



Conference Book

ISBN 978-963-306-672-0



**Szeged, Hungary
2019.**

II. SUSTAINABLE RAW MATERIALS

**International Project Week
and Scientific Conference**

EFOP-3.6.2-16-2017-00010

SZÉCHENYI 2020



HUNGARIAN
GOVERNMENT

European Union
European Social
Fund



INVESTING IN YOUR FUTURE

NYOMTATOTT ÁRAMKÖRÖK ÉS LED-EK ELŐKÉSZÍTÉSE FÉMKINYERÉS ÉRDEKÉBEN

Ambrus Mária¹, Nagy Sándor¹, Mucsi Gábor¹

¹Nyersanyagelőkészítési és Környezeti Eljárástechnikai Intézet, Miskolci Egyetem, H-3515 Miskolc, Miskolc-Egyetemváros, Magyarország
e-mail: maria.ambrus@uni-miskolc.hu

Absztrakt

A folyamatos technikai és technológiai fejlődés következményeként napjainkban nagymértékben megnőtt az elektronikai termékek iránti kereslet. Azonban a kereslet növekedésével egyre több a hulladékáramba kerülő használt elektromos és elektronikai eszközök mennyisége is, melyek megfelelő feldolgozásával újra felhasználható nyersanyagokat nyerhetünk ki. Ez nem csak a hulladék hierarchia szempontjából előnyösebb megközelítés, hiszen az e-hulladékok másodlagos nyersanyagforrásként való használata számos előnnyel jár: csökkenthető az elsődleges ásványi nyersanyagok felhasználása, megakadályozhatók a helytelen lerakásból eredő környezeti károk és problémák, valamint nagymértékben csökkenthető a CO₂ kibocsátás is. Az e-hulladékok számos olyan fémeket tartalmaznak (például indium, ritkaföldfémek, nemesfémek stb.), melyek az EU számára kritikus fémek. Cikkünkben a nyomtatott áramköri (NYÁK) lapok és a LED-ek feldolgozása során leggyakoribb aprítási módokat tekintjük át, illetve a használt fémkinyerési technológia hatását az előkészítés módjára. A nyomtatott áramkörök esetén és megállapítható, hogy a fémkinyerési módszerek egy-egy optimális szemcseméret-tartományban használhatók. Azonban LED-ek esetén, a téma újdonsága és a hulladékáramba eddig bekerült kis mennyisége miatt még nem találkozhatunk a nyomtatott áramkörökhöz hasonló, kidolgozott előkészítéstechnikai módszerekkel.

Bevezetés

Az elmúlt évtizedek során az információs és kommunikációs technológiák rohamos fejlődésen mentek keresztül, ami folyamatos technológiai fejlesztésekkel és az információs és kommunikációs termékek iránti egyre növekvő kereslettel jellemezhető. A kereslet növekedése mellett azonban megfigyelhető, hogy ezen eszközök lecserélési ciklusa egyre rövidebbé válik. Az elektronikai és elektromos hulladékok így egyre nagyobb mennyiségben kerülnek a hulladékáramba, 2016-ban a világon összesen 44,7 millió tonna e-hulladék keletkezett (lakosonként átlagosan 6,1 kg), ami 2021-re akár 52,2 millió tonna/évre is nőhet [1].

Az Európai Parlament és a Tanács 2008/98/EK irányelvében meghatározott egy ún. hulladékhierarchiát, amit a tagállamoknak elsőbbségi sorrendként kell alkalmazni a hulladékmegelőzési és -gazdálkodási törekvéseik és jogszabály-alkotások során. E szerint a hierarchia szerint az elsődleges cél a hulladék keletkezésének megelőzése. Amennyiben ez nem kivitelezhető, akkor az újrahasználatra való előkészítés, az újrafeldolgozás, majd ezek egyéb (például energetikai) hasznosítása a cél. Végül a legkedvezőtlenebb megoldás a hulladékok ártalmatlanítása [2].

