوچی متغیرهای عملیاتی در صورتی دارای اهمیت خواهند بود که اثرشان در مقایسه با خطای آزمایشگاهی قابل توجه باشد. این مقدار خطا با استفاده از آنالیز واریانس<sup>۴</sup> و بر اساس روش‌های آماری تعیین می‌شود. اساس روش‌های آماری محاسبه کمیت‌های ارائه شده در روابط ۳ تا ۷ می‌باشد.

$$SS_{total} = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^r n_{ij}^2 - nr\eta_m^2 \quad (3)$$

$$SS_{factor} = \frac{nr}{L} \sum_{k=1}^L (\eta_k - \eta_m)^2 \quad (4)$$

$$DOF = L - 1 \quad (5)$$

$$V_{factor} = \frac{SS_{factor}}{DOF} \quad (6)$$

$$F_{factor} = \frac{V_{factor}}{V_{error}} \quad (7)$$

جاییکه  $SS_{total}$  مجموع کل مربعات،  $SS_{factor}$  مجموع مربعات هر فاکتور،  $n$  تعداد آزمایش‌ها،  $r$  تعداد نمونه گرفته شده،  $DOF$  درجه آزادی،  $V_{factor}$  فاکتور واریانس،  $F_{factor}$  فاکتور نسبت  $F$ ،  $\eta_m$  میانگین نسبت S/N هر متغیر در سطح  $m$  و  $\eta$  میانگین هر متغیر می‌باشد. برای اجتناب از خطاهای محاسباتی از نرم افزار SPSS استفاده شده است [۸].

ارزیابی فرآیندهای پیچیده است. در این روش از حداقل تعداد آزمایش‌ها به منظور مطالعه تمامی سطوح متغیرهای عملیاتی استفاده می‌شود و امکان جدایش اثرات ناشی از تغییر همزمان متغیرهای فرآیندی به همراه بهینه‌سازی فرآیند نیز وجود دارد.

جدول (۱) آنالیز شیمیایی باطری‌های نیکل-کادمیم (درصد وزنی) دورریز مورد استفاده به عنوان ماده اولیه

عنصر	درصد وزنی	عنصر	درصد وزنی
Zn	۱/۹۰	Cl	۱/۱۲
C	۲/۵۲	Fe	۲۲/۵۰
Na	۲/۳۸	Ca	۱/۹۱
Mg	۲/۰۱	Co	۲/۳۷
Al	۱/۱۲	K	۲۷/۸
Si	۱/۳۱	Ni	۳۳/۹۰
S	۲/۰۸	Cu	۱/۰۴
Cd	۱۵/۸۰	P	۰/۵۸

در روش تاگوچی- روست برای بیان قابلیت اثرگذاری هر متغیر می‌توان از نسبت S/N استفاده نمود که در آن N فاکتور اخلاص<sup>۲</sup> بوده و بیانی از مشکل بودن کنترل کمیت مورد بررسی است؛ S فاکتور سیگنال<sup>۳</sup> نام دارد و کنترل ساده متغیر مورد بررسی را نشان می‌دهد [۹]. نحوه محاسبه S/N تابعی از مشخصه مورد آنالیز (در اینجا مقدار انحلال یا همان درصد وزنی نیکل، کادمیم و آهن در محلول لیچینگ) می‌باشد. در پژوهش حاضر هر چه نسبت S/N بیشتر باشد بهتر است بر این اساس از رابطه ۱ جهت محاسبه نسبت S/N استفاده شد [۲۲].

$$S/N_i = -10 \log \left[ \frac{1}{n_i} \sum_{i=1}^{n_i} \frac{1}{y_i^2} \right] \quad (1)$$

در رابطه ۱ مقدار  $y_i$  مشخصه مورد آنالیز و  $n$  تعداد تکرار هر آزمایش تحت شرایط عملیاتی کاملاً یکسان می‌باشد که برابر ۳ است و زیرنویس i بیانگر تعداد متغیرهای مورد بررسی در آرایه ارتوگونال است.

