

## مدل سازی و بهینه سازی بازیابی نقره از آمالگام دندانى به کمک اسید نیتريك

راضیه خوشحال<sup>1\*</sup>، سید وحید علوی نژاد خلیل آباد<sup>2</sup>

<sup>1</sup> دانشکده مهندسی مواد، دانشگاه صنعتی بیرجند، بیرجند، ایران

<sup>2</sup> دانشکده مهندسی عمران، دانشگاه صنعتی بیرجند، بیرجند، ایران

Email: rkhoshhal@birjandut.ac.ir

### چکیده

آمالگام دندانى آلیاژى حاوی نقره است که سالانه به مقدار زیادى در دندانپزشکی استفاده می شود. در صورت استحصال محتوای نقره این مواد زائد، مصرف منابع اولیه برای تولید نقره و همچنین مشکلات محیط زیستی به حداقل می رسد. این مقاله به مدل سازی و بهینه سازی انحلال نقره در اسید نیتريك از پسماندهای آمالگام دندانى می پردازد. برای دستیابی به این هدف، به کمک روش باکس-بنکن، آزمایشات طراحی شد. سپس با انجام آزمایشات و تعیین میزان بازیابی نقره، نحوه تأثیر دما، چگالی پالپ و غلظت اسید نیتريك بر انحلال نقره بررسی شد. مشخص شد که تأثیر عوامل بر پاسخ (میزان نقره محلول) از منحنی کوادراتیک پیروی می کند. در ادامه، شرایط بهینه برای رسیدن به حداکثر انحلال نقره در اسید نیتريك نیز تعیین شد.

واژگان کلیدی: نقره، آمالگام، بازیابی، مدل سازی، بهینه سازی.

**مقدمه**

افزایش تقاضای جهانی برای نقره به عنوان ماده اولیه تجهیزات الکترونیکی و الکتریکی منجر به تمایل به بازیابی نقره از منابع مختلف شده است [1]. تا جایی که تقاضای جهانی نقره در سال 2018 به 1033/5 میلیون اونس رسیده است [2]. به دلیل کاهش کیفیت منابع اولیه نیز علاقه به استفاده از منابع بازیافتی افزایش یافته است [3]. ضایعات نقره یکی از مهمترین منابع ثانویه برای استخراج نقره است [4، 5]. برای مثال، شوسلر و همکاران [6] بازیافت نقره را از اکسیژن مصرف شده غیر قطبی شده بررسی کرده‌اند. صدرنژاد و همکاران [7] ضایعات فلزات گرانبها (-Ag-Au0:04 و Cu0:10 و Ag-Cu0:23) را مورد مطالعه قرار داده‌اند. بیشتر محققان از اسید نیتریک و برخی محلول‌های اضافه شده به اسید نیتریک برای انحلال بهتر نقره استفاده کرده‌اند [8، 9].

نیتریک از آمالگام دندان‌پرداخت. برای دستیابی به این هدف، سه عامل دما، غلظت اسید و چگالی پالپ به عنوان عوامل موثر انتخاب شدند. برای چیدمان آزمایش‌ها از طرح Box-Behnken استفاده شد.

**مواد و روشها**

ماده اولیه مورد استفاده در این مطالعه، ضایعات آمالگام دندانپزشکی بود. این آلیاژ حاوی نقره، قلع و مس است. جدول 1 آنالیز شیمیایی این ماده را با استفاده از ICP-VARIAN VISTA-PRO نشان می‌دهد.

جدول 1: آنالیز عنصری آمالگام با استفاده از ICP.

Element	Silver	Tin	Copper
Wt (%)	42/13	31/49	27/3

**مدل‌سازی و بهینه‌سازی**

طراحی (BBD) Box-Behnken یک روش بسیار مفید برای کاهش تعداد کل آزمایش‌ها بدون از دست دادن کلیت است. سه عامل دما، چگالی پالپ و غلظت اسید برای مدل‌سازی و بهینه‌سازی توسط نرم‌افزار «Design Expert 11» انتخاب شدند. آزمایش‌ها مطابق جدول 2 طراحی شده و پاسخ‌های به دست آمده برای انحلال نقره به آخرین ستون این جدول اضافه شد. جدول 3 حدود بالا و پایین فاکتورهای مورد استفاده در تحقیق حاضر را نشان می‌دهد. جدول 2. طراحی آزمایش‌ها و پاسخ‌های به دست آمده.

