

## Merkezi Kompozit Tasarımı Kullanılarak Bakır Cürufundan Arsenik Liçinin İncelenmesi

### Investigation of Arsenic Leaching From Copper Slag by Using Central Composite Design

TUĞBA TÜRK<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Karadeniz Teknik Üniversitesi, Maden Mühendisliği Bölümü, 61080 Trabzon, Türkiye

Geliş (received) : 19 Şubat (February) 2016

Kabul (accepted) : 03 Ağustos (August) 2016

#### ÖZ

Bu çalışmanın amacı, yüzey yanıt metodolojisi kullanılarak sodyum hidroksit ile bakır cürufundan arsenik liçinin incelenmesidir. Bu işlemin optimizasyonu için Merkez kompozit tasarımı kullanılmıştır. Arsenik liçi üzerine sıcaklığın, sodyum hidroksit derişiminin ve liç süresinin etkileri incelenmiştir. Arsenik liç verimi sıcaklığın artmasıyla artmıştır. NaOH derişiminin etkisi sıcaklık etkisiyle karşılaştırıldığında liç verimi üzerinde daha az etkili olduğu görülmüştür. Liç zamanının etkisi ise verim üzerinde göz ardı edilebilecek seviyededir. Arsenik liç verimi %57.24-%71.4 arasında değişmektedir. Optimum liç verimi, sıcaklığın 90°C, NaOH derişiminin 3 M ve tepkime süresinin 188 dakika olduğu koşulda sağlanmış olup %70 olarak bulunmuştur. Bu çalışmanın sonuçları, sodyum hidroksitin bakır cürufundan arsenik liçi için potansiyel bir çözücü olarak kullanılabilceğini göstermiştir. Regresyon eşitliği ve varyans analizi Design-Expert programı kullanılarak yapılmış olup, 0.954 güven seviyesinde varyans analizi ile elde edilmiştir.

**Anahtar Kelimeler:** Alkali liç, arsenik, bakır cürufu, istatistiksel modelleme.

#### ABSTRACT

The objective of this study was to leach arsenic from copper slag waste with sodium hydroxide by optimizing the leaching process using response surface methodology. For optimization of process, the central composite design was employed. The effects of temperature, sodium hydroxide concentration and leaching time on the leaching of arsenic were investigated. Study proved that, arsenic leaching yield increased with increasing temperature. Compared to the temperature effect, the effect of the NaOH concentration of the leaching yield was found to be less effective. In addition, the effect of leaching time had a negligible effect on the yield. The arsenic leaching yield of copper slag was in the range of 57.24 to 71.4%. The optimum conditions identified for arsenic leaching from copper slag were as follows: sodium hydroxide concentration at 3 M, leaching temperature at 90°C and leaching time of 188 min. Under these conditions, an average leaching yield of 70% was achieved from copper slag. The results of this study showed that NaOH can be used as a potential extractant for removal of arsenic from copper slag. The regression equation and analysis of variance were obtained using Design-Expert. A model was obtained by means of variance analysis at 0.954 confidence level.

**Keywords:** Alkaline leaching, arsenic, copper slag, statistical modeling.

\*T. Türk

e-posta: tugbatürk@yahoo.com.tr

## GİRİŞ

Bakır atıkları, demir, kalsiyum oksit, silika vs. gibi bileşenleri içeren bakır cevherlerinin pirometalurjik olarak işlenmesi esnasında oluşmaktadır. Metal üretimi esnasında ton metal başına yaklaşık 2.2 ton atık üretilmektedir (Gorai vd., 2003). Karadeniz Bakır İşletmeleri yıllık bakır cürufu üretim kapasitesi yaklaşık 150.000 tondur. Yılda yaklaşık 1.5-2 milyon ton cüruf ve bakır flotasyon atığı herhangi bir çevresel kirlilik kontrolü yapılmadan Yeşilirmak deltasına boşaltılmaktadır. Bu kadar fazla miktarda atığın depolanması veya bertaraf edilmesi çevre ve yer problemlerine neden olmaktadır (Çoruh vd., 2006). Maden ve metalürjik atıkların çevresel açıdan karakterizasyonu, atıkların potansiyel olarak değerlendirilmesi ve önlemlerin alınması açısından önemlidir. Atıkların tanımlanması için TCLP (Toksiste Karakteristiği Süzme Prosedürü) ve SPLP (Sentetik Yağış Yıkama İşlemi) yaygın olarak kullanılan testlerden bazılarıdır (Townsend vd., 2003). TCLP testinde katı atığın açık arazide maruz kalabileceği şartları benzetmek için organik asitle hazırlanmış çözelti kullanılmaktadır. SPLP testinde ise iki inorganik asitle hazırlanan çözücü asidik yağmur sularını benzetmek için kullanılmaktadır (Lim vd., 2009). Önceki çalışmalarda bakır cürufu TCLP ve SPLP testleri uygulanarak, çevresel açıdan değerlendirilmiştir. TCLP sonuçları bu atıkların "zararsız" olarak sınıflandırılabilirliğini göstermiştir. Ancak, SPLP test sonuçları da dikkate alındığında, atıkta As, Cu, Zn, Pb gibi ağır metallerin oldukça yüksek olduğu görülmüştür (Alp vd., 2008). Yapılan ayrıntılı çalışmalarla izabe tesislerinin çevresindeki toprağın ağır metal kirliliği kanıtlanmıştır (Çubukçu ve Tüysüz, 2007).