Az e-hulladékok helytelen és veszélyes kezelése vagy feldolgozása, például a brómozott égésgátlókkal ellátott e-hulladékok nyílt égetése során képződő dioxinok és furánok súlyos környezeti és egészségügyi problémákat okozhatnak [1, 3]. Azonban az e-hulladékok hasznosításával nem csak különböző környezeti károk előzhető meg, mivel ezekből számos értékes nyersanyag is kinyerhető. 2017-es adatok alapján az EU számára kritikus fontosságú

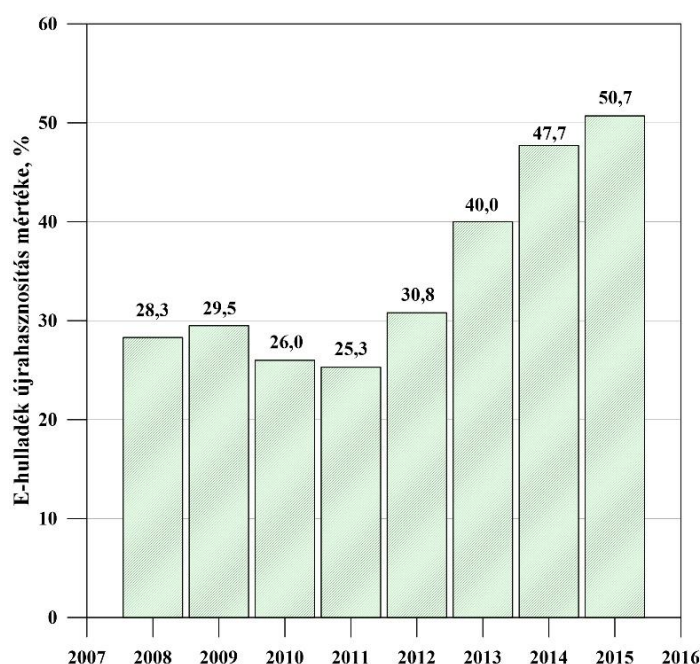
nyersanyagok (mivel ezek esetén magasabb az ellátási hiány kockázata és ezért jelentősebb a gazdaságra gyakorolt hatásuk is) többek között az antimon, a berillium, a gallium, a germánium, a tantál, különböző platinacsoportba tartozó fémek, valamint könnyű és nehéz ritkaföldfémek [4]. Ezek közül több is megtalálható a különböző elektronikai hulladékokban, így azok feldolgozásával csökkenthető lehet az EU import függősége az ezen nyersanyagokat termelő országoktól.

Megvizsgálva a 2016-ban az egyes kontinenseken termelt, valamint összegyűjtött és újrahasznosított elektromos és elektronikai hulladékok mennyiségét (1. táblázat) megállapítható, hogy a legnagyobb mennyiségű e-hulladék Ázsiában keletkezett, mely valószínűleg Kína nagymértékű gazdasági fellendülésének, fejlődésének az eredménye. Európában (Oroszországot is beleértve) az Ázsiában termelt e-hulladék mennyiségének 2/3-át dokumentálták, azonban az újrahasznosítás terén Európa áll az első helyen. A keletkezett 12,3 millió tonna e-hulladék 35%-át hasznosították, míg a második legnagyobb arányban az amerikai kontinensen (Észak-, Közép- és Dél-Amerika) hasznosítottak újra, aminek mértéke az európai arány mindössze fele [1].

1. táblázat. E-hulladék termelés és újrahasznosítás a különböző kontinenseken 2016-ban [1]

Kontinens/ Adat	Afrika	Amerika	Ázsia	Európa	Óceánia
Termelt e-hulladék, Mt	2,2	11,3	18,2	12,3	0,7
Újrahasznosított e-hulladék, Mt	0,004	1,9	2,7	4,3	0,04
Újrahasznosítás mértéke	0,2%	16,8%	14,8%	34,9%	5,7%

A magyarországi e-hulladék újrahasznosítási adatok szerint 2008-2015 között a 2011-ben hasznosították újra a legkevesebb e-hulladékot, a keletkezett mennyiség kicsit több, mint 25%-át. Azonban 2011 után ez az érték folyamatosan növekedett, és 2015-re már a duplájára nőtt, elérve az 50,7%-nyi újrahasznosított elektromos és elektronikai hulladék mennyiséget [5].



1. ábra. Az e-hulladékok újrahasznosításának mértéke Magyarországon 2008-2015 között [5].