Ru n	A:Temperatur e C	B:Pulp Densit y g/L	C:Acid Concentratio n %	Silver Recovery
1	25	200	55	0/81
2	25	300	34/357	0/77
3	60	100	34/357	0/85
4	42/5	200	34/357	0/92
5	42/5	200	34/357	0/91
6	42/5	300	55	0/92
7	42/5	200	34/357	0/92

آمالگام آلیاژی است که حاوی نقره، قلع، مس و سایر عناصر فلزی است. آمالگام را می‌توان به دلیل داشتن جیوه در گروه زباله‌های خطرناک (HW)<sup>1</sup> طبقه بندی کرد. وجود فازهای مختلف مانند Ag<sub>3</sub>Sn، Ag<sub>2</sub>Hg<sub>3</sub>، Sn<sub>7-8</sub>Hg، Cu<sub>3</sub>Sn و Cu<sub>6</sub>Sn<sub>5</sub> بر عملکرد آمالگام نهایی تأثیر می‌گذارد و خواصی مانند مقاومت در برابر خوردگی و خزش یا کارایی را تحت تأثیر قرار می‌دهد [10]. بازیابی نقره از آمالگام توجه بسیار کمی را از سوی جامعه علمی به خود جلب کرده است [11-14]. تا کنون، توجه بسیار کمی به بهینه‌سازی انحلال نقره از آمالگام شده است. با این حال، انحلال نقره از منابع دیگر [15، 16، 7] و شرایط بهینه برای بازیابی نقره از منابع دیگر نیز بررسی شده است [14، 21-17].

بر اساس مطالعات انجام شده، تا کنون تحقیقی بر روی بهینه سازی انحلال نقره از پسماند دندان‌آمالگام انجام نشده بود که در آن نحوه تاثیر فاکتورهای موثری چون دما، غلظت اسید و چگالی پالپ مورد بررسی قرار گرفته باشد. لذا این تحقیق به بررسی مدل‌سازی و بهینه‌سازی انحلال نقره در اسید

<sup>1</sup> Hazardous Waste

P-value کمتر از 0/05 ثابت می‌کند که فاکتورهای مدل قابل توجه هستند. در این مورد A, B, C, AB, AC, A<sup>2</sup>, B<sup>2</sup>, C<sup>2</sup>, مقادیر موثری هستند.

جدول 5. نتایج ANOVA برای مدل کوادراتیک.

Source	Mean Square	F-value	p-value	
Model	0/0499	1057/69	< 0/0001	significant
A-Temperature	0/0144	306/52	< 0/0001	
B-Pulp Density	0/0005	9/55	0/0176	
C-Acid Concentration	0/2888	6126/06	< 0/0001	
AB	0/0012	25/98	0/0014	
AC	0/0072	153/26	< 0/0001	
BC	0/0002	4/77	0/0652	
A <sup>2</sup>	0/0166	351/68	< 0/0001	
B <sup>2</sup>	0/0166	351/68	< 0/0001	
C <sup>2</sup>	0/0919	1949/73	< 0/0001	
Residual	0/0000			
Lack of Fit	0/0001	4/17	0/1008	not significant
Pure Error	0/0000			
Cor Total				

R<sup>2</sup> Predicted R<sup>2</sup> برابر 0/99080 با Adjusted R<sup>2</sup> 0/9983R<sup>2</sup> مطابقت منطقی دارد. اختلاف کمتر از 0/2 است. "Adeq Precision" نسبت سیگنال به نویز را اندازه گیری می‌کند. نسبت بزرگتر از 4 مطلوب است. نسبت 88/302 نشان دهنده سیگنال کافی است (جدول 6).

برای بررسی تأثیر عوامل فوق بر سطح پاسخ، نمودارهای سه بعدی پاسخ مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت (شکل 1). همانطور که در این شکل مشخص است در مقادیر کم اسید نمی‌توان به حداکثر انحلال نقره رسید اما در غلظت‌های بالاتر می‌توان از محدوده‌ای از هر عامل برای رسیدن به انحلال مناسب نقره استفاده کرد.