Bakır cürufuları; kirliliğin önlenmesi ve/veya atıkların farklı alanlarda değerlendirilebilmesi için çeşitli alanlarda kullanılmaktadırlar. Bir çalışmada bakır cüruf atıkları Portland çimento yapımında demir hammaddesi olarak kullanılmıştır (Alp vd., 2008). Ayrıca arazi ıslahı için dolgu malzemesi (Lim ve Chu, 2006), kahverengi ve siyah pigmentler (Ozel vd., 2006), sinterlenmiş cam-seramik (Çoruh vd., 2006) yapımında kullanımı üzerine çalışmalar bulunmaktadır. Bu atıkların farklı alanlarda değerlendirilmesi planlandığında içinde bulunan çevresel açıdan sorun yaratan bileşenlerinin uzaklaştırılması gerekebilmektedir. Arsenik bu açıdan değerlendirildiğinde çevresel açıdan kullanımını kısıtlayan en önemli bileşenlerden birisi olarak dikkati çekmektedir. Özellikle bakır cürufunun içeriğindeki demir oksit bileşenleri nedeniyle ileriki çalışmalarda arsenik gideriminde kullanılabilecek

ucuz bir yüzey tutucu (adsorbent) olarak kullanıma potansiyelinin bulunması içerisindeki arseniğin uzaklaştırılmasını bir zorunluluk haline getirmektedir.

Arsenik toksik bir kirlenici olup zirai işlemler, metalürjik işlemler, fosil yakıtların kullanımı, bakır, nikel, altın madenciliği, cevher zenginleştirme işlemleri, depolama sahası sızıntı suları gibi etkiler ve uygulamalar çevreye yayılmasına sebep olmaktadır (Altundoğan vd., 2000). Arsenik, kurşun, çinko, bakır, demir gibi maddeler içeren toz materyaller, pirometalürjik (Li vd., 2011a) veya hidrometalürjik (Ke vd., 1984) işlemlerle bu maddelerden arındırılabilirler. Arsenik içeren malzemelerden arsenik çıkarımı genellikle kuvvetli asidik veya bazik koşullar altında gerçekleştirilir (Li vd., 2011b). Bazılar, özellikle, belirli mineral veya mineral karışımından istenen veya istenmeyen bileşenlerin etkin şekilde çözündürülmesini sağlamakta olup asitlere göre daha seçicidirler. Sodyum hidroksit, sodyum karbonat, amonyum hidroksit, amonyum karbonat, kalsiyum hidroksit ve sodyum sülfid en yaygın olarak kullanılan bazik çözücülerdir (Bal, 2006). Curreli vd. (2009) alkali NaOH ve Na<sub>2</sub>S kullanarak enargit mineralinden seçimli bir şekilde arsenik liçini %98 verimle gerçekleştirmişlerdir. Türk (2016) pirit külü atığından NaOH ile arsenik liçini, 90°C'de 180 dakikada 3 M NaOH derişiminde %92.5 verimle gerçekleştirmişlerdir.

Bu çalışmada, farklı alanlarda kullanılabilmesi için bakır cürufunda bulunan arseniğin, liç ile uzaklaştırılmasındaki optimum şartlar merkezi kompozit tasarımı kullanılarak belirlenmeye çalışılmıştır.

## DENEYSEL DİZAYN

### Yüzey yanıt metodu (YYM)

Son yıllarda deney tasarımı yöntemleri birçok farklı alanda yaygın olarak kullanılmaktadır. Bu yaklaşımla özellikle çok değişkenli ve birden fazla bağımlı değişkene sahip sistemlerde sorunlar yaşanabilmektedir. Bu durumda, deneysel modeller ve istatistiksel analiz metotları önemli rol oynamaktadırlar. Ortam koşullarının optimizasyonu, verimi artırma ve maliyetini düşürme bakımından büyük avantajlar sağlamaktadır. Bu metotların etkin kullanımı ile işlemin kontrol edilmesi kolay olmaktadır. Bu metodların başında YYM gelmektedir (Myers ve Montgomery, 2002).