Az adatok alapján elmondható, hogy a különböző e-hulladékok újrahasznosításának kutatása egy aktuális téma, főként a hulladéktípus összetettségének fényében. Célunk annak áttekintése, hogy ipari, illetve laboratóriumi közegben milyen mechanikai előkészítési technológiákat alkalmaznak a hulladékká vált nyomtatott áramkörök és LED-ek feldolgozása során.

Nyomtatott áramkörök előkészítése

A nyomtatott áramkörök elengedhetetlen tartozékai valamennyi elektromos és elektronikai berendezésnek, mint például a mobiltelefonoknak, televízióknak, számítógépeknek stb. Összetett alkatrészek, melyek szerves és szervetlen anyagokat is tartalmaznak, különböző polimereket, kerámiákat és fémeket, többek között mérgező anyagokat, nemesfémeket, valamint az EU számára kritikus nyersanyagokat is [6, 7]. Számos módszert alkalmaznak a NYÁK lapok feldolgozására, ezek során az elsődlegesen eldöntendő technológiai tervezési stratégia, hogy az alkatrészeket célszerű-e külön leválasztani és szeparálni (így növelve a termékek tisztaságát), vagy egyben aprítani és feldolgozni [8, 9]. Ezután az előkészítési módját a fémkinyeréshez alkalmazandó technológia és az ehhez szükséges szemcseméret-tartomány mérete határozza meg.

Pirometallurgia

Pirometallurgiai módszerek alkalmazásával már évtizedek óta sikeresen nyernek ki fémeket különböző hulladékokból. Ezen módszerek főbb lépései a feltárás, a szétválasztás/dúsítás és a tisztítás/finomítás. A NYÁK (és egyéb elektronikai hulladékok) ipari feldolgozása során az egyik leggyakrabban alkalmazott pirometallurgiai módszer a kohósítás, mely a hulladék valamilyen kemencében történő olvasztását jelenti. Kohósítás során a feltárást nem aprítással érik el, hanem a kohóba kerülő hulladékok olvasztásával, és a fémeket az olvadékból vagy a salakból vonják ki, így nincs szükség mechanikai előkészítésre a feldolgozás során [10, 11].

Az Umicore belgiumi kohójában arany, ezüst, platinacsoportozóhoz tartozó fémek, valamint másodlagos (pl. antimon, arzén) és alapfémek (pl. réz, ólom, nikkel) finomításával foglalkoznak, és több pirometallurgiai, hidrometallurgiai és elektrokémiai eljárás együttes alkalmazásával nyerik ki a különböző fémeket. A Boliden cég rönnskäri (Svédország) üzemében külön kemencét alkalmaznak ez e-hulladékok olvasztására, melyekből többek között réz, ezüst, arany, palládium, indium stb. is kinyerhető. A kanadai Noranda kohóban évente 100.000 tonna e-hulladékot dolgoznak fel, melyből rezet, aranyat, ezüstöt, platínát, nikkelt és egyéb fémeket nyernek ki. A vizsgált üzemek egyikében sem alkalmaznak aprítást a hulladék olvasztása előtt [10, 12].

A NYÁK pirometallurgiai feldolgozásának másik gyakran vizsgált területe a pirolízis, amely az anyag hő hatására oxigénszegény vagy oxigénmentes közegben végbemenő kémiai bontását jelenti, mely során gáz, folyékony és szilárd halmazállapotú végtermékek keletkeznek. A fémes alkotók a szilárd fázisból további feldolgozással kinyerhetők. A pirolízis alkalmazásának előnye, hogy a NYÁK szerves alkotórészei a gáz és folyadék fázisba kerülnek, melyek tovább hasznosíthatók pl. vegyipari alapanyagként [10, 13].

