



Orijinal Araştırma / Original Research

BOX-BEHNKEN DENEY TASARIMI İLE MİKRODALGA ENERJİLİ ISITMANIN YÜKSEK SÜLFÜRLÜ ALTIN FLOTASYON KONSANTRESİNE ETKİLERİ: OPTİMİZASYON VE MODELLEME

BOX-BEHNKEN EXPERIMENTAL DESIGN FOR THE EFFECT OF MICROWAVE HEATING ON HIGH SULPHIDIC GOLD FLOTATION CONCENTRATE: OPTIMIZATION AND MODELLING

Birgül Benli^{a,*}, Atacan Adem^{a,**}

^a İstanbul Teknik Üniversitesi, Cevher Hazırlama Mühendisliği Bölümü, İstanbul, TÜRKİYE

Geliş Tarihi / Received : 31 Temmuz / July 2019
Kabul Tarihi / Accepted : 11 Şubat / February 2020

Anahtar Sözcükler:
Mikrodalga ısıtma,
Refrakter altın,
Sülfür,
Box-Behnken tasarımı,
Optimizasyon.

Keywords:
Microwave heating,
Refractory gold,
Sulphur,
Box-Behnken Design,
Optimization.

ÖZ

Bu çalışmada, mikrodalga enerjili ısıtmanın, refrakter özelliği gösteren düşük tenörlü altın konsantresine olan etkileri, Box-Behnken deney tasarımı yardımıyla kızdırma kaybı üzerinden modellenerek incelenmektedir. Mikrodalga enerji uygulandığında, ısıtma veya bölgesel kavurma prosesinin etkili parametreleri olarak güç (Watt), süre (dakika) ve kütle (g) bağımsız değişkenleri seçilerek 3 değişkenli Box-Behnken üzerinden 15 adet deney olarak tasarlanmış, bağımlı değişken için model eşitlikleri geliştirilmiştir. Ardından, Minitab programı yardımıyla, yanıt yüzey yöntemine göre etkili parametrelerin optimizasyonu incelenmiştir. Optimizasyon çalışmalarında kullanılan cevher, ülkemizin batı kesimi, Ege bölgesinden temin edilmiş, önceki çalışmalarımız sırasında Denver hücrelerinde flotasyonla nihai 4 ppm Au ve %21 kükürt içeriğine ulaştırılmıştır. Deneysel çalışmalar sonunda hesaplanan optimizasyon değerlendirmelerine göre 3 g miktardaki numunenin, 30 dakika süresince 680 W'lık mikrodalga enerjisinin aktarımının yeterli olduğu bulunmuştur.

ABSTRACT

In this study, the effects of microwave heating on sulphidic refractory gold concentrate were investigated. When microwave energy is applied, the power (Watt), time (minute) and mass (g) independent variables, which are the effective parameters of the heating or roasting process, are designed as 3 variable Box-Behnken and model equations are developed for dependent variable. Gold ore used in the optimization studies is the flotation concentrate which has been reached to 4 ppm Au and 21% sulphur content in our previous Denver flotation studies obtained from the western part of Turkey, Aegean region. Minitab program was used to analyse optimization values, it was found that the transfer of 680 W microwave energy on the sample in 3 g amount was sufficient during 30 minutes.

* Sorumlu yazar / Corresponding author: benli@itu.edu.tr • <https://orcid.org/0000-0001-7386-5003>

** atacanadem@gmail.com • <https://orcid.org/0000-0002-8870-5333>

GİRİŞ

Minerallerin konvansiyonel ısı işleme, yüksek enerji tüketen bir süreç olup, günümüzde ülkelere göre değişmekle birlikte çoğu ülke için ekonomik değildir. Bu yüzden, araştırmacılar son yıllarda enerji kullanımı yönünde daha verimli alternatif süreçler aramaya devam etmektedirler. Çözüm süreçlerinden biri de mikrodalga enerjisini kullanan uygulamalardır. Mikrodalga tabanlı teknolojilerle, telekomünikasyondan, gıda işleme, tıbbi atıkların iyileştirilmesi, çevre koruma, kimya mühendisliği, malzeme hazırlama ve mineral işleme gibi alanlarda geleneksel ısıtmayı kullanan tekniklere kıyasla %10-20 oranında randımanı yükselterek, daha verimli sonuçlar alınmaktadır. Bu oran özellikle kömür kurutmada, %30'un üzerine çıkmaktadır (Benli ve Adem, 2019).

Mikrodalga enerjisi, numune içindeki dielektrik sabiti yüksek polar molekülleri harekete geçirerek, moleküllerin titreşmesine yol açar. Suyun yüksek dielektrik sabitine sahip, polar bir molekül olması, sulu işlemlerin yüksek hızla uygulanmasını sağlar. Benzer durum, nemli numuneler için de söz konusudur. Kinetik teori ile açıklanan moleküler hareketlilik, sistemde kinetik enerjinin artmasına, Enerjinin Korunumu ilkesi olarak bilinen Termodinamiği 1. Kanunu göre ortaya çıkan enerji sistemde sıcaklık artışına yol açarak ısı enerjisine dönüşür. Bu nedenle, mikrodalga enerjisinin radyasyonla olan ısı iletim mekanizması sayesinde numunenin derinlerinden başlayarak etki gösterir; böylece, elektromagnetik spektrumu 300 MHz ile 300 GHz aralığında frekansa sahip radyasyonu kullanarak, iletim (kondüksiyon), taşınım (konveksiyon) ve ışınım (radyasyon) yöntemlerini kullanan klasik konvansiyonel ısıtmadan ayrılır. Mikrodalga etkisi altında kalan bir malzeme geçirimsiz, iletken ya da soğurma özelliğine sahiptir. Isınma sadece mikrodalgayı soğurma yani absorbe edebilen numunelerde görülür. Refrakter cevherler çok farklı mineralleri bünyesinde bulunduran yapılardan meydana geldiğinden bölgesel ısınma gösterirler. Buna yol açan elektromanyetik dalga hızının

değişmesidir. Bilindiği üzere, elektromanyetik dalga hızı ölçülebilen bir sabittir. Dielektrik sabiti (ϵ) yada elektrik geçirgenliği (permittivity) olarak bilinir. Çizelge 1'de çalışma konusu olan refrakter cevherlerde bulunabilecek minerallerin dielektrik sabitleri verilmektedir.