از آنجا که در طراحی آزمایش‌ها از آرایه ارتوگونال استفاده

جدول (۳) شرایط انجام آزمایش‌ها بر اساس آرایه ارتوگونال L9 و غلظت نیکل در محلول انحلال (A: دما، B: زمان، C: نرمالیته اسید و D: نسبت اسید به فاز جامد)

شماره	A	B	C	D	غلظت محلول لیچینگ (g/lit) و مقدار S/N					
					Ni	S/N <sub>Ni</sub>	Cd	S/N <sub>Cd</sub>	Fe	S/N <sub>Fe</sub>
۱	۱	۱	۱	۱	۵/۵۲	۱۴/۸۴	۲/۲۱	۱۴/۸۴	۰/۲۶	-۱۰/۶۰
۲	۱	۲	۲	۲	۱۰/۹۳	۲۰/۷۷	۷/۰۳	۲۰/۷۷	۰/۹۹	-۰/۰۱
۳	۱	۳	۳	۳	۱۳/۸۸	۲۲/۸۵	۱۲/۸۴	۲۲/۸۵	۲/۰۸	۸/۹۴
۴	۲	۱	۲	۳	۱۳/۷۶	۲۲/۷۷	۱۲/۲۵	۲۲/۷۷	۱/۳۳	۲/۵۴
۵	۲	۲	۳	۱	۱۴/۷۴	۲۳/۳۷	۶/۰۴	۲۳/۳۷	۲/۳۹	۷/۵۷
۶	۲	۳	۱	۲	۱۱/۲۰	۲۰/۹۸	۸/۴۶	۲۰/۹۸	۱/۴۲	۳/۰۶
۷	۳	۱	۳	۲	۲۱/۶۶	۲۶/۷۱	۱۴/۷۸	۲۵/۸۷	۴/۰۱	۱۲/۰۶
۸	۳	۲	۱	۳	۲۰/۴۹	۲۶/۲۳	۱۰/۲۰	۲۶/۲۳	۲/۴۰	۷/۶۰
۹	۳	۳	۲		۱۵/۲۱	۲۳/۶۴	۸/۷۰	۳۰/۵۰	۳/۱۲	۹/۹۴

به هر مرحله را به همراه مقادیر S/N مربوط به هر آزمایش نشان می‌دهد. در ادامه بر اساس معادله ۸، مقدار R محاسبه می‌شود. با محاسبه R، به هر کدام از متغیرها یک رتبه تعلق می‌گیرد. بزرگترین مقدار R، نشان دهنده اثرگذارترین متغیر می‌باشد. علاوه بر این بالاترین مقادیر S/N مربوط به هر متغیر، شرایط آزمایش بهینه را نشان می‌دهد [۱۹].

$$R = (\text{high S/N} - \text{low S/N}) \quad (۸)$$

جدول ۴، ۵ و ۶ مقادیر محاسبه شده برای R و میانگین نسبت S/N مربوط به هر متغیر را در سطوح مختلف برای انحلال نیکل، کادمیم و آهن نشان می‌دهند.

جدول (۴) میانگین مقادیر S/N محاسبه شده برای انحلال نیکل در هر یک از سطوح

سطح	میانگین S/N			R
	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳	
A	۱۹/۴۹	۲۲/۳۸	۲۵/۵۳	۶/۴۰
B	۱۰/۷۲	۱۱/۷۳	۱۱/۲۵	۱/۱۰
C	۶/۹۰	۷/۴۸	۸/۱۰	۱/۲
D	۵/۱۵	۵/۷۱	۵/۹۹	۰/۸۴

با توجه به جدول ۴ می‌توان چنین بیان نمود که به ترتیب فاکتورهای دما، نرمالیته اسید، زمان و نسبت اسید به فاز جامد بیشترین نقش را در افزایش انحلال نیکل دارند و با افزایش هر کدام از این متغیرها از سطح ۱ به سطح ۳ مقدار

### ۳-۲- انتخاب آرایه ارتوگونال<sup>۵</sup> مورد استفاده

با توجه به بررسی‌های صورت گرفته پارامترهای عملیاتی دما، نرمالیته، زمان و نسبت اسید به فاز جامد به عنوان متغیرهای عملیاتی انتخاب شدند. برای بهینه‌سازی هر ۴ متغیر موثر بر لیچینگ از آرایه ارتوگونال (L9) استفاده شده است. جدول ۲ متغیرها و سطوح مورد استفاده برای هر یک از آنها را نشان می‌دهد. به منظور افزایش دقت، هر یک از آزمایش‌ها ۳ مرتبه تکرار شده و در نهایت حجم مساوی از هر کدام انتخاب و بعد از اختلاط مورد آنالیز عنصری نیکل، کادمیم و آهن قرار گرفته است [۲۲].