YYM hem endüstriyel hem de bilimsel çalışmalarda sıkça kullanılan bir yöntem olarak ön plana

çıkılmaktadır. Bu yöntem matematiksel ve istatistiksel verileri bir arada değerlendirmekte ve optimum deney şartlarını belirlemede son zamanlarda sıkça kullanılmaktadır (Çalban vd., 2006; Mohapatra vd., 2009; Zhang vd., 2010; Turan ve Altundoğan, 2011; Turan vd., 2015). YYM fonksiyonlarının belirlenmesinde en yaygın kullanılan tasarım tipleri tam faktöriyel tasarım, kısmi faktöriyel tasarım ve merkez kompozit tasarımı (MKT) bulunmaktadır (Ito vd., 2001). MKT yönteminde iki faktöriyel nokta mevcuttur bunlar, aksel noktalar ( $\alpha$ ) ve merkez noktalarıdır. Yöntemin iki faktöriyel noktaları, bir faktörün + (en yüksek) veya - (en düşük) düzeylerinden oluşur. Aksel noktalar, deneycinin belirlediği iki düzey noktalarının daha ötesinde olan program tarafından Eşitlik (1) ile belirlenen  $+\alpha$  ve  $-\alpha$  değerlerdir.

$$\alpha = 2k/4 \text{ (} k \text{ çalışılan bağımsız değişken sayısı)} \quad (1)$$

Merkez noktalar ise deneysel hatayı tahmin etmek için tekrar edilen noktalar. Parametrelerin iki düzey (faktöriyel) noktalarının orta noktalarıdır. Sonuç olarak MKT'de her bir parametrenin beş düzeyi vardır. Bunlar +1 ve -1 ile ifade edilen faktöriyel noktalar  $+\alpha$  ve  $-\alpha$  ile ifade edilen aksel noktalar, 0 olarak ifade edilen merkez noktalarıdır. MKT modelinden elde edilen deneysel sonuçlar Eşitlik (2) kullanılarak değerlendirilir.

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^k \beta_i \chi_i + \sum_{i=1}^{k-1} \sum_{j=i+1}^k \beta_{ij} \chi_i \chi_j + \sum_{i=1}^k \beta_{ii} \chi_i^2 \quad (2)$$

Bu karesel model n tane değişkenin lineer etkilerini, karesel etkilerini ve aralarındaki etkileşimlerini dikkate almaktadır. Bu modelde Y tahmini yanıt,  $\beta_0$ , sabit katsayı,  $\beta_i$ , lineer katsayı,  $\beta_{ij}$ , i ve j değişkenleri arasındaki etkileşim etkisini ve k faktör sayısını tarif etmektedir (Liu vd., 2011; Khor ve Abdullah, 2012). En küçük kareler yöntemi ile regresyon analizi ile de ikinci derece modeldeki katsayılar tahmin edilerek regresyon denklemi oluşturulmaktadır. Oluşturulan denklem yardımı ile de yanıtlar için tahmini sonuçları elde edilerek, tahminlerin doğruluğu, modelin yeterli olup olmadığı kontrol edilmektedir.

## DENEYSEL

### Malzemenin tanımlanması

Bu çalışmada, Karadeniz Bakır İşletmeleri'nden (Samsun, Türkiye) elde edilen flash fırın cürufununun

geri kazanım için kullanılan flotasyon tekniğinin atığından gelen bakır cürufu (BC) kullanılmıştır. Bu atıklar tesisin stok sahasında depolanmaktadır. Çalışma kapsamında stok sahasından temsili numuneler alınmış olup herhangi bir öğütme işlemi uygulanmamıştır. Bakır cürufunun kimyasal bileşimi İndüktif Bağlantılı Plazma-Kütle Spektrometre (ICP-MS) cihazı ile Acme Analiz Laboratuvarında (Çizelge 1), mineralojik bileşimi Rigaku Geigerflex X-Işını Kırınım (XRD) cihazı ile ( $\text{Cu } K\alpha=1.54059 \text{ \AA}$ ,  $2\theta=5-65^\circ$ ) Act Analiz Laboratuvarında ve tane boyut dağılımı Malvern Mastersizer (Hydro MU2000) cihazıyla KTÜ maden mühendisliği bölümünde belirlenmiştir. Brunauer-Emmett-Teller (BET) azot adsorpsiyonu yöntemi BC'nin yüzey alanının saptanması için kullanılmıştır ve özgül yüzey alanı  $4.81 \text{ m}^2/\text{g}$  bulunmuştur. Numunedeki ana bileşenler  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (%59.08) ve  $\text{SiO}_2$  (%30.60)' dir. X-ışını kırınım analizinin sonucuna göre numunede fayalit ( $\text{Fe}_2\text{SiO}_4$ ), manyetit ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ), kuvars ( $\text{SiO}_2$ ) ve kristobalit ( $\text{H}_2\text{O}_5\text{Si}_2$ ) bulunmaktadır. Tane boyut analizlerinde ise %80'inin geçtiği boyut değerinin 80 mikron olduğu görülmektedir (Şekil 1).

### Deneysel yöntem

Arsenik uzaklaştırma testleri bazik çözeltilerde bakır cürufu atıklarının çözülmesiyle gerçekleştirilmiştir. Bakır cürufundan arsenik uzaklaştırılması üzerine liç sıcaklığının ( $X_1$ ) (60, 70, 85, 90 ve  $95^\circ\text{C}$ ), başlangıç NaOH derişiminin ( $X_2$ ) (0.5, 1, 1.75, 2.5 ve 3 M) ve liç süresinin ( $X_3$ ) (38, 120, 240, 360 ve 440 dk) etkisi 5 seviyede incelenmiştir (Çizelge 2). Tüm deneyler %0.5 katı oranında 300 mL liç çözeltisinde 400 dev/dk değerinde gerçekleştirilmiştir. Ayrıca liç işlemi sırasında buharlaşma kayıplarını önlemek için geri soğutucu kullanılmıştır. Liç sonrasında analiz için alınan örnekler 4000 dev./dk. hızda 15 dk. santrifüjlenmiştir. Daha sonra arsenik derişimleri ICP-MS ile belirlenmiştir.