Cevher hazırlama alanında ise 1960'lardan sonra mikrodalga kullanılmaya başlanmış, teknoloji yeni olmasa da ticarileşme süreci oldukça zaman almıştır. Günümüzde ise endüstriyel ölçekte mikrodalga fırınların ticari ulaşılabilir olması, sadece kurutma işlemlerinde değil, kükürt giderimi gibi prosesler de yer bulmasının yolunu açmıştır. Mikrodalga enerji; ısıtma, kurutma, liç işleme, kavurma, ergitme, oksitli minerallerin karbotermik redüksiyonu, seramik malzemelerin sentezi, kurutma ve sinterleme gibi işlemlerin uygulanmasında kullanılabilir.

Mikrodalga uygulamanın belki de en önemli özelliklerinden biri proses süresindeki ciddi düşüştür. Benli ve İpekoğlu (1995, a ve b) asidik liç işlemindeki etkinliğini, 4,5 saatlik liç süresinin 14,5 dakika'ya düştüğünü, liç katısında gözenek artırımı gibi yapısal değişmelerin olduğunu SEM (Elektron Mikroskobu) görüntüleri üzerinden takip ederek ortaya koymuşlardır. Mikrodalga enerjisini kullanan uygulama örnekleri arasında; susuz boraks üretimi (Kocakusak vd., 1995), kolemanitin ufalanma ve flotasyon etkinliği (Demir vd., 2017), ilmenitin öğütülmesi (Guo vd., 2011), pirit, kalkopirit, galena ve sfalerit magnetik ayırma ve flotasyon verimliliğinin artırılması (Can ve Bayraktar, 2007), nikel-demir laterit cevheri ve alüminyum sanayi atığına mikrodalga uygulanması (Samouhos vd., 2016), altın cevheri öğütme ve siyanürizasyona etkisi (Cemaliye ve Bayat, 2018), piritin manyetik özelliklerinin artırılması (Uslu ve Atalay 2003), piritik sert kayaçların mikrodalga kaynaklı kırılması (Lu vd., 2019), mikrodalga destekli delme makinası (Hassani ve Nekoovaght, 2011), mikro işleme teknolojisi kullanılarak bakır işleme tesislerinin enerji tüketimini % 20 azaltan RioTinto-Microhammer (Moore, 2018) sayılabilir.

Çizelge 1. Refrakter altın cevheri bünyesinde rastlanabilecek mineraller ve dielektrik sabitleri

Mineral	ϵ	Mineral	ϵ
Arsenopirit	> 81	Muskovit	10
Biotit	9.28	Olivin	6,77
Kalsit	6.36	Pirit	33,7-81
Kalkopirit	> 81	Kuvars	6,83
Bakır	> 81	Sülfür	3,62
Dolomit	8.45	Serpentin	11,48
İlmenit	33,7-81	Talk	9,41
Manyetit	33,7-81	Wollastonit	6,17

Refrakter altın cevherlerine uygulanan mikrodalgada ısıtma işleminin sülfür minerallerini efektif bir şekilde okside edip siyanürleme işlemindeki altın kazanımını arttırmasının yanı sıra otokav, fırın ya da biyooksidasyon gibi işlemlere oranla işletme masraflarını düşürdüğü ispatlanmıştır (Su vd., 2011). Ma vd., (2010) altın konsantresinden kükürt ve arsenik uzaklaştırmada, Amankwah ve Piekles (2005) karbonlu sülfür içeren altın konsantresinde siyanür liçi verimini arttırmada mikrodalga enerjisini kullanmışlardır. Choi vd., 2017 çalışmasında ise mikrodalga ön işleminin altın konsantresine uygulanmasının numunenin sıcaklığını 950°C dereceye kadar yükseltmiş, taramalı elektron mikroskopu ve enerji dağılım spektrometresi (SEM-EDS) ile mikro çatlakların gelişimi ve mineral yüzeyindeki kükürtün azaldığı, XRD ile pirit mineral fazın hematit ya da pirotite kaydığı gösterilmiştir. İşlem görmeyen konsantre de altın %80 verimle geri kazanılırken, işlem gören numunede altının tamamının geri kazanılabileceği belirlenmesi mikrodalga ön işlemin önemini gösteren önemli çalışmalardan biridir.

Bu çalışmada, sülfürlü refrakter karakterdeki altın cevherine uygulanan mikrodalga enerji Box-Behnken deney tasarımı ve optimizasyonundan yararlanarak sülfür içeriği yüksek bir konsantrenin üzerine mikrodalga enerjisinin aktarımı sonrası cevherde meydana gelen değişimlerin kızdırma kaybı değerleri üzerinden modellenerek, optimum proses parametreleri ortaya konmuştur.

1. MALZEME VE YÖNTEM

1.1. Malzeme

Çalışma kapsamında, Ege bölgesinden (Türkiye) temin edilen, piritik sülfür içerikli refrakter karakterde altın cevheri kullanılmıştır. Temsili cevher numunesinin ve deneyler sonucu elde edilen ürünlerin mineralojik ve kimyasal analizinde İTÜ/JAL Jeokimya Araştırmaları laboratuvarı; SEM görüntüleri İstanbul Teknik Üniversitesi Prof. Dr. Dinçer Topaçık Ulusal Membran Teknolojileri Uygulama ve Araştırma Merkezi (MEM-TEK), XRD analizleri ise Prof. Dr. Adnan Tekin Malzeme Bilimleri ve Üretim Teknolojileri Uygulama Araştırma Merkezi Laboratuvarında uluslararası standartlar göz önünde bulundurularak yapılmıştır.