A kohósítással ellentétben a NYÁK pirolizálása előtt szükséges az alapanyag szemcseméretének csökkentése, sőt, a lehető legjobb fémkinyerés érdekében a pirolízis után is. Bidini és szerzőtársai kimutatták, hogy a 30 mm szemcseméret alá aprított (Retsch SM 2000 típusú vágómalommal) NYÁK pirolizálása után a visszamaradó szilárd termék nemfémes anyag tartalma csökkent, valamint javult a fémek oldhatósága [14]. Long és szerzőtársai a pirolízis előtt manuálisan nagyjából 50×50 mm-es darabokra vágta a NYÁK lapokat, majd pirolízis után egy FW-200 típusú univerzális aprítógéppel csökkentették a visszamaradó szilárd anyag szemcseméretét. Így egy légáramszeparátor segítségével sikeresen

szét tudták választani a fémes és nem-fémes frakciót [15]. Kumari és szerzőtársai kísérleteik során a pirolízist megelőzően 3-5 mm szemcseméretűre aprították az anyagot, amit pirolízis után ismét aprításnak és őrlésnek vetettek alá. Végül hidrometallurgiai módszerek alkalmazásával rezet, vasat, nikkelt és ónt nyertek ki az őrleményből [16].

Az irodalmi adatok alapján megállapítható, hogy a NYÁK pirometallurgiai feldolgozása során a nagyobb mennyiségű és nagy tisztaságú fémkinyerés érdekében szükséges az anyag további feldolgozása, például valamilyen hidrometallurgiai, elektrokémiai stb. módszer segítségével.

Hidrometallurgia

Hidrometallurgiai feldolgozás során különféle erősen savas vagy lúgos oldatot használhatnak az egyes fémek kioldására, majd a szilárd és folyadék fázis szétválasztása után a visszamaradó oldatból visszanyerhetők például a különböző ritkaföldfémek. Időigényesebb, de környezetbarátabb megoldás, mint a pirometallurgiai feldolgozás, azonban nagy figyelmet kell fordítani a felhasznált oldószerek megfelelő kezelésére [2, 10, 16, 17].

Kim és társai mobiltelefon NyÁK aprítékból történő arany kinyeréssel foglalkoztak, amit vágás nélkül (35×40 mm átlagos szemcseméret), ill. kézzel történő 2-3 mm-re történő darabolást követően használtak. Megfigyelték, hogy az arany kioldását hátráltatta a szemcseméret csökkentése [18]. A réz leválasztása után Park és Fray ezüstöt, aranyat és palládiumot tudott visszanyerni a shredderezett hulladék NyÁK-ból, a csapadékban a bemenő fémek 98, 97 ill. 93 tömegszázaléka került [19]. A szuperkritikus vizes előkezelést és savas kioldást Xiu és társai vizsgálták, megállapították, hogy az Sn, Cd, Cr, Zn és Mn kihozatal növelhető. A szemcseméretet 3 mm alá csökkentették vágómalommal [20].

Zhang és társai egy új golyósmalmi módszert alkalmaztak a réz ill. nemesfémek kinyerésére. Először a NyÁK-ok fémes komponenseinek és többrétegű kerámia kondenzátorok keverékének méretét csökkentették 0,25 mm alá vágómalommal. Ezután őrlést segítő adalék hozzáadásával golyósmalomban őrlték a mintákat, és a Cu, Ag és Pd visszanyerési hatásfokát vizsgálták. Az optimális paraméterek használatával megelőzhető lehet a Cu, Ag és Pd visszanyeréshez alkalmazott tipikus toxikus oldatok és a képződő gáz halmazállapotú szennyezők kibocsátása [21].

Biolúgzás

Biolúgzás, vagy biológiai kioldás során különböző mikroorganizmusokat használnak fel az egyes fémek kinyerésére. Mivel nem szükséges az alapanyag különböző vegyszerekben történő oldása, csak a mikroorganizmusok számára megfelelő környezet megteremtése (pl. hőmérséklet és pH szabályozás stb.) és tápoldat adagolása, így a hidrometallurgiai módszerektől környezetkímélőbb megoldás. Mivel az egyes mikroorganizmusok különböző fémek kinyerésére alkalmasak, így bizonyos baktériumkultúrák együttes alkalmazásával megnövelhető a nyomtatott áramkörökből visszanyert fémek száma, illetve azok aránya [10, 22].