## SONUÇLAR VE TARTIŞMA

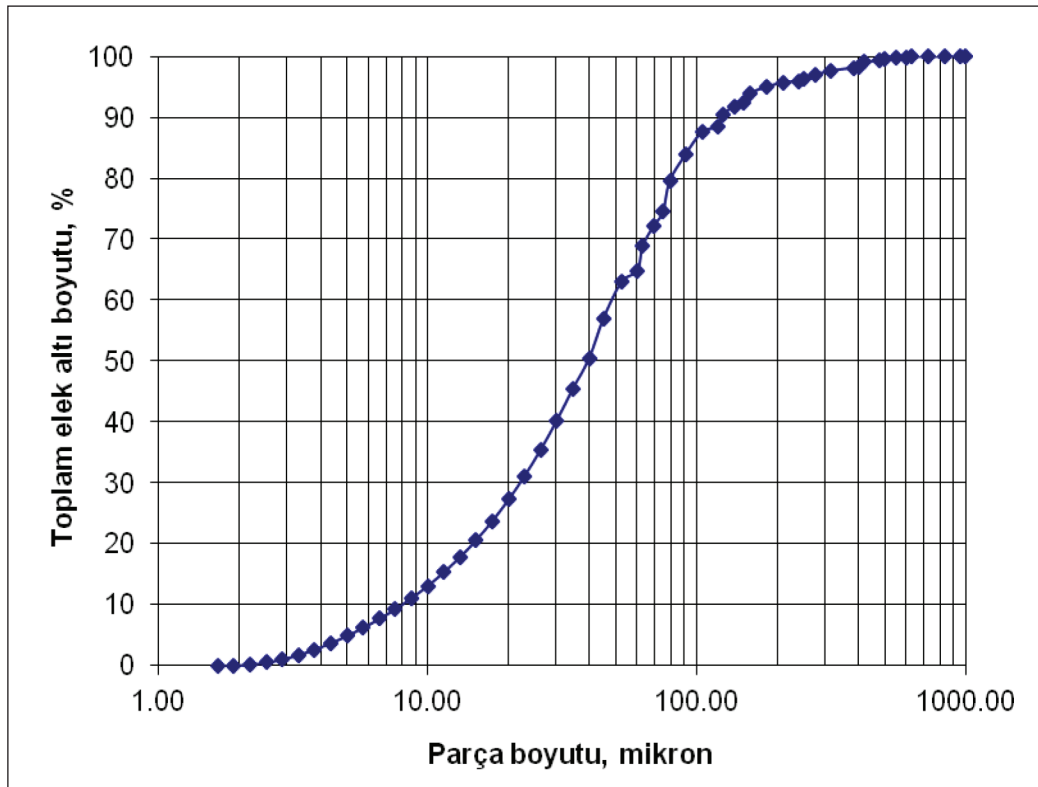
### Yüzey yanıt metodu ve tartışma

Deneysel tasarım, 3 faktörlü tam faktöriyel MKT kullanılarak Design-Expert programı ile tasarlanmıştır. Tasarlanan deney şartları ve arsenik liç veriminin deneysel ve tahmini değerleri Çizelge 3'te gösterilmektedir.

Deneylerde liç sıcaklığı  $70-90^\circ\text{C}$ , NaOH derişimi 1-2.5 M ve tepkime zamanı 120-360 dk aralıklarında

Çizelge 1. Bakır cürufunun (BC) kimyasal bileşimi.  
Table 1. Chemical composition of copper slag (CS).

Bileşik/Element	%	Element	%
SiO <sub>2</sub>	30.60	As	0.006
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	59.08	Mn	0.01
Ca	0.13	Cr	0.01
Al	0.24	Co	0.03
Mg	0.26	Sr	0.001
Cu	0.53	F	0.33
Pb	0.08	S	0.40



Şekil 1. Bakır cürufunun (BC) parça boyut dağılımı.  
Figure 1. Particle size distribution of the copper slag (CS).

düşünülmesine rağmen MKT tasarımı kullanıldığında Çizelge 3'ten de görüldüğü gibi inceleme alanının dışında uç noktalarda da inceleme imkanı elde edilmiştir. Çizelge 3'te 8 adet küp nokta, 6 adet aksel nokta ve 2 adet merkez noktası görülmektedir. 16 deneyin son 1 tanesi tekrar deneyi olarak yapılmıştır. Arsenik liç verimi %57.24-%71.4 arasında değişmektedir.

Çizelge 4'te arsenik liçi için varyans analiz değerleri gösterilmektedir.