Ocaktan alındığında tane boyutu -150 mm olan numuneler laboratuvar tipi, tek istinat kollu çeneli kırıcı ve konik kırıcı yardımıyla iki kademe kırılmış, ardından merdaneli kırıcı ile malzemenin tamamı -2 mm altına indirilmiştir. Boyut küçültme sonunda harmanlanan ve polietilen torbalarda saklanan numuneler, bilezikli değirmende 30 saniye süre öğütülerek tamamı 106 µm altına indirilmiştir. Mikrodalga enerjisinin cevher üzerindeki etkisini incelemek amacıyla iki kademeli kaba flotasyonla sülfür içeriği artırılarak flotasyon konsantresi hazırlanmıştır. Laboratuvar tipi Denver D12 flotasyon cihazında ve 1,2 L hacmindeki selüllerde, 4,34 ppm altın ve %21 kükürt içeriğine ulaşan konsantre deneylerde kullanılmak üzere ayrılmıştır. Çizelge 2'de kimyasal analiz sonuçları verilmektedir.

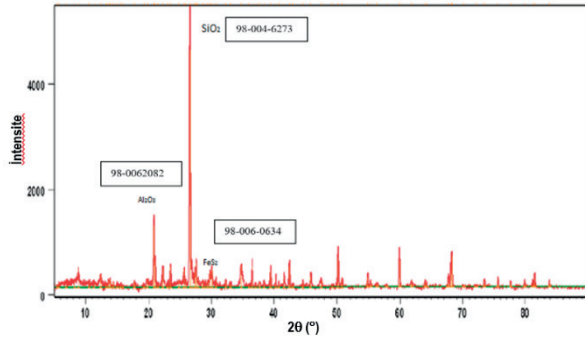
Çizelge 2. Deneylerde kullanılan Ege bölgesi refrakter altın cevherinin kimyasal analiz sonuçları (ppm)

Au	Ag	As	Ba	Cd	Co	Cr	Fe
4,3	2,6	527	160	68,8	90	262	196157
Mn	Ni	P	Pb	Sr	V	Zn	S, %
105,6	110,5	605,8	25245	179	106	11615	21

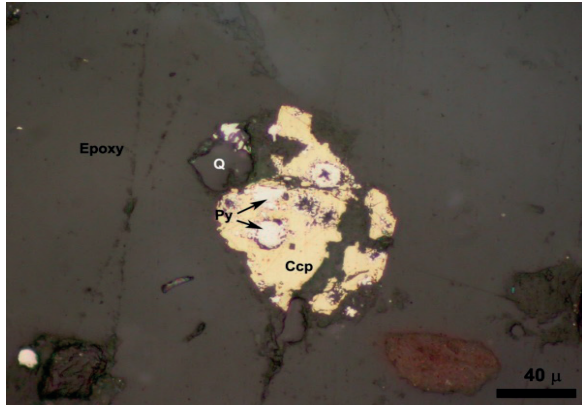
ALS Minerals (İzmir) laboratuvarlarında yapılan küpelyasyon deneyleri sonunda, numunenin 1,37 ppm altın ve 2,6 ppm gümüş içerdiği görülmektedir. Analiz sonuçlarına göre orjinal numunenin kükürt içeriği %3,47' dir. Numunenin

ısıtma mekanizmasını açıklayabilmek için, termal gravimetrik (TG) analizden yararlanılmıştır. Numunelerin TG analizi, Universal V4. 5A cihazı ile 850°C sıcaklığına kadar 10°C/dakika ısıtma hızında gerçekleştirilerek, numuneye ait oluşan bozunma tepkimeleri ve bu tepkimelerin oluştuğu sıcaklık bölgeleri ortaya koyulmuştur.

Şekil 1'de numunenin X- ray difraksiyon paterni ve Şekil 2'de ise hazırlanan parlak kesitin mikroskop görüntüsü görülmektedir.



Şekil 1. Refrakter altın numunesinin XRD difraksiyonu paterni

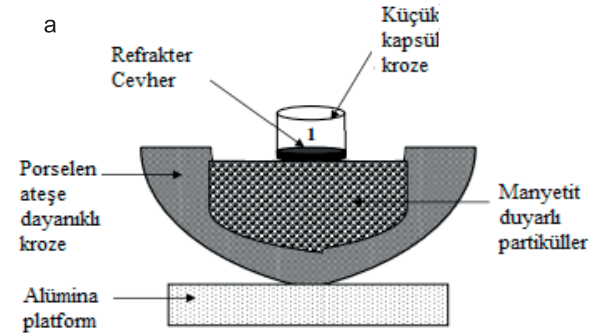


Şekil 2. Cevher bünyesindeki kuvars (Q) ve sülfürlü mineraller, pirit (Py) ve kalkopirit (Ccp)

1.2. Deneysel Yöntem

Mikrodalga enerjili kavurma deneyleri, 2, 4 ve 6 gramlık numuneler tartılarak küçük ısıya dayanıklı seramik kroze içerisine konulan numuneler, içleri 140 gram manyetit ile doldurulan daha büyük seramik krezeler içine gömülmüştür (Şekil 3). Daha sonra hazırlanan bu malzemeler

MD554 model Intellrowave (Arçelik, Türkiye) 2450 MHz çalışma frekansına sahip mutfak tipi mikrodalga fırının içine konuldu. Mikrodalga fırının gücü 360W, 680W ve 1000W olarak ayarlanarak deneyler yapıldı. Her 5 dakika da bir numunelerden ve manyetitten 400°C yüksek sıcaklığı gösterebilen termometre ile sıcaklık ölçümü alındı. Fırın içerisinde kalması gerektiği süreyi dolduran numuneler çıkartılıp soğuması için bekletildi ve her biri tartıldı. Tüm mikrodalga işlem görmüş numunelerin S içerikleri Elemental Analiz (PC kontrollü ELTRA CS580) cihazında yapıldı.