جدول 6. داده‌های R<sup>2</sup>.

Std. Dev.	0/0069	R <sup>2</sup>	0/9993
Mean	0/7894	Adjusted R <sup>2</sup>	0/9983
C.V. %	0/8698	Predicted R <sup>2</sup>	0/9908
		Adeq Precision	88/3018

8	25	200	13/75	0/52
9	42/5	100	55	0/88
10	60	300	34/357	0/82
11	60	200	13/75	0/52
12	60	200	55	0/98
13	42/5	200	34/357	0/92
14	42/5	200	34/357	0/92
15	25	100	34/357	0/73
16	42/5	100	13/75	0/51
17	42/5	300	13/75	0/52

جدول 3: حد بالایی و پایینی عوامل.

	Lower	Higher	-1	0	+1
Temperature °C	25	60	25	42/5	60
Acid Concentration %	13/75	55	13/75	34/37	55
Pulp Density	100	300	100	200	300

نتایج و بحث

نتایج مدل‌سازی و بهینه‌سازی

مدل‌های مختلفی بر روی داده‌های نتایج به دست آمده برازش شدند که از میان آنها بهترین برازش در «کوادراتیک» همانطور که در جدول 4 نشان داده شده است، مشاهده شد.

جدول 4. برازش خلاصه مدل‌ها.

Source	Sequential p-value	Lack of Fit p-value	Adjusted R <sup>2</sup>	Predicted R <sup>2</sup>	
Linear	0/0017	< 0/0001	0/6015	0/5000	
2FI	0/8862	< 0/0001	0/5129	0/1746	
Quadratic	< 0/0001	0/1008	0/9983	0/9908	Suggested
Cubic	0/1008		0/9993		Aliased

تجزیه و تحلیل ANOVA برای "مدل کوادراتیک" در جدول 5 نشان داده شده است. همانطور که در این جدول نشان داده شده است، F-value مقدار 1057/69 را نشان می‌دهد که بانگر این است که مدل رضایت بخش است. مقادیر

Design-Expert® Software  
Factor Coding: Actual

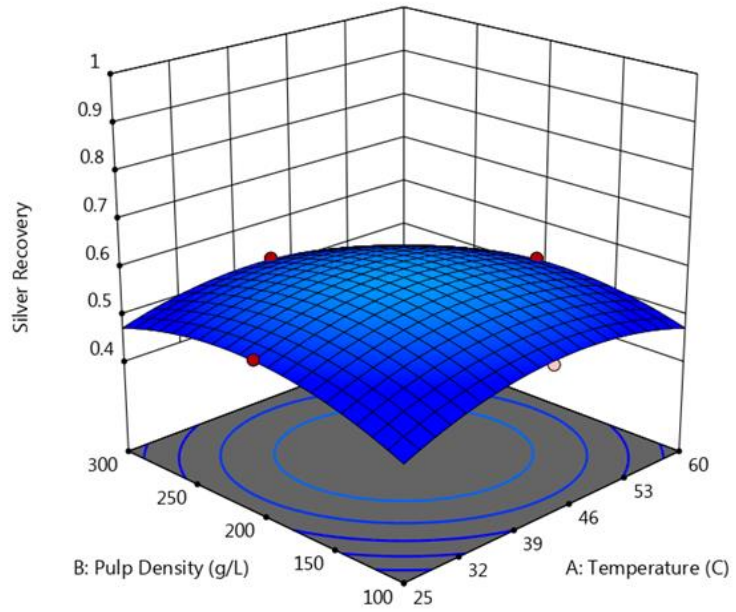
**Silver Recovery**

- Design points above predicted value
  - Design points below predicted value
- 0.51  0.98