P>F değeri hangi parametrenin etkin olduğunu göstermektedir. P>F değeri 0.05 küçük olan parametrelerin daha etkin olduğu bilinmektedir (Trinh ve Kang, 2010). Çizelge 4 incelendiğinde X<sub>1</sub> kodlu değerlerin yani sıcaklığın arsenik çözünme verimi üzerinde daha etkili olduğu görülmektedir. Modelin doğruluğu için

Çizelge 2. Deneysel tasarımda kullanılan faktörler ve düzeyleri.  
Table 2. Factors and levels used in the experimental design.

Faktörler	$-\alpha$	Düşük Seviye -1	Merkez Nokta 0	Yüksek Seviye +1	$+\alpha$
Sıcaklık, °C ( $X_1$ )	63	70	80	90	96.8
NaOH derişimi, M ( $X_2$ )	0.48	1	1.75	2.5	3
Liç süresi, dk ( $X_3$ )	38	120	240	360	440

Çizelge 3. Deneysel tasarım ve arsenik liç veriminin deneysel ve tahmini değerleri.

Table 3. Experimental design and experimental and estimated values of arsenic leaching efficiency.

Deneysel no	Değişkenlerin kodlu değerleri			Arsenik liç verimi (%)	
	$X_1$	$X_2$	$X_3$	Deneysel	Tahmini
1	-1.00000	-1.00000	-1.00000	57.2440	57.7364
2	1.00000	-1.00000	-1.00000	66.7140	65.0377
3	-1.00000	1.00000	-1.00000	61.5829	61.7984
4	1.00000	1.00000	-1.00000	70.6398	70.2371
5	-1.00000	-1.00000	1.00000	60.6000	60.5616
6	1.00000	-1.00000	1.00000	67.5074	66.8508
7	-1.00000	1.00000	1.00000	61.8143	63.0495
8	1.00000	1.00000	1.00000	71.4095	70.4761
9	-1.68179	0.00000	0.00000	57.4298	56.0846
10	1.68179	0.00000	0.00000	66.5003	68.4693
11	0.00000	-1.68179	0.00000	63.2457	64.1503
12	0.00000	1.68179	0.00000	70.8954	70.6146
13	0.00000	0.00000	-1.68179	61.9133	62.5159
14	0.00000	0.00000	1.68179	65.0714	65.0926
15	0.00000	0.00000	0.00000	64.8084	64.8083
16	0.00000	0.00000	0.00000	64.9152	64.8083

hesaplanan  $R^2$  değerinin en az 0.80 olması gerektiği literatürde belirtilmektedir (Yang vd., 2013). Çalışmada  $R^2$  değeri 0.954 olarak bulunmuştur. Böylelikle modelin uyumunun yüksek olduğu anlaşılmıştır. Arsenik yanıt değerleri için tahmini model denklemi Eşitlik (3)'te verilmektedir.

$$\begin{aligned} \text{Arsenik liç verimi} = & -24.98062 + 1.78407X_1 - \\ & 5.07930X_2 + 0.042747X_3 - 8.94595 \times 10^{-3}X_1^2 \\ & + 1.61830 X_2^2 - 2.45596 \times 10^{-5}X_3^2 + 0.037833X_1X_2 - \\ & 2.11458 \times 10^{-4}X_1X_3 - 4.37500 \times 10^{-3}X_2X_3 \end{aligned} \quad (3)$$

Çizelge 4. Arsenik liçi için varyans analiz değerleri ( $R^2$ : 0.95,  $R^2_{adj}$ : 0.89).

Table 4. Analysis of variance values for arsenic leaching.

Kaynak	Kareler toplamı	Serbestleşme derecesi	Kareler ortalaması	F-Değeri	p > F	
Model	273.58	9	30.40	14.03	0.0022	önemli
$X_1$ -Sıcaklık, °C	11.02	1	11.02	5.08	0.0650	
$X_2$ -NaOH derişimi, M	1.33	1	1.33	0.61	0.4634	
$X_3$ -Liç süresi, dk	2.51	1	2.51	1.16	0.3231	
$X_1X_2$	0.64	1	0.64	0.30	0.6053	
$X_1X_3$	0.52	1	0.52	0.24	0.6432	
$X_2X_3$	1.24	1	1.24	0.57	0.4780	
$X_1^2$	7.41	1	7.41	3.42	0.1138	
$X_2^2$	7.68	1	7.68	3.54	0.1088	
$X_3^2$	1.16	1	1.16	0.53	0.4922	
Artan	13.00	6	2.17			

Regresyon analizinden takiben, tahmini değer ile gerçek değerlerin kıyasının gösterildiği grafik çizilmiştir (Şekil 2). Şekil 2'den de anlaşılabilir olduğu gibi gerçek değerlerle tahmini değerler birbiri ile uyumludur.