Şekil 3. Deneylerde kullanılan (a) deney düzeneği ve (b) mikrodalga fırın

1.3. Deneysel Tasarım

Bu çalışmada, yanıt yüzey yöntemine göre tasarlanmış, Çizelge 3'de gösterilen 3-faktörlü Box-Behnken deney tasarımı uygulanmıştır. Mikrodalga enerjisi uygulamaları için etkili bağımsız parametreler, güç (X_1 , Watt), süre (X_2 , dakika) ve kütle (X_3 , g), karşılık bağımlı parametre

numunenin kızdırma kaybı (Y, %) olarak belirlenmiştir. İncelenen bağımsız değişkenlerin kullanım aralığı ve seviyeleri Çizelge 3'de listelenmiştir.

Çizelge 3. Mikrodalga deneylerinde seçilen bağımsız değişkenlerin incelenen etkinlik aralığı

Faktör	Birim	Kod	Düşük	Orta	Yüksek
			-1	0	1
Miktar	g	X ₁	2	4	6
Zaman	dak	X ₂	20	40	60
Güç	W	X ₃	360	680	1000

Box-Behnken tasarımında her bir faktör üç düzeye (k) sahiptir ve deney tasarımının yapılabilmesi için öncelikle gereken deney tekrarı minimum olacak şekilde ve deneysel hataların da istatistiksel analizini yapmak üzere tekrar deneylerini oluşturan merkezi noktaları (n_c) 3 alarak, Eşitlik 1' e göre hesaplanarak, gerekli deney sayısı 15 olarak belirlenmiştir.

$$N = 2 [k (k - 1)] + n_c = 2[3(2)]+3 = 15 \quad (1)$$

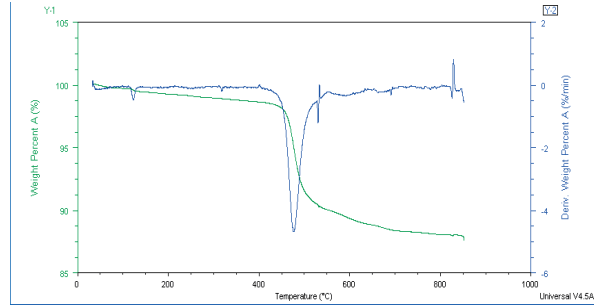
Bağımlı değişken olan kızdırma kaybı yüzdesine göre proses parametrelerinin optimizasyonunu açıklamak için yanıt değerlerine ikinci dereceden aşağıdaki polinom model olan Eşitlik 2 önerilmiştir.

$$Y = \beta_0 + \beta_1 \cdot X_1 + \beta_2 \cdot X_2 + \beta_3 \cdot X_3 + \beta_4 \cdot X_1^2 + \beta_5 \cdot X_2^2 + \beta_6 \cdot X_3^2 + \beta_7 \cdot X_1 \cdot X_2 + \beta_8 \cdot X_1 \cdot X_3 + \beta_9 \cdot X_2 \cdot X_3 + \varepsilon \quad (2)$$

Burada, Y: yanıt, X_i: kodlanmış bağımsız değişkenler, β₀: regresyon sabiti, β_i: lineer katsayılar (i=1, 2, 3), β_j: kuadratik sayı katsayıları (j=4, 5, 6), β_k: ikili etkileşim katsayıları (k=7, 8, 9) ve ε ise hata terimini göstermektedir. Ayrıca bağımlı değişkenler üzerinden iki boyutlu izohips grafikleri ve üç boyutlu yanıt yüzey grafikleri çizilerek yorumlanmıştır. Modelleme ve analiz çalışmalarında Minitab 16.0 programı kullanılmıştır.

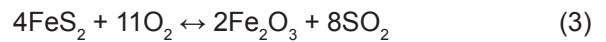
2. DENEY SONUÇLARI VE DEĞERLENDİRME

Mikrodalga ısıtma uygulandığında, numunede meydana gelen yapısal değişimleri, ısı uygulaması sırasında uzaklaşan bünye suyunun miktarı, yapısal bozunma sıcaklığı gibi mekanizmaların tesbiti için TG analizi gerçekleştirilmiştir. Şekil 4 deneylerde kullanılan flotasyon konsantresine ait termal analiz eğrisini göstermektedir.



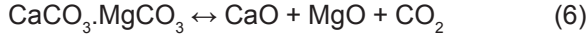
Şekil 4. Sülfürlü altın flotasyon konsantresinin TGA eğrisi

Şekil 4'e göre, 100°C öncesinde az miktarda suyun yapıdan uzaklaşmakta, asıl ağırlık kaybı 450-700°C aralığında meydana gelmektedir. Bu sıcaklık aralığında %10,2'lik ağırlık kaybı, toplam ağırlık kaybının %87,8'ine karşılık gelmektedir. Cevherin yüksek kükürt içeriğine bağlı olarak hematit ve kükürt dioksit oksidasyonuna bağlı olabilecek kütle kaybı (Eşitlik 3) reaksiyon uyarınca gerçekleşecektir.

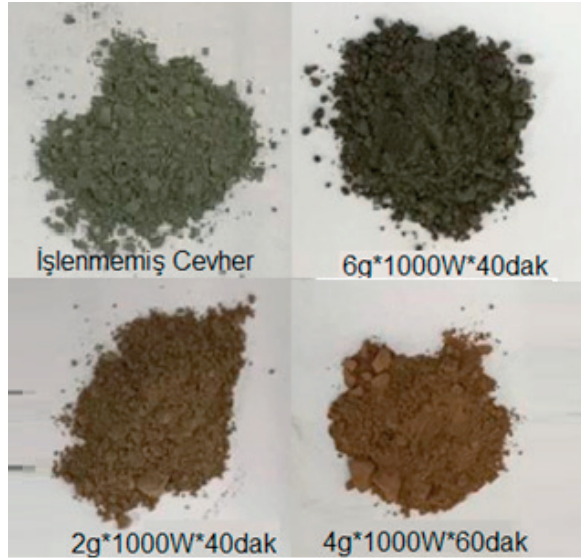


Ayrıca, 530-630°C sıcaklıkları arasındaki pik cevherin organik karbon içeriğine ve %1,5 ağırlık kaybı karbonun bu sıcaklık aralığındaki oksitlenmesi, 690-775°C aralığında dolomit bozunması %0,3 ağırlık kaybına 775-830°C aralığında kalsitin bozunması %0,5 ağırlık kaybına Eşitlik 4- 6 reaksiyonları uyarınca neden olur.