X1 = A: Temperature  
X2 = B: Pulp Density

**Actual Factor**

C: Acid Concentration = 13.75



Design-Expert® Software  
Factor Coding: Actual

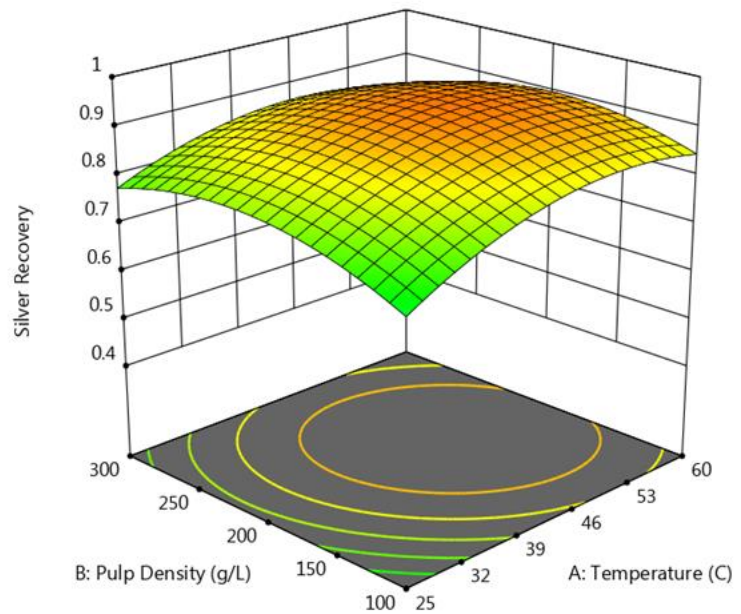
**Silver Recovery**

0.51  0.98

X1 = A: Temperature  
X2 = B: Pulp Density

**Actual Factor**

C: Acid Concentration = 34.37



Design-Expert® Software  
Factor Coding: Actual

**Silver Recovery**

● Design points above predicted value

○ Design points below predicted value

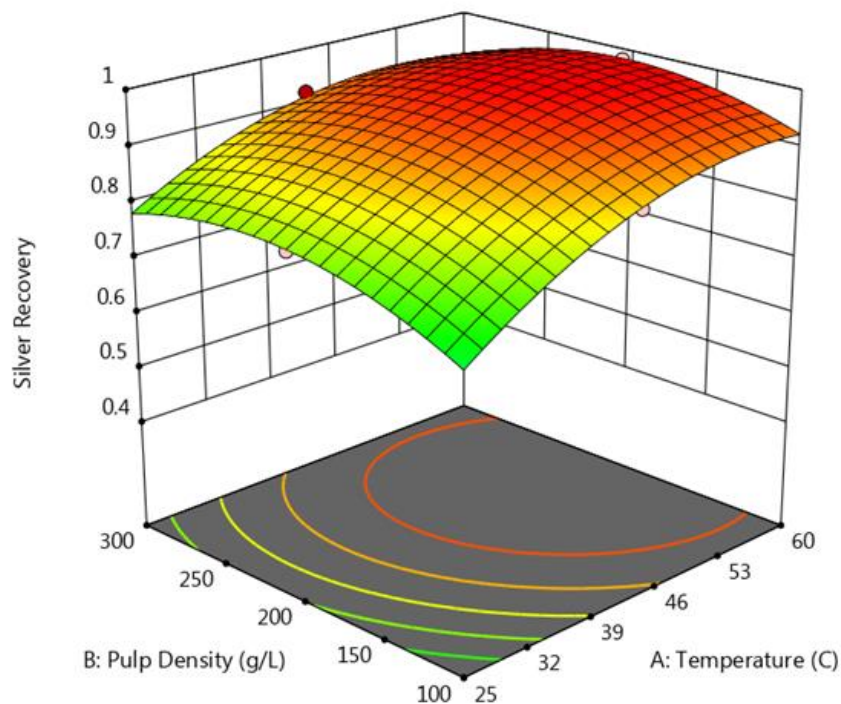
0.51  0.98

X1 = A: Temperature

X2 = B: Pulp Density

**Actual Factor**

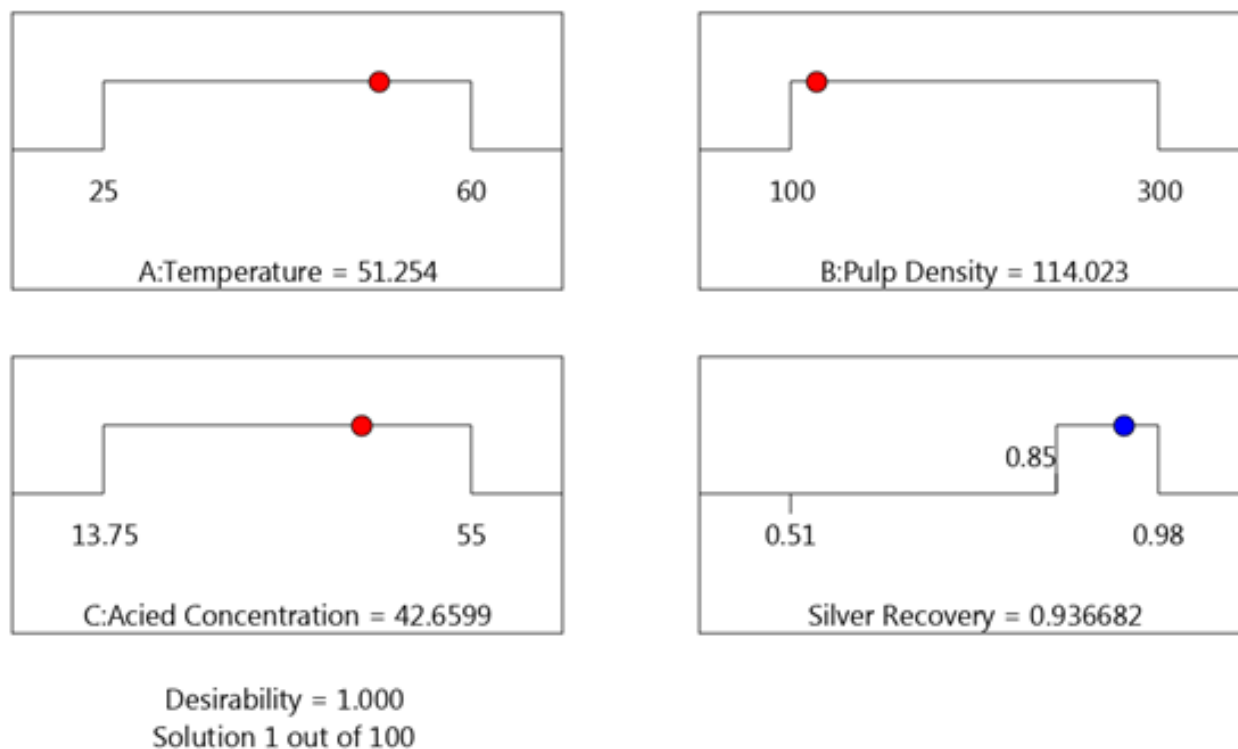
C: Acid Concentration = 55



شکل 1. نمودارهای سه بعدی سطح پاسخ.

دمای 51/25 درجه سانتیگراد، چگالی پالپ 114/023 و غلظت اسید 42/65 می توان انحلال نقره را تا 0/93 % بدست آورد.

برای به دست آوردن شرایط بهینه، بازیابی بیش از 85 درصد در نظر گرفته شد و نتایجی که در شکل 2 نشان داده شده است، محاسبه شد. همانطور که نشان داده شده است، با اعمال



شکل 2: شرایط بهینه برای رسیدن به حداکثر انحلال نقره (بیش از 85 درصد).

### نتیجه گیری

در پژوهش حاضر برای طراحی آزمایش از روش طراحی باکس-بنکن استفاده شد. اثر دما، چگالی پالپ و غلظت اسید نیتریک بر انحلال نقره در اسید نیتریک مورد بررسی قرار گرفت. مشخص شد که تأثیر عوامل مذکور بر پاسخ محتوای نقره محلول از منحنی کوادراتیک تبعیت می‌کند. در ادامه شرایط بهینه برای رسیدن به حداکثر نقره محلول در اسید نیتریک (42/65٪  $\text{HNO}_3$ ، چگالی پالپ 114 گرم در لیتر، و دمای 51/25 درجه سانتیگراد) تعیین شد.