جدول (۲) متغیرها و سطوح مورد استفاده

پارامتر	سطح		
	۱	۲	۳
دما (°C)	۶۰	۷۵	۹۰
زمان لیچینگ (min)	۳۰	۶۰	۹۰
HCl نرمالیته	۳	۶	۹
اسید/جامد	۴	۷	۱۰

### ۳- بحث و نتیجه‌گیری

#### ۳-۱- تعیین شرایط بهینه

جدول ۳ آرایه ارتوگونال مورد استفاده و مقدار انحلال مربوط

## بهینه‌سازی شرایط عملیاتی لیچینگ باطری‌های دورریز نیکل-کادمیم با روش تاگوچی

جدول (۶) میانگین مقادیر S/N محاسبه شده برای مقدار انحلال آهن در هر یک از سطوح

ردیف	میانگین S/N			
	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳	R
A	۰/۰۲	۴/۱۶	۹/۵۲	۹/۵۰
B	-۰/۷۱	۴/۳۹	۹/۸۷	۹/۱۶
C	۱/۳۳	۵/۰۵	۷/۳۱	۵/۹۵
D	۲/۳۰	۵/۰۵	۶/۳۶	۴/۰۶

در نظر به داده‌های ارائه شده جدول ۶ چنین می‌توان چنین ادعان نمود که به ترتیب متغیرهای دما، زمان، نرمالیت اسید نسبت اسید به فاز جامد دارای بیشترین اثرگذاری روی مقدار انحلال آهن بوده و با افزایش هر کدام از آنها از سطح ۱ به ۳ انحلال آهن نیز افزایش می‌یابد. نکته قابل توجه در این نتایج قرار گرفتن زمان در درجه دوم اثرگذاری روی مقدار انحلال آهن است. این موضوع با افزایش قابلیت انحلال آهن موجود در باطری‌های دورریز با کاهش انحلال نیکل در زمان‌های همخوانی دارد. تحت این شرایط به دلیل کاهش اکتیویته حلال اسیدی مورد استفاده با گذشت زمان و پایداری کمتر آهن جهت انحلال در محیط اسیدی در مقایسه با نیکل موجود لیچینگ می‌تواند صرفاً روی آهن متمرکز می‌شود. براساس روش تاگوچی شرایط بهینه انحلال آهن به صورت A3B3C3D3 تعیین گردید.

با توجه به اینکه هدف بهینه‌سازی لیچینگ می‌باشد و از آنجا که انحلال آهن به عنوان عامل نامطلوب در مراحل بعدی استخراج نیکل و کادمیم شامل استخراج حلالی و الکترولیز به شمار می‌رود، بنابراین اولویت برای بهینه‌سازی لیچینگ، با شرایطی است که در آن انحلال نیکل و کادمیم حداکثر مقدار ممکن و انحلال آهن تا حد امکان کم باشد. البته باید توجه داشت که نمی‌توان به طور کامل انحلال آهن را به عنوان عامل نامطلوب از انحلال کادمیم و نیکل به عنوان عامل مطلوب جدا نمود و وابستگی مستقیم این سه عامل به همدیگر در تغییر متغیرهای عملیاتی امری اجتناب‌ناپذیر است. بر این اساس با توجه به اثرگذاری به نسبت قابل ملاحظه زمان در انحلال آهن در مقایسه با انحلال نیکل و کادمیم، می‌توان سطح ۲ زمان را به عنوان حالت بهینه انتخاب نمود. با توجه به اثر مثبت دما، نرمالیت اسید و نسبت اسید به فاز جامد در انحلال، سطح ۳ برای هر یک از این متغیرها به عنوان حالت بهینه انتخاب گردید. بنابراین حالت بهینه به صورت

انحلال افزایش می‌یابد. البته به استثنای زمان که افزایش آن از سطح ۲ به سطح ۳ باعث کاهش شدت فزآینده مقدار انحلال نیکل می‌شود. با توجه به اینکه بخشی از نیکل موجود به صورت فاز هیدروکسید بوده و در مقایسه با بخشی از نیکل که به صورت فلزی وجود دارد از پایداری کمتری در محیط اسیدی برخوردار است با افزایش زمان انحلال و حل شدن فاز هیروکسید نیکل انتظار می‌رود که نرخ انحلال در زمان‌های بالاتر کاهش داشته باشد [۱۳، ۱۱]. با توجه به نتایج به دست آمده از جدول ۴ شرایط بهینه برای انحلال نیکل حالتی است که متغیرهای عملیاتی دما، نرمالیت اسید، نسبت اسید به فاز جامد هر کدام در سطح ۳ مقدار گرفته باشند و این مقدار برای زمان در سطح ۲ باشد (A3B2C3D3). بر اساس مقادیر به دست آمده برای R می‌توان چنین استنباط کرد که تغییرات دما از سطح ۱ به سطح ۳ باعث تغییرات چشمگیر در انحلال نیکل می‌شود به طوری که تقریباً می‌توان این تغییرات را معادل ۶ برابر تغییر متغیرهای زمان و نرمالیت دانست. این اثر فزآیندی دما را می‌توان به تاثیر نمایی دما روی استحاله‌های شیمیایی نسبت داد. شایان ذکر است که متغیرهای زمان و نرمالیت اسید دارای اثر نسبتاً مشابهی بر انحلال نیکل هستند.