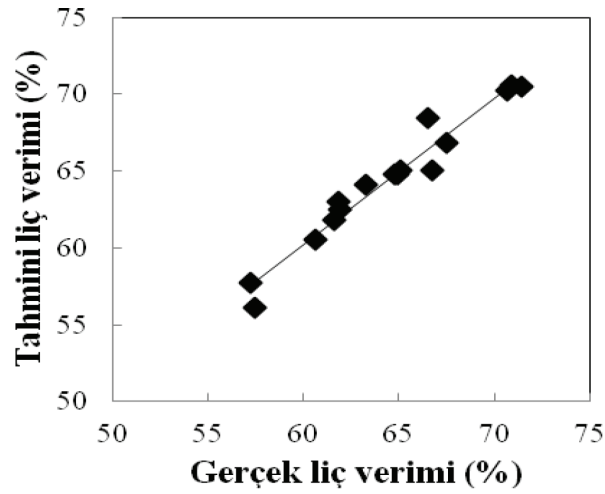
### İşlem optimizasyonu

Deneysel çalışmanın istatistik değerlendirme sonrası sonuçların optimize edilmesi gerekmektedir. Optimum liç koşulları, liç etkinliğini maksimize etmek için Design-Expert software kullanılarak belirlenmiştir. Deneysel çalışma sonucunda elde edilen optimum liç koşulları ve muhtemel yanıt değerleri Çizelge 5'te gösterilmektedir. Optimum liç verimi üç deneysel koşul için %70 olarak bulunmuştur. Bu değer tahmini liç verimi ile uyum sağlamaktadır. Optimum şartlar sıcaklığın 90°C, NaOH derişiminin 3 M ve liç süresinin 188.76 dakika olduğu durumda sağlanmıştır. Optimum şartlarda elde edilen arsenik liç verimi üç boyutlu grafiklerle Şekil 3-5'te görülmektedir. Şekil 3'ten de anlaşılabilir olduğu gibi en yüksek liç verimi yüksek sıcaklıklarda elde edilmiştir. Sıcaklık 63°C'den 96°C'ye çıkartıldığında liç verimi %57'den %66.5 değerine yükselmiştir. Türk (2016) yaptığı bir çalışmada bazik liç çözeltilisi ile pirit külünden arsenik liçini yüksek sıcaklıklarda gerçekleştirmiştir. Sonuç olarak sıcaklığın artmasıyla arsenik çözünmesinin

de arttığı belirtilmiştir. Şekil 4'te NaOH derişiminin artmasıyla liç veriminin arttığı görülmektedir. NaOH derişimi 0.48 M'den 3.01 M'e yükseldiğinde liç verimi %63'ten %70 değerine çıkmıştır. Fakat NaOH derişiminin etkisi sıcaklık etkisiyle karşılaştırıldığında liç verimi üzerinde daha az etkilidir. Liç süresinin ise arsenik liç verimi üzerindeki etkisi yok denecek kadar azdır. Liç süresi 38 dakikadan 441 dakikaya arttığında liç verimi %62'den %65'e çıkmıştır.

### Sonuçlar

Birden fazla değişkeni olan bir ekstraksiyon çalışmasında yüzey yanıt metodu kullanılarak az sayıda deneysel çalışma ile çok sayıda sonuç elde edilebilmektedir. Ayrıca sonuçlar istatistiksel olarak analiz edilebilmekte ve elde edilen grafiklerle sonuçlar daha sağlıklı bir şekilde değerlendirilebilmektedir. Bu çalışmada ekstraksiyon işleminde kullanılan parametreler, NaOH derişimi, sıcaklık ve liç süresi olarak tespit edilmiştir. NaOH ile liç işlemini etkileyen en önemli parametreler etki sırasına göre, sıcaklık, NaOH derişimi ve liç süresi olarak belirlenmiştir. Yüzey yanıt metodu kullanılarak elde edilen model eşitliği deneysel veriler ile 0.967 korelasyon katsayısı ile iyi bir şekilde uyum sağlamıştır. Arsenik liç verimi %57.24-%71.4 arasında değişmektedir.



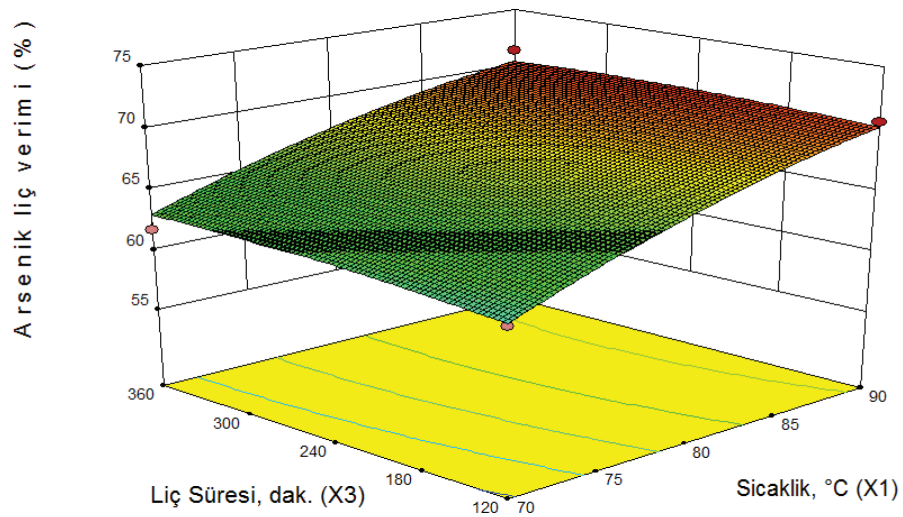
Şekil 2. Deneysel verilerle tahmini model karşılaştırılması.

