



Makine Öğrenmesi Tabanlı Yaklaşım ile NMC Lityum-İyon Pillerin Geri Dönüşümünde Liç Koşullarının Modellenmesi

Said ERAY *¹

¹ Sivas Bilim ve Teknoloji Üniversitesi, Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü, Sivas, Türkiye
Sorumlu Yazar (Corresponding author): s.eray@sivas.edu.tr

Özet

Bu çalışmada, NMC tipi ($\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z\text{O}_2$) lityum-iyon pillerin hidrometalurjik yöntemle geri dönüşümünde liç parametrelerinin etkisi, makine öğrenmesi tabanlı modellerle incelenmiştir. Literatürden derlenen 269 deneysel veri noktasından oluşan veri seti, süre, sıcaklık, katı/sıvı oranı, H_2O_2 oranı ve sitrik asit konsantrasyonu gibi temel değişkenleri içermektedir. Lityum (Li) ile geçiş metallerinin (Co, Ni, Mn) çözünme oranları hedef değişken olarak kullanılmıştır. Modelleme sürecinde Doğrusal Regresyon, Karar Ağacı ve Rastgele Orman algoritmaları karşılaştırılmış; en yüksek doğruluk Rastgele Orman modelinde elde edilmiştir ($R^2 > 0.88$). Model çıktıları, SHAP (SHapley Additive Explanations) analizi ile yorumlanarak değişkenlerin önem derecesi belirlenmiş, PDP (Partial Dependence Plot) grafikleri ile de parametrelerin çözünme davranışına etkileri görselleştirilmiştir. Bulgular, sıcaklık ve süre gibi işlem koşullarının özellikle Li çözünürlüğü üzerinde belirleyici olduğunu, H_2O_2 ve sitrik asit konsantrasyonunun ise daha çok geçiş metallerinin çözünmesini etkilediğini göstermiştir. Bu çalışma, literatürdeki verilerin yapay zeka ile yeniden değerlendirilerek deneysel optimizasyona yön verilmesinin mümkün olduğunu ortaya koymaktadır.

Araştırma Makalesi

Makale Tarihçesi

Geliş Tarihi: 18.07.2025
Kabul Tarihi