Box-Behnken deney tasarımına göre mikrodalga uygulamalı deneyler yapılmış, ısıtma sonrası numunelerin piridik demir oksidasyonu sonrası, renk değiştirerek Şekil 5'deki kırmızı renk aldığı görülmektedir. Söz konusu tasarıma göre 3 adedi orta noktada olmak üzere her bir mikrodalga ısıtmalı kavurma deneyi için toplam 15 adet deney yapılmıştır. Deney tasarımı ve deneyler sonunda elde edilen konsantrasyon ağırlığı ve kızdırma kaybı oranları Çizelge 4'de verilmektedir. Deneylerde en düşük ve en yüksek kızdırma kayıpları sırasıyla %1,7 ile %15,1 olarak bulunmuştur.



Şekil 5. Altın numunesinin 1000 W'lık mikrodalga enerjisi aktarımı sırasında gözlenen renk değişimi

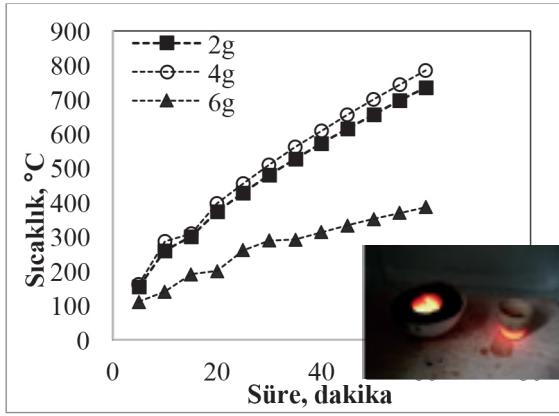
Manyetit ve cevher içindeki noktasal dielektrik sabiti yüksek yan minerallerin mikrodalga soğurumu neticesinde oluşan "hot spot" sıcak noktalardan cevhere ısı transferi meydana gelmektedir. Böylece mikrodalga ısıtma çoklu bölgelerden çok daha hızlı ısınabilme avantajına sahiptir. Klasik konvansiyonel ısıtmadaki gibi ısı transferi mekanizmaları olan taşınım (konveksiyon), iletim (kondüksiyon) ve radyasyon (yayıma) neticesinde ısı aktarımı söz konusu sıcak noktalardan nispeten soğuk cevhere

doğru yayılacaktır. Şekil 6'da 1000W mikrodalga gücü altında cevherin sıcaklığındaki değişim ile ölçüm sonunda fırından çıkarılan manyetit ve kroze görülmektedir. 2g ve 4 g numunelerin 1 saat sonundaki sıcaklığı 800°C'ye ulaşırken, 6g örnek ise 400°C ile ölçülen sıcaklığı cevherin ısınmasında ısı transfer mekanizmalarından kondüksiyon (iletim)'in etkisini göstermektedir.

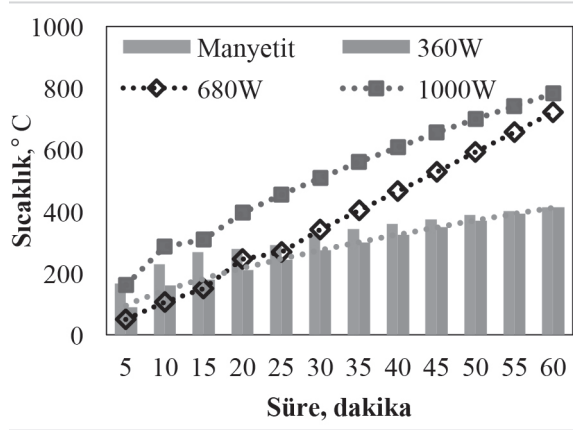
Çizelge 4. Minitab programı ile 3-faktörlü Box-Behnken deney tasarımı ve cevap değerleri

Deney No	Bağımsız değişkenler						Bağımlı değişkenler	
	Kodlanmış değerler			Gerçek değerler			Konsantrasyon ağırlığı (g)	Kızdırma Kaybı (%)
	Miktar (X ₁)	Süre (X ₂)	MW Güç (X ₃)	Miktar (X ₁)	Süre (X ₂)	MW Güç (X ₃)		
g	dak	W	G	dak	W	g	%	
1	0	0	0	4	40	680	3.769	13.6
2	0	-1	-1	4	60	360	3.398	10.9
3	-1	0	1	2	40	1000	1.747	12.7
4	-1	-1	0	2	20	680	1.724	1.8
5	0	-1	1	4	20	1000	3.455	5.8
6	1	0	-1	6	40	360	5.883	2.0
7	0	-1	-1	4	20	360	3.916	2.1
8	0	0	0	4	40	680	3.476	13.6
9	1	-1	0	6	20	680	5.846	1.7
10	1	1	0	6	60	680	5.900	10.1
11	0	1	1	4	60	1000	3.565	15.1
12	1	0	1	6	40	1000	5.392	2.6
13	0	0	0	4	40	680	3.376	13.1
14	-1	0	-1	2	40	360	1.964	9.4
15	-1	1	0	2	60	680	1.813	13.8

Şekil 7'den görüldüğü gibi 360W mikrodalga gücünde ısınmaya tabi tutulan manyetit'ten ve 2g numune içeren krozenin içinden alınan sıcaklık ölçümleri sonrasında, manyetit'ten cevher'e olan ısı transferi, öncelikle manyetit'in radyasyonla ısınma sonrasında, oluşan ısının kroze kabından geçerek cevhere ulaşması kondüksiyonla olmaktadır. İlk 15 dakikada 250°C'ye ulaşan manyetitten 150°C'ye ısınan cevherle, yaklaşık 60 dakika ısınma sonrasında termal dengeye geldiği görülmektedir.