جدول (۵) میانگین مقادیر S/N محاسبه شده برای انحلال کادمیم در هر یک از سطوح

ردیف	میانگین S/N			
	سطح ۱	سطح ۲	سطح ۳	R
A	۱۵/۳۴	۱۸/۶۴	۲۰/۵۷	۵/۲۳
B	۸/۶۶	۸/۸۰	۹/۸۱	۱/۱۵
C	۵/۰۷	۶/۳۲	۶/۸۰	۱/۷۳
D	۳/۳۹	۴/۹۱	۵/۳۴	۱/۹۵

نتایج ارائه شده در جدول ۵ حاکی از اثر فزآینده هر یک از متغیرهای عملیاتی حین افزایش از سطح ۱ به سطح ۳ بوده و در این بین متغیرهای دما، نسبت اسید به فاز جامد، نرمالیت اسید و زمان بیشترین اثرگذاری را بر انحلال کادمیم دارند. همانگونه که مشاهده می‌شود اثر افزایش دما از سطح ۱ به سطح ۳ بیشترین اثرگذاری را با اختلاف زیاد نسبت به سایر متغیرهای عملیاتی دارد. بر این اساس شرایط بهینه برای انحلال کادمیم به صورت انتخاب هر یک از متغیرهای عملیاتی در سطح ۳ تعیین گردید (A3B3C3D3).

می توان چنین استنباط نمود که با ۹۹ درصد اطمینان متغیر زمان در انحلال نیکل، کادمیم و آهن فاقد اهمیت است. این در حالی است که سایر متغیرها اثرگذاری قابل توجهی دارند. در این میان عدم اهمیت فاکتور D (نسبت اسید به فاز جامد) بر انحلال آهن حایز اهمیت است چرا که می توان بدون نگرانی از افزایش انحلال آهن از نسبت های بالاتر اسید به فاز جامد استفاده نمود.

A3B2C3D3 تعیین شد که در حقیقت همان شرایط بهینه انحلال نیکل است.

### ۳-۲- آنالیز واریانس

در روش تاگوچی متغیرهای عملیاتی در صورتی دارای اهمیت خواهند بود که اثرشان در مقایسه با خطای آزمایشگاهی قابل توجه باشد. خطای آزمایشگاهی بر اساس آنالیز واریانس و با حل معادلات ۶ تا ۱۰ تعیین گردید. جداول ۷ تا ۹ نتایج مربوط به آن را نشان می دهد. بر این اساس

جدول (۷) آنالیز واریانس برای انحلال Ni با ۹۹ درصد اطمینان

پارامتر	SS	واریانس	درجه آزادی	F	اطمینان (%)	اهمیت؟
A	۱۲۵/۵۹	۲۰/۹۳	۶	۵/۶۸	۹۹/۹	بلی
B	۶/۹۰	۱/۱۵	۶	۰/۳۱	۱۲/۰	خیر
C	۳۱/۷۶	۵/۲۹	۶	۱/۴۴	۹۹/۸	بلی
D	۲۷/۶۰	۴/۶۰	۶	۱/۲۵	۹۹/۱	بلی
Error	۱۰/۹۶	۳۰/۶۹	۲۰			
Sum	۲۰۲/۸۱		۲۶			

جدول (۸) آنالیز واریانس برای انحلال Cd با ۹۹ درصد اطمینان

پارامتر	SS	واریانس	درجه آزادی	F	اطمینان (%)	اهمیت؟
A	۲۰/۲۰	۳/۳۷	۶	۰/۸۱	۹۹/۱	بلی
B	۸/۱۰	۱/۳۵	۶	۰/۴۲	۸۶/۶	خیر
C	۲۷/۲۷	۴/۵۴	۶	۰/۹۴	۹۹/۵	بلی
D	۶۴/۴۱	۱۰/۷۳	۶	۲/۰۴	۹۹/۹	بلی
Error	۱۰/۰۳	۰/۵۰	۲۰			
Sum	۱۳۰/۰۱		۲۶			