Figure 2. Comparison model of prediction with the experimental data.

Çizelge 5. Tahmini ve deneysel liç verimi ile optimum liç koşulları ve karşılaştırmalı sonuçları.

Table 5. Comparative results of estimated and experimental leaching efficiency with optimum leaching conditions.

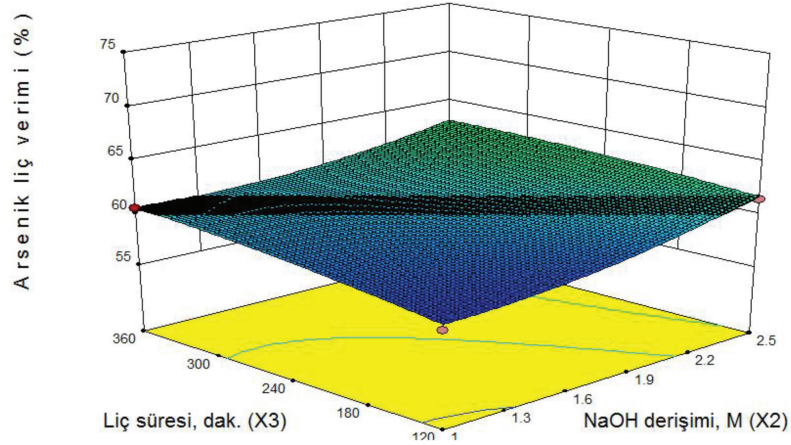
Sıcaklık (°C, $X_1$ )	NaOH derişimi (M, $X_2$ )	Süre (dk., $X_3$ )	Liç verimi (%)	
			Tahmini	Deneysel
90	3	188.76	73	70



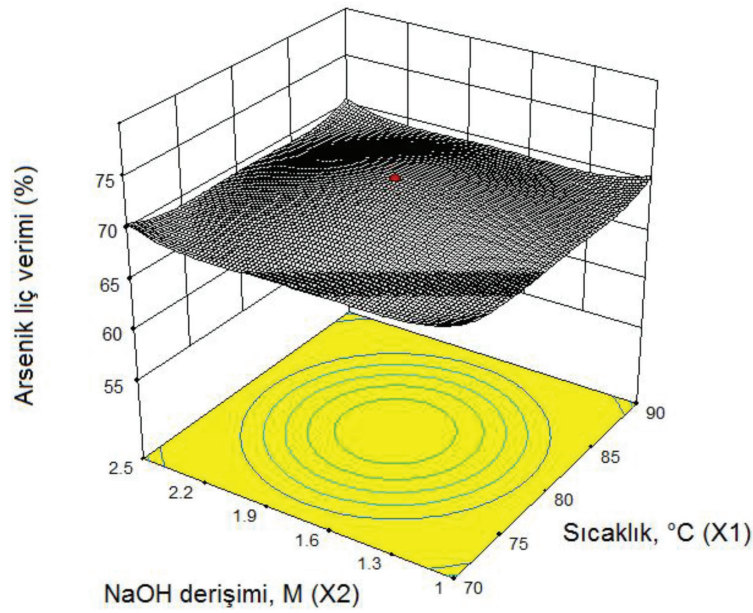
Şekil 3. Sabit NaOH derişiminde (2.5 M) liç süresi ve sıcaklığın arsenik liçine etkisi.

Figure 3. Effect of temperature vs. leaching time on leaching yield at a sodium hydroxide concentration of 2.5 M.





Şekil 4. Sabit sıcaklıkta (90°C) NaOH derişimi ve liç süresinin arsenik liçine etkisi.  
Figure 4. Effect of sodium hydroxide concentration and leaching time on leaching yield at 90°C.



Şekil 5. Sabit liç süresinde (360 dk.) sıcaklık ve NaOH derişiminin arsenik liçine etkisi.  
Figure 5. Effect of sodium hydroxide concentration vs. temperature on leaching yield at a leaching time of 360 minutes.

Optimizasyon için optimuma yakın parametre aralıkları Design-Expert programında, sıcaklığın 90°C, NaOH derişiminin 3 M ve liç süresinin 188.76 dakika olduğu zamanda sağlanmıştır. Optimum şartların sağlandığı deneysel işlemlerin sonucunda liç verimi %70 olarak bulunmuştur.

#### KATKI BELİRTME

Yazar Karadeniz Bakır İşletmeleri'ne (Samsun, Türkiye), bakır cüruf numunesinin sağlanmasındaki yardımlarından dolayı teşekkür eder.

#### KAYNAKLAR

- Alp, I., Deveci, H., and Sungun, H., 2008. Utilization of flotation wastes of copper slag as raw material in cement production. *Journal of Hazardous Materials*, 159, 390-395.
- Altundoğan, H.S., Altundoğan, S., Tümen, F., and Bildik, M., 2000. Arsenic removal from aqueous by adsorption on red mud. *Waste Management*, 20, 761-767.