Şekil 6. Miktarla ilgili cevherin sıcaklık değişimi



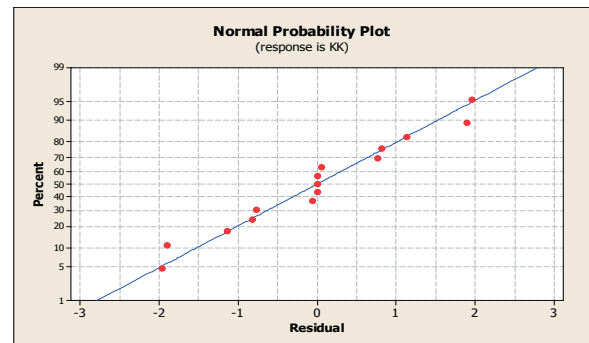
Şekil 7. Mikrodalga enerjisinin soğurumu sırasında 2g cevherindeki sıcaklık değişimi

Optimizasyon çalışmalarında sistemi karakterize eden tüm yanıtlar birlikte ele alınarak, deneysel çalışma sonucunda mikrodalga enerji aktarımı öncesi ve kavurma sonrası flotasyon konsantrasyonunun kütle miktarı (g) kaybı üzerinden değişkenlere bağlı olarak hesaplanan kızdırma kaybı (%) değerine karşılık incelenmiştir. Cevher miktarı (X_1), mikrodalga uygulama süresi (X_2) ve uygulanan mikrodalga gücü (X_3) prosese en fazla etki eden parametreler olduğu belirlenmiş ve bu parametreler bağımsız değişkenler olarak, sürecin çıktısı olan % kızdırma kaybı değeri yanıt fonksiyonu olarak seçilmiştir. Deneysel çalışmalarda seçilen bağımsız değişkenlerin belirtilen parametre aralıklarındaki yanıt olan kızdırma kaybı yüzdesi için % 90 güvenilirlik seviyesinde ($R^2 = \% 94,67$) Eşitlik 7'de belirtildiği

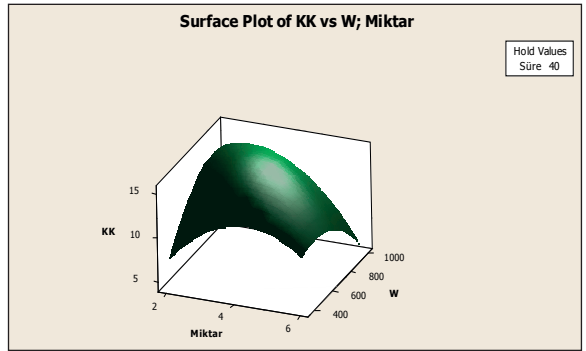
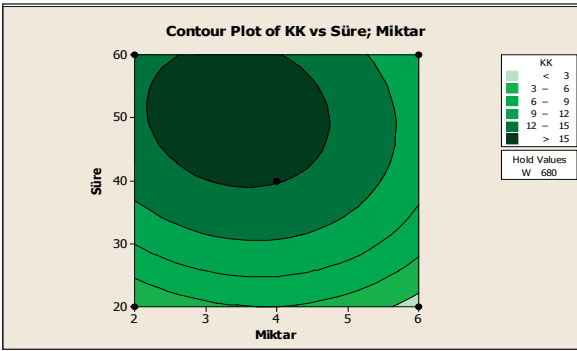
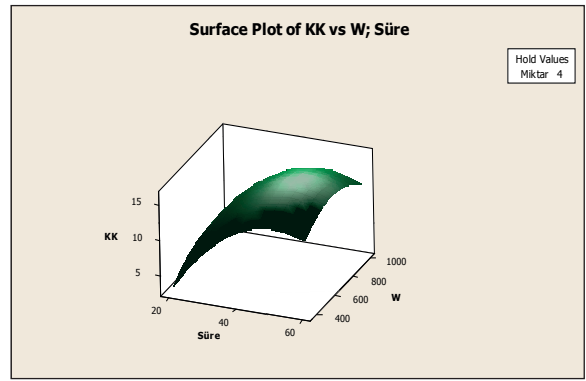
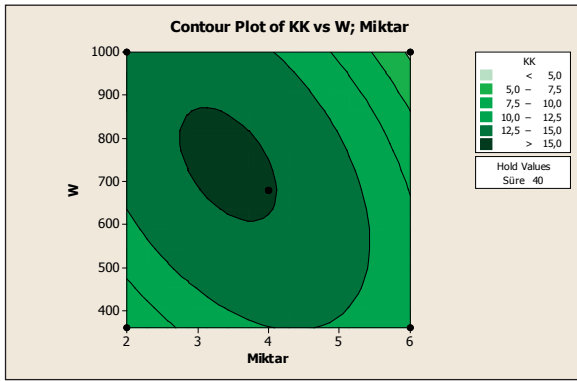
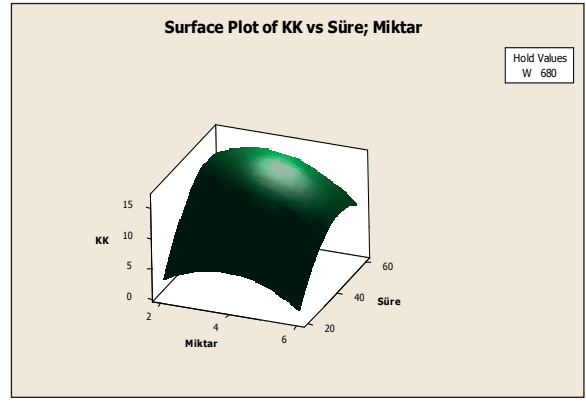
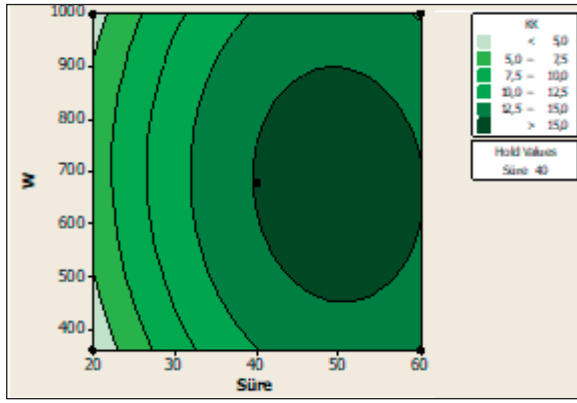
gibi 2. dereceden polinomial regresyon modelle ifade edilebilir:

$$Y = -53.14 + 10.53 X_1 + 1.28 X_2 + 0.054 X_3 - 0.92 X_1^2 - 0.011 X_2^2 - 2.478 \cdot 10^{-5} X_3^2 - 0.022 X_1 \cdot X_2 - 0.004 X_1 \cdot X_3 - 5.8610^{-5} X_2 \cdot X_3 \quad (7)$$