جدول (۹) آنالیز واریانس برای انحلال Fe با ۹۹ درصد اطمینان

پارامتر	SS	واریانس	درجه آزادی	F	اطمینان (%)	اهمیت؟
A	۵/۶۱	۰/۹۴	۶	۴/۱۱	۹۹/۹	بلی
B	۰/۶۱	۰/۱۰	۶	۰/۲۴	۹۳/۴	خیر
C	۴/۶۹	۰/۷۸	۶	۳/۶۹	۹۹/۹	بلی
D	۰/۱۱	۰/۰۱	۶	۰/۰۶	۱۲/۰	خیر
Error	۱۰/۹۱	۰/۵۵	۲۰			
Sum	۲۱/۹۳		۲۶			

به ترتیب ۲۹/۰۱، ۱۵/۰۲ و ۵/۹۰ می باشد که بیان کننده انحلال نسبتا بالای نیکل و کادمیم از یک طرف انحلال نسبتا پایین آهن است.

### ۳-۳- انجام تست های تایید کننده

به منظور تایید شرایط بهینه پیشنهادی با روش تاگوچی، آزمایش تایید کننده با شرایط عملیاتی به صورت A3B2C3D3 انجام گرفت. نتایج نشان داد که تحت این شرایط مقدار انحلال یا درصد وزنی Ni، Cd و Fe در محلول

#### ۴- نتیجه‌گیری

در این پژوهش که با هدف بازیافت باطری‌های دورریز نیکل کادمیم انجام شد، شرایط بهینه انحلال با استفاده از اسید کلریدریک به عنوان اولین مرحله بازیافت به روش هیدرومتالورژی بررسی شد. نتایج نشان می‌دهد که:

- ۱- متغیرهای دما، نرمالیته اسید، زمان و نسبت اسید به فاز جامد به ترتیب بیشترین نقش را در افزایش انحلال نیکل دارند و با افزایش هر کدام از این متغیرها به استثناء زمان از سطح ۱ به سطح ۳ انحلال نیکل افزایش می‌یابد.
- ۲- ترتیب اثرگذاری متغیرهای عملیاتی روی انحلال کادمیم به صورت دما، نسبت اسید به فاز جامد، نرمالیته اسید و زمان است. این اثرگذاری به صورت مثبت بوده و با افزایش هر کدام از آنها انحلال کادمیم زیاد می‌شود.
- ۳- متغیرهای دما، زمان، نرمالیته اسید و نسبت اسید به جامد دارای بیشترین اثر بر انحلال آهن هستند. البته بدلیل حضور آهن در محلول لیچینگ بصورت عامل نامطلوب شرایط باید بگونه‌ای انتخاب شود که این مقدار تا حد ممکن کم باشد.
- ۴- بر این اساس نتایج آنالیز واریانس با ۹۹ درصد اطمینان، متغیر B (زمان) در انحلال نیکل، کادمیم و آهن اهمیت چندانی ندارد. در حالیکه سایر متغیرها اثر قابل توجهی دارند. در این میان عدم اهمیت فاکتور D بر انحلال آهن حایز اهمیت است چرا که می‌توان بدون نگرانی از افزایش انحلال آهن از نسبت‌های بالاتر اسید به فاز جامد استفاده نمود.
- ۵- با توجه به بررسی‌های صورت گرفته شرایط بهینه لیچینگ به صورت A3B2C3D3 تعیین گردید.