- Bal, M., 2006. Seyreltik Sulu Çözeltiler Destekli Sıvı Membran İşlemi İle Bakırın Ekstraksiyonu. Yüksek Lisans Tezi, Sakarya Üniversitesi, Sakarya, Türkiye.
- Curreli, L., Garbarino, C., Ghiani, M., and Orru, G., 2009. Arsenic leaching from a gold bearing enargite flotation concentrate. *Hydrometallurgy*, 96, 258-263.
- Çalban, T., Çolak, S., and Yeşilyurt, M., 2006. Statistical modeling of Chevreul's salt recovery from leach solutions containing copper. *Chemical Engineering and Processing*, 45, 168-174.
- Çoruh, S.C., Ergun, O.N., and Cheng, T.W., 2006. Treatment of copper industry waste and production of sintered glass-ceramic. *Waste Management Research*, 24, 234-241.
- Çubukçu, A., and Tüysüz, N., 2007. Trace element concentrations of soils, plants and waters caused by a copper smelting plant and other industries, Northeast Turkey. *Environment Geology*, 52, 93-108.
- Gorai, B., Jana, R.K., and Premchand K., 2003. Characteristics and utilisation of copper slag /a review, *Resources. Conservation and Recycling*, 39, 299-313.
- Ito, A., Takachi, T., Kitada, K., Aizawa, J., and Umita, T., 2001. Characteristics of arsenic elution from sewage sludge. *Applied Organometallic Chemistry*, 15, 266-270.
- Ke, J.J., Qiu, R.Y., and Chen, C.Y., 1984. Recovery of metal values from copper smelter flue dust. *Hydrometallurgy*, 12, 217-224.
- Khor, C.Y., and Abdullah, M.Z., 2012. Optimization of IC encapsulation considering fluid/structure interaction using response surface methodology. *Simulation Modelling Practice and Theory*, 29, 109-122.
- Li, Y., Liu, Z., Li, Q., Zhao, Z., Liu, Z., and Zeng, L., 2011a. Removal of arsenic from Waelz zinc oxide using a mixed NaOH-Na<sub>2</sub>S leach. *Hydrometallurgy*, 108, 165-170.
- Li, Y., Liu, Z., Li, Q., Zhao, Z., Liu, Z., and Zeng, L., 2011b. Removal of arsenic from arsenate complex contained in secondary zinc oxide. *Hydrometallurgy*, 109, 237-244.
- Lim, M., Han, G.C., Ahn, J.W., You, K.S., and Kim, H.S., 2009. Leachability of Arsenic and Heavy Metals from Mine Tailings of Abandoned Metal Mines. *International Journal Environment Research, Public Health*, 6, 2865-2879.
- Lim, T.T., and Chu, J., 2006. Assessment of the use of spent copper slag for land reclamation. *Waste Management Research*, 24, 67-73.
- Liu, J., Wen, S., Liu, D., and Lv, M., 2011. Response surface methodology for optimization of copper leaching from a low-grade flotation middling. *Journal of Minerals and Metallurgical processing*, 28, 139-145.
- Mohapatra S., Pradhan N., Mohanty S., and Sukla L.B., 2009. Recovery of nickel from lateritic nickel ore using *Aspergillus niger* and optimization of parameters. *Minerals Engineering*, 22, 311-313.
- Myers R.H., and Montgomery D.C., 2002. *Response Surface Methodology*. John Wiley & Sons, 2. Baskı, New York.
- Ozel, E., Turan, S., Çoruh, S., and Ergun, O.N., 2006. Production of brown and black pigments by using flotation waste from copper slag. *Waste Management Research*, 24, 125-133.
- Townsend, T., Jang, Y.C., and Tolaymat, T., 2003. *A Guide to the Use of Leaching Tests in Solid Waste Management Decision Making*, The Florida Center for Solid and Hazardous Waste Management, University of Florida Gainesville, Report 03-01, Florida.
- Trinh, T.K., and Kang, L.S., 2010. Application of Response Surface Method as an Experimental Design to Optimize Coagulation Tests. *Environmental Engineering Research*, 15, 063-070.
- Turan, M.D., ve Altundoğan H.S., 2011. Hidrometalurjik Araştırmalarda Yanıt Yüzey Yöntemlerinin (YYY) Kullanımı. *Madencilik*, 50, 11-23.
- Turan, M.D., Arslanoğlu, H., and Altundoğan, H.S., 2015. Optimization of the leaching conditions of chalcopyrite concentrates using ammonium persulfate in an autoclave system. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 50, 49-55.
- Türk, T., 2016. Optimization of arsenic removal from pyrite ash by NaOH leaching using central composite design. *Desalination and Water Treatment*, 57, 8575-8582.

Yang, K.D., Ye, X.J., Su, J., Su, H.F., Long, Y.F., Lü, X.Y., and Wen, Y.X., 2013. Response surface optimization of process parameters for reduction roasting of low-grade pyrolusite by bagasse. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 23, 548-555.

Zhang, Z., Peng, J., Srinivasakannan, C., Zang, Z., Zang, L., Fernandez, Y., and Menendez, J.A., 2010. Leaching zinc from spent catalyst: Process optimization using response surface methodology. *Journal of Hazardous Materials*, 176, 1113-1117.