- Garside M. August 2019.
- Sverdrup H, Koca D, Ragnarsdottir KV. Investigating the sustainability of the global silver supply, reserves, stocks in society and market price using different approaches. Resources, Conservation and Recycling. 2014;83:121-40.

### منابع

- Vats MC, Singh SK. Assessment of gold and silver in assorted mobile phone printed circuit boards (PCBs): Original article. Waste Management. 2015;45:280-8.

- 7.22-14.44 M. Industrial & Engineering Chemistry. 1998;37:4641-5.
18. Adie G, Shoneye H, Iniaghe P. Optimizing Silver Extraction Potential from Waste X-Ray Films Using Acid and Alkaline Leaching Agents. *Annals of Science and Technology*. 2022.
19. Adesina O, Akeem A, Okewale A. Optimization of Recovery Process of Silver from Obsolete Printed Circuit Boards (PCBs). 2017;19.
20. Hosseini SG, Pourmortazavi SM, Fathollahi M. Orthogonal Array Design for the Optimization of Silver Recovery from Waste Photographic Paper. *Separation Science and Technology*. 2005;39(8):1953-66.
21. Abubeker Y. Silver Recovery and Optimization from Waste X-Ray Photographic Film Using Sodium Hydroxide Stripping: Addis Ababa University; 2018.
4. Syed S. Silver recovery aqueous techniques from diverse sources: Hydrometallurgy in recycling. *Waste management (New York, NY)*. 2016;50.
5. Hiskey JB, Sanchez VM. Mechanistic and kinetic aspects of silver dissolution in cyanide solutions. *Journal of Applied Electrochemistry*. 1990;20(3):479-87.
6. Schosseler J, Trentmann A, Friedrich B, Hahn K, Wotruba H. Kinetic Investigation of Silver Recycling by Leaching from Mechanical Pre-Treated Oxygen-Depolarized Cathodes Containing PTFE and Nickel. *Metals*. 2019;9(2):187.
7. S.K.Sadrnezhaad, E.Ahmadi, M.Mozammel. Kinetics of Silver Dissolution in Nitric Acid from Ag-Au0:04-Cu0:10 and Ag-Cu0:23 Scraps. *Journal of Materials Science & Technology*. 2006;22(5):696-700.
8. LEBED AB, SKOPIN DY, MALTSEV GI. Kinetic Characteristics of Silver Dissolution in Nitric Acid Solutions in the Presence of Ammonium Nitrate. *Chemistry for Sustainable Development* 2012;20 391-6.
9. Razieh Khoshhal HM-G, Mohammad Asadrokht, Ali Hosseinzadeh. Leaching of Metals from Dental Silver Alloy Wastes. *International Journal of Advanced Design and Manufacturing Technology*. 2022;15(2):35-38
10. YILMAZ E, ERTURK S, ARSLAN C, ARSLAN2 F. Silver recovery from dental amalgam wastes. *Material Science and engineering*. 2019;3(5).
11. Yilmaz E, Erturk S, Arslan C, Arslan F. Silver recovery from dental amalgam wastes *Material Science & Engineering International Journal*. 2019;3(5):173-7.
12. Lee CW, Fung KW, editors. Recovery of silver and mercury from dental amalgam waste 1981.
13. HA P, FG I, TL dS, RC dO, ML dM, MA B. Recovery of silver residues from dental amalgam. *Journal of Applied Oral Science*. 6-121:(2)18;2010 .
14. Pereira HA, Iano FG, Silva TLd, Oliveira RCd, Menezes MLd, Buzalaf MA. Recovery of silver residues from dental amalgam. *Journal of Applied Oral Science*. 2010;18(2):121-6.
15. Özmetin C, Çopur M, Yartasi A, Kocakerim MM. Kinetic Investigation of Reaction Between Metallic Silver and Nitric Acid Solutions. 2000;23(8):707-11.
16. Martínez LL, Segarra M, Fernández M, Espiell F. Kinetics of the dissolution of pure silver and silver-gold alloys in nitric acid solution. *Metallurgical Transactions B*. 1993;24(5):827-37.
17. Ozmetin C, Copur M, Yartasi A, Koeakerim MM. Kinetic Investigation of Reaction between Metallic Silver and Nitric Acid Solution in the range