#### مراجع

- [7] J. Frenay, P.H. Anicia, and M. Preschia (1994) "Minerallurgical and metallurgical processes for the recycling of used domestic batteries", in: *Proceedings of the Second International Conference on Recycling of Metals ASM*, , 13-20.
- [8] H. Jordi (1995) "A financing system for battery recycling in Switzerland", *Journal of Power Sources* 57, 51-53.
- [9] P. Ammann (1995) "Economic considerations of battery recycling based on Recytec process", *Journal of Power Sources*, 57, 41-44.
- [10] L. Pietrelli, B. Bellomo, D. Fontana, and M. Montereali (2005) "Characterization and leaching of NiCd and NiMH spent batteries for the recovery of metals", *Waste Management*, 25, 221-226.
- [11] I. Vassura, L. Morselli, E. Bernardi, and F. Passarini (2009) "Chemical characterisation of spent rechargeable batteries", *Waste Management*, 29, 2332-2335.
- [12] Lia I.C. Barros, Adriano M.G. Pacheco, and Fernanda Margarido (2002) "Physical-separation procedures for recovering metals from spent Ni-Cd batteries", *Clean Technologies and Environmental Policy*, 3, 392-397.
- [13] M.B.J.G. Freitas, and S.F. Rosalem (2005) "Electrochemical recovery of cadmium from spent Ni-Cd batteries", *Journal of Power Sources*, 139, 366-370.
- [14] B. Ramachandra Reddy, D. Neela Priya, and K. H. Park (2006) "Separation and recovery of cadmium(II), cobalt(II) and nickel(II) from sulphate leach liquors of spent Ni-Cd batteries using phosphorus based extractants", *Separation and Purification Technology*, 50, 161-166.
- [15] C. Nogueira, P. Oliveira, and F. Pedrosa (2009) "Separation of Cadmium, Cobalt, and nickel by solvent extraction using the nickel salts of the extractants", *Solvent Extraction and Ion Exchange*, 27, 295-311.
- [16] F. Habashi (1974) *Principles of extractive metallurgy*, general principles, Gordon & Breach, New York, 95-110.
- [17] J. Budac, R. Fraser, L. Mihaylov, V. G. Papangelakis, and D.J. Robinson (2009) "Hydrometallurgy of nickel and cobalt symposium", *Canadian Institute of Mining Metallurgy and Petroleum*. Ontario, Canada, 25.
- [18] R. Roy (1990) *A Primer on the Taguchi Method*, Van Nostrand Reinhold, New York, 83-94.
- [19] G. Taguchi (1990) *Introduction to quality engineering*, Asian Productivity Organization, Tokyo, 142-181.
- [20] P.J. Ross, and G. Taguchi (1988) *Techniques for quality engineering*, Mc Graw-Hill, New York, 207-281.
- [21] K. Alavi, and B. Salami (1995) *Method for the disposal of nickel-cadmium or nikel-hydride cells*, US Patent 537792.
- [22] N. Belavendram (1995) *Quality by design*, Prentice-Hall, New York, 93-102.
- [1] J. O. Besenhard (1999) *Handbook of Battery Materials*, New York Chichester, Wiley-VCH, 20-58.
- [2] (2000) *Batteries References E-book*, British Library Cataloguing in Publication Data, Third edition.
- [3] H. Magdi, Selim Donald, and L. Sparks (2000) *Heavy Metals release in Soils*, 201-210.
- [4] L. Jarup; (2003) "Hazards of Heavy Metal Contamination", *British Medical Bulletin*.
- [5] A.B. Sab Nife, S. Landskrona, A.L. Melin, and V.H. Svensson (1983) *Process for the recovery of metals from the scrap from nickel-cadmium electric storage batteries*, US Patent 4401463.
- [6] A. Cox, and D.J. Fray (1999) "Recycling of cadmium from domestic sealed NiCd battery waste by use of chlorination", *Transactions of the Institution of Mining and Metallurgy, Section C*, 108, C153-C158.

## Optimization of the experimental conditions for the leaching of nickel-cadmium wastes based on the Taguchi design

Gholam Reza Khayati\*<sup>1</sup>, Kamal Janghorban, Samira Mortezaei Mahin

1. Shahid Bahonar university (khayati@uk.ac.ir)
2. Shiraz university (janghor@shirazu.ac.ir)

---

### ABSTRACT

In this study, Taguchi- robust design method with L9 orthogonal array was implemented to optimize experimental conditions of the leaching of nickel cadmium wastes using hydrochloric acid. The temperature, normality of acid, time and acid to solid ratio were chosen as practical parameters. Also, Ni, Cd and Fe content of leaching solution were considered as the process properties. As a result of the Taguchi analysis, the temperature and the normality of acid were the most influencing parameters on the leaching rate. Also, leaching at 90 °C with HCl 9M for about 90 min and acid to solid ratio of 10 to 1 seemed to be a good solution in terms of efficiency.

All right reserved.

---

### ARTICLE INFO

Article history:

Received 2 Nov. 2011

Received in revised form 25 Jan. 2012

Accepted 15 Feb. 2012

---

Key words:

Leaching

Nickel cadmium wastes

Taguchi method

Optimization

---

\*Corresponding author