2. táblázat. Biolúgzáshoz használható aprítási módok és mikroorganizmusok

Hivatkozás	Aprítás módja	Mikroorganizmusok	Kinyert fémek
Işildar et al. [22]	kézi aprítás; vágómalom (Retsch 2000)	<i>Acidithiobacillus ferrivorans</i> , <i>Acidithiobacillus thiooxidans</i> , <i>Pseudomonas putida</i> , <i>Pseudomonas fluorescens</i>	arany, réz
Ilyas et al. [23]	Rotoplex shredder és Omniplex kalapácsos törő	<i>Sulfobacillus thermosulfidooxidans</i> , <i>Thermoplasma acidophilum</i> , <i>Sulfobacillus acidophilus</i>	nikkel, réz, alumínium, cink
Priya és Hait [24]	kézi aprítás; vágómalom (Retsch SM200)	<i>Acidithiobacillus ferrooxidans</i>	réz, cink, ólom, nikkel
Faraji et al. [25]	kézi aprítás; Moulinex 276 törő; PM2400 bolygómalom	<i>Aspergillus niger (gomba)</i>	cink, nikkel, réz
Adhapure et al. [26]	kézi aprítás	<i>Acidiphilum spp.</i> , <i>Leptospirillum spp.</i> , <i>Thiobacillus ferrooxidans</i> , <i>Thiobacillus caldus</i> , <i>Sulfobacillus</i>	réz, ólom, cink, nikkel
Arshadi et al. [27]	kézi aprítás; őrlés Fristch bolygóműves malomban	<i>Bacillus megaterium</i>	arany, réz

A minták mechanikai előkészítési módjai változatosak lehetnek, azonban általánosságban elmondható, hogy többlépcsős kézi- és gépi aprításon mennek keresztül (2. táblázat). A szakirodalomban különböző típusú aprítógépek alkalmazására találhatunk példákat: kalapácsos törő, vágó- vagy akár golyósmalom is alkalmas lehet a NyÁK szemcseméretének csökkentésére, de akár kézi aprítással is megfelelő szemcseméret állítható elő [26].

Mechanikai szétválasztás

Mechanikai eljárások alkalmazása során a szétválasztás alapja az anyagok egyes tulajdonságai közötti eltérés, mint például eltérő sűrűség, mágneses szuszceptibilitás, elektromos vezetőképesség stb. [2, 7, 28].

He és Duan egy hatékony és gazdaságos flotálási módszert vizsgált, mellyel Cu, Pb és Sn nyerhető ki. A NyÁK hulladékot először kézzel 50×50 mm-es darabokra vágták, majd a mintát laboratóriumi röpítő törővel 3 mm alá, végül golyósmalommal 0,5 mm alá őrölték. Kísérleteik során a fémek nagyobb koncentrációban voltak jelen a durvább frakciókban, és a szemcseméret csökkentésével a fémkinyerés hatékonysága is csökkent [7]. Kumar és szerzőtársai egy környezetbarát eljárást (pneumatikus szétválasztás és flotálás) dolgoztak ki nemesfém-koncentrátum előállítására. Az általuk használt NyÁK-ot először kézzel aprították, majd a szemcseméretet 10 mm alá csökkentették, végül 1,5 mm alá nagysebességű kalapácsos malommal [29]. Cui és Forssberg szerint laboratóriumi kalapácsos malomban történő aprítás után a NyÁK hulladék feltártsága az <5 mm szemcseméret-frakcióban ideális ahhoz, hogy az ebben a frakcióban koncentrált fémek könnyen visszanyerhetők legyenek például örvényáramú vagy elektrosztatikus szeparátor használatával [30].

LED-ek előkészítése

LED alkalmazható LCD kijelzők háttérvilágításaként, LED képernyőkben, illetve különböző világító berendezésekben is. A sokféle értékes ritkaföldfém (pl. cérium, ittrium stb), gallium, alumínium mellett egészségügyi és környezeti kockázatot is okozó nehézfémek is megtalálhatók a LED-ekben. 2012-ben még nem volt jelentős a hulladékká vált LED háttérvilágítású LCD és OLED kijelzők mennyisége, így lényegesen kevesebb a feldolgozásukkal kapcsolatos szakirodalmi adat [22, 31, 32]

Swain és társai a gallium kinyerés lehetőségét vizsgálták a LED gyártás során keletkező porból. A port Na_2CO_3 -tal keverve golyósmalomban örölték, majd szárítás és izzítás után sikerült galliumot kioldaniuk [32]. Zhan és társai LED hulladékot pirolizáltak, majd a visszamaradó kokszot aprították, szitálták, örölték és ismét szitálták. Az általuk alkalmazott technológia segítségével Ga és In nyerhető ki a LED hulladékokból [33].