Böylece sistemi optimize eden ikinci dereceden kurulan modelin hataları Şekil 8'de verildiği gibi sabit varyansla normal dağılmış, sonuçların birbiriyle uyumlu olduğu görülmektedir. Bağımlı değişken kızdırma kaybı yüzdesi için Varyans analizi (ANOVA) incelendiğinde parametrelerin p değerleri miktar, süre ve mikrodalga gücü için sırasıyla 0,080, 0,001 ve 0,880 olduğu hesaplanmış, ardından 0,05'ten küçük olan terimlerin yani modelin önemli terimlerinin, süre olduğu, numune miktarının ise sistemin üzerinde etkinliği uygulanan mikrodalga gücünden fazla olduğu hesaplanmıştır. Giriş parametrelerinin karşılıklı etkilerinin gösterildiği iki boyutlu izohips eğrileri Şekil 9'da gösterilmektedir. Sonuçların daha iyi anlaşılabilmesi için 3-boyutlu yanıt yüzey grafikleri (Şekil 10) oluşturulmuştur. Kızdırma kaybı (%) değeri üzerine miktara kıyasla sürenin daha etkin olduğu görülmektedir. Benzer olarak, Su vd., (2011) 800 W'da refrakter altın cevherine uygulanan zamana bağlı olarak mikrodalga enerjisi aktarımının etkinliğini incelediği çalışmalar deneysel bulgularımızı destekleyerek, 80 dakika süreli mikrodalga enerjisi uygulamanın faydalarını ortaya koyarken özellikle refrakter altın cevherinin liç işlemini hızlandırmıştır.



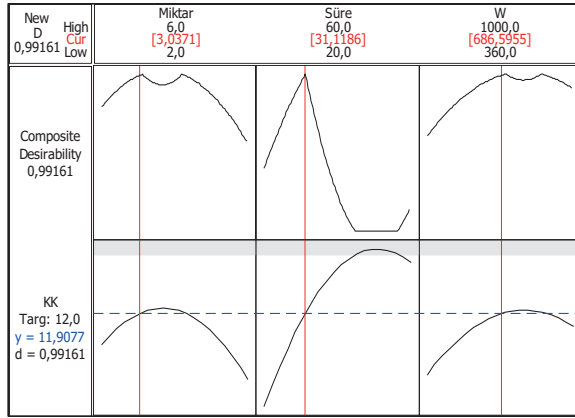
Şekil 8. Hataların normal dağılım eğrisi



Şekil 9. İkili etkileşimlere ait iki boyutlu değişim

Şekil 10. Uygulanan süre, mikrodalga gücü ve miktara karşılık kızdırma kaybı %'si değerine ait 3-boyutlu yüzey grafikleri

Çalışmanın devamında yapılan optimizasyon sonuçları Şekil 11'de gösterilmektedir. Bu deney sistemi için önerilen deney koşulları altında optimize edilen değerlerin, 3 g numune miktarı alınarak, yaklaşık 30 dakika süre içinde 10 dakika aralıklarla uygulanan 680W gücündeki mikrodalga enerjisinin aktarımının yeterli olduğu sonucuna varılmıştır.



Şekil 11. Modelin optimize ettiği yanıt ve faktörlerin kırmızı ile gösterilen optimizasyon değerleri

Böylece, optimize edilen değerlerden hareketle Eşitlik 8 ile kabaca enerji tüketimi hesaplanırsa;

$$\text{Enerji Tüketimi} = (0,68\text{kW} \times 0,5\text{h}) / (0,003\text{kg} \text{ 1t} / 1000\text{kg})$$

$$= 0,113 \text{ kWh/t} \quad (8)$$

değeri elde edilebilir. Salsman vd., (1996) sülfürlü cevherlerin öğütmesi sırasında uygulanan mikrodalga işlemin maliyeti 0,8 kWh/t hesaplanmış, geleneksel öğütme sistemlerinde ise tipik bir profiri cevher de 10- 12 kWh/t gerekli olduğu belirtilmiştir. Benzer enerji maliyetleri kabaca yapılmış değerlendirmeler olup mikrodalga'nın hem üretimi ve hem de emilmesi sırasındaki kayıplar gözönüne alınmadan, mikrodalga ön işlemin makul maliyetli olarak gerçekleştirilebileceğini göstermektedir. Ayrıca, mikrodalga enerjisi yalnızca hedef minerale

etkileşime girdiğinden ısıtmanın seçici, verimli olmasını ve homojen dağılımı ürünün uniform işlenmesini sağlar. Öte yandan, sürekli sistemlerle farklı kapasitelerdeki istenen sayıda mikrodalga modülleri bir araya getiren, sıcak hava ile birlikte çalışabilen hibrit mikrodalga modülleri sayesinde gün geçtikçe tercih edilmektedir. Sürekli ve çoklu hibrit modülleri kullanan endüstriyel fırınlar, gıda işleme ve kurutma uygulamaları makul maliyetlerin önemli bir göstergesidir.