Laboratóriumi kísérleteik során Nagy és szerzőtársai Ga kinyerésének lehetőségét vizsgálták elhasznált LED-ekből. Mechanikai előkezelés után a vezető (Cu) részek eltávolíthatók voltak, míg a nem vezető tartalmazza a LED chipeket, a felületen GaN réteggel (akár 516 ppm Ga tartalom). Bebizonyították, hogy keverőmalomban történő mechano-kémiai aktiválás és HCl-ban történő oldás után a gallium nagy része visszanyerhető [34]

Az első tanulmányt a LED hulladék bio-hidrometallurgiai feldolgozásáról Pourhossein és Mousavi készítette 2018-ban. Hulladék LED PIN izzókat először ipari törőben aprítottak, majd Fristch típusú bolygómalomban örölték. Vas-oxidáló baktériumok segítségével a ≤ 70 μm -es frakcióból rezet, nikkelt és galliumot tudtak visszanyerni [35]

Ruiz-Mercado és társai egy elméleti modellt állítottak fel LED televíziók háttérvilágításának nagyüzemi feldolgozására. 53 különböző vegyület felhasználásával nyernék ki többek között a különböző ritkaföldfémeket, azonban modelljükben a feldolgozás során nem szükséges a minta aprítása [36].

Összefoglalás

Az irodalmi adatok alapján megállapítható, hogy a NyÁK újrahasznosítás sokkal nagyobb mértékben kutatott téma, mint a LED, ami még viszonylag új technológiának számít. A vizsgált kutatások nagy része a nemesfémek kinyerésére fókuszál.

A NyÁK-ok aprítása nem szükséges bizonyos kinyerési módszerek, pl. kohósítás során. Azonban amennyiben erre szükség van, különböző aprító berendezések alkalmazhatók a későbbi kinyerési módszer használatának függvényében (pl. shredder, kalapácsos malom, golyósmalom).

LED előkészítés esetén az előkészítési és fémkinyerési technológiák még további kutatást igényelnek.

Köszönetnyilvánítás

A cikkben ismertetett kutató munka a „Fenntartható Nyersanyag-gazdálkodási Tematikus Hálózat – RING 2017” című, EFOP-3.6.2-16-2017-00010 jelű projekt részeként a Szechenyi2020 program keretében az Európai Unió támogatásával, az Európai Szociális Alap társfinanszírozásával valósult meg.

Irodalomjegyzék

- [1] C.P. Baldé, V. Forti V. Gray, R. Kuehr, P. Stegmann, The Global E-waste Monitor – 2017, Bonn/Geneva/Vienna, United Nations University (UNU), International Telecommunication Union (ITU) & International Solid Waste Association (ISWA), 2018.

- [2] Az Európai Parlament és a Tanács 2008/98/EK irányelve (2008. november 19.) a hulladékokról és egyes irányelvek hatályon kívül helyezéséről
<https://eur-lex.europa.eu/legal-content/HU/TXT/?uri=celex:32008L0098>
Megtekintés dátuma: 2018.11.15.
- [3] K. Huang, J. Guo, Z. Xu, J. Hazard. Mater. 164 (2009) 399–408.
- [4] A Bizottság közleménye az Európai Parlamentnek, a Tanácsnak, az Európai Gazdasági és Szociális Bizottságnak és a Régiók Bizottságának az EU számára kritikus fontosságú nyersanyagok 2017. évi listájáról.
<https://eur-lex.europa.eu/legal-content/EN/TXT/?uri=COM:2017:490:FIN>
Megtekintés dátuma: 2018.11.15.
- [5] Statista – The Statistics Portal: <https://www.statista.com/statistics/632780/e-waste-recycling-hungary/> Megtekintés dátuma: 2018.11.15.
- [6] H.M. Veit, T.R. Diehl, A.P. Salami, J.S. Rodrigues, A.M. Bernardes, J.A.S. Tenório, Waste Manage. 25 (2005) 67.
- [7] J. He, C. Duan, Waste Manage. 60 (2017) 618.
- [8] J. Faitli, T. Magyar, A. Takács, in: J. Földessy (Ed) Basic research of the strategic raw materials in Hungary, CriticEL 10, Milagrossa Kft., Miskolc, 2014, pp. 100–103.
- [9] J. Faitli, T. Magyar, in: B. Csőke, Lj. Bokányi, J. Faitli, S. Nagy (Eds) Elektronikai hulladékok előkészítése a stratégiai elemek érdekében, CriticEL 7, Milagrossa Kft., Miskolc, 2014, pp. 14–21.
- [10] A. Khaliq, M. Akbar Rhamdhani, G. Brooks, S.H. Masood, Resources 3 (2014) 152.
- [11] L.A. Diaz, T.E. Lister, Waste Manage. 74 (2018) 384.
- [12] I.M.S.K. Ilankoon, Y. Ghorbani, M.N. Chong, G. Herath, T. Moyo, J. Petersen, Waste Manage. 82 (2018) 258.
- [13] P. Hadi, M. Xu, C.S.K. Lin, C-W. Hui, G. McKay, J. Hazard. Mater. 283 (2015), 234.
- [14] G. Bidini, F. Fantozzi, P. Bartocci, B. D'Alessandro, M. D'Amico, P. Laranci, E. Scozza, M. Zagaroli, J. Anal. Appl. Pyrolysis 111 (2015) 140.
- [15] L. Long, S. Sun, S. Zhong, W. Dai, J. Liu, W. Song, J. Hazard. Mater. 177 (2010) 626.
- [16] A. Kumari, M.K. Jha, R.P. Singh, Hydrometallurgy 165 (2016) 97.
- [17] Y. Lu, Z. Xu, Resour. Conserv. Recycl. 113 (2016) 28.
- [18] E. Kim, M. Kim, J. Lee, B.D. Pandey, J. Hazard. Mater. 198 (2011) 206.
- [19] Y.J. Park, D.J. Fray, J. Hazard. Mater. 164 (2009) 1152.
- [20] F.R. Xiu, Y. Qi, F.S. Zhang, Waste Manage. 33 (2013) 1251.
- [21] Z-Y. Zhang, F-S. Zhang, T.Q. Yao, Waste Manage. 68 (2017) 490.
- [22] A. Işildar, E.R. Rene, E.D. Van Hullebusch, P.N.L. Lens, Resour. Conserv. Recycl. 135 (2018) 296.
- [23] S. Ilyas, J. Lee, R. Chi, Hydrometallurgy 131-132 (2013) 138.
- [24] A. Priya, S. Hait, Hydrometallurgy 177 (2018) 132.
- [25] F. Faraji, R. Golmohammadzadeh, F. Rashchi, N. Alimardani, J. Environ. Manage. 217 (2018) 775.
- [26] N.N. Adhasure, P.K. Dhakephalkar, A.P. Dhakephalkar, V.R. Tembhurkar, A.V. Rajgure, A.M. Deshmukh, MethodsX 1 (2014) 181.
- [27] M. Arshadi, S.M. Mousavi, P. Rasoulnia, Waste Manage. 57 (2016) 158.
- [28] M. Sarvar, M.M. Salarirad, M.A. Shabani, Waste Manage. 45 (2015) 246.
- [29] V. Kumar, J. Lee, J. Jeong, M.K. Jha, B. Kim, R. Singh, J. Ind. Eng. Chem. 21 (2015) 805.
- [30] J. Cui, E. Forssberg, J. Hazard. Mater. B99 (2003), 243.
- [31] S. Fang, W. Yan, H. Cao, Q. Song, Y. Zhang, Z. Sun, J. Clean. Prod. 182 (2018) 624.

- [32] B. Swain, C. Mishra, L. Kang, K.S. Park, C.G. Lee, H.S. Hong, *Environ. Res.* 138 (2015) 401.
- [33] L. Zhan, F. Xia, Q. Ye, X. Xiang, B. Xie, *J. Hazard. Mater.* 299 (2015) 388.
- [34] S. Nagy, L. Bokányi, I. Gombkötő, T. Magyar, *Arch. Metall. Mater.* 62 (2017), 1161.
- [35] F. Pourhossein, S.M. Mousavi, *Waste Management* 79 (2018) 98.
- [36] G.J. Ruiz-Mercado, M.A. Gonzalez, R.L. Smith, D.E. Meyer, *Resour. Conserv. Recycl.* 126 (2017) 42.