SONUÇLAR

Mikrodalga ısıtmalı kavurma işleminin refrakter altın cevheri flotasyon konsantrasyonu üzerinde etkili olduğu, ısıtma sırasında kullanılan manyetit yatağının ısıtma etkinliği üzerine önemli etkilerinin olduğu, 2450 MHz dalga boyunda mikrodalga fırınında yapılan deneylerle gösterilmiştir. Optimizasyon deneylerinde, Ege bölgesi (Türkiye) temin edilen (%3,47 sülfür değerine sahip piritik sülfür içerikli refrakter karekterde altın cevheri), önceki çalışmalarda laboratuvar koşullarında Denver flotasyon hücresinde sülfür içeriği artırılan (%21 S ve 4,34 ppm Au) numune kullanılmıştır.

Mikrodalga enerjili kavurma işlemi yanıt yüzey yöntemine göre tasarlanmış, 3-faktörlü Box-Behnken deney tasarımı, prosesin etkili parametreleri olarak düşünülen miktar (g), süre (dakika) ve aktarılan mikrodalga güç (Watt) değişkenleri ve ikili etkileşimleri analiz edilmiş, aktarılan mikrodalga gücünden bağımsız olarak sistemin etkili faktörlerinin süre ve miktarın olduğu özellikle miktarın etkinliği bulunmuştur. Optimum değerler % kızdırma kaybı için yaklaşık 3 g numune alınarak 30 dakika süresince uygulanan 680W'lık enerji aktarımının yeterli olduğu hesaplanmıştır. Bu koşullarda nihai numunede yapılan kükürt analizi ile konsantrasyonun %21 sülfür içeriği mikrodalga uygulaması sonunda, % 0,7 S ve 5 ppm Au içeriğine deneysel olarak ulaşılması, mikrodalga uygulamaların kükürt giderimi yönünde refrakter cevherlerde de olumlu bir ön işlem olduğunu göstermektedir.

TEŞEKKÜR

Bu çalışma, İstanbul Teknik Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri (BAP) Birimi Koordinatörlüğü tarafından Proje No: 2014/MF015 ile desteklenmekte olup, yazarlar İTÜ- BAP birimine teşekkür ederler.

KAYNAKLAR

Amamkwah, R. K., Piekles, C. A., 2005. Microwave Calcination and Sintering of Manganese Carbonate. *Ore. Can. Metall. Q.*, 44, 239-248.

Benli, B., Adem, A., 2019. Box–Behnken Experimental Design for Microwave Energy Roasting of Refractory Gold Flotation Concentrate. XIII International Mineral Processing and Recycling Conference (XIII IMPRC), 08-10 May, Belgrade, Serbia, 294-298.

Benli, B., İpekoğlu, N., 1995a. The Comparison of Microwave Heating and Conventional Heating Technology in the Extraction of Pectin from Apple Pulp. 35th IUPAC Congress, Istanbul, 60-64.

Benli, B., İpekoğlu A. N., 1995b. The Comparison of Surface Appearance in Microwave Heating and Conventional Heating Technology in the Extraction of Pectin. *Turkish Journal of Medical Sciences*, 127.

Can N. M., Bayraktar I., 2007. Effect of Microwave Treatment on the Flotation and Magnetic Separation Properties of Pyrite, Chalcopyrite, Galena and Sphalerite. *Miner. and Metall. Process.*, 23 (3), 185-192.

Cemaliye, S., Bayat, O., 2018. Microwave-Assisted Grinding of Bolkardag (Niğde, Turkey) Gold Ore and Enhanced Cyanide Leachability. *Metallurgical Research and Technology*, 115 (5), 508-519.

Choi, N., Kim, B., Cho, K., Lee, S., Park, C., 2017. Microwave Pretreatment for Thiourea Leaching for Gold Concentrate. *Metals*, 404 (7), 1-8.

Demir, İ., Güngören, C., Özkan, Ş. G., 2017. Effect of Microwave Energy on the Comminution and Flotation of Colemanite Ore. *Bor Dergisi*, 2 (2), 75 – 81.

Guo S., Chen G., Peng J., Chen J., Li D., Liu L., 2011. Microwave Assisted Grinding of Ilmenite Ore.

Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 21 (9), 2122-2126.

Hassani, F., Nekoovaght, P., 2011. The Development of Microwave Assisted Machineries to Break Hard Rocks. *Proceedings of the 28th ISARC*, Seoul, Korea, 678-684.

Kocakusak, S., Koeroglu, Ş. H., Ekinci, E., Tolun, T., 1995. Production of Anhydrous Borax Using Microwave Heating. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 34 (3), 881-885.

Lu, G. M., Feng, X. T., Li, Y. H., Zhang, X., 2019. The Microwave-induced Fracturing of Hard Rock. *Rock Mechanics and Rock Engineering*. <https://doi.org/10.1007/s00603-019-01790-z>.

Ma, S. J., Luo, W. J., Mo, W., Yang, J. L., 2010. Removal of Arsenic and Sulfur from a Refractory Gold Concentrate by Microwave Heating. *Minerals Engineering*, 23 (1), 61-63.

Moore, P., 2018. Team behind Rio Tinto-funded MicroHammer Microwave Copper Extraction Technology get top Award. Web of 18th September 2018, <https://im-mining.com/2018/09/18/team-behind-rio-tinto-funded-microhammer-microwave-copper-extraction-technology-get-top-engineering-award/>

Salsman, J. B., Williamson, R. L., Tolley, W. K., Rice, D. A., 1996. Short-pulse Microwave Treatment of Disseminated Sulfide Ores. *Minerals Engineering*, 9 (1), 43-54.

Samouhos, M., Taxiarchou, M., Kouvelos, E., 2016. Novel Applications of Microwaves in the Metallurgical Processing of a Nickel-Ferrous Laterite Ore and an Aluminum Industry Waste. *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, 123, 012049, 1-6.

Su, X., Mo, W., Ma, S., Yang, J., Lin, M., 2011. Experimental Study on Microwave Pretreatment with Some Refractory Flotation Gold Concentrate. *Advanced Materials Research, Powder Technology and Application III*, 158, 71-75.

Uslu, T., Atalay, Ü., 2003. Microwave Heating Characteristics and Microwave Assisted Magnetic Enhancement of Pyrite. *International Mining Congress and Exhibition of Turkey-IMCET 2003*, ISBN 975-395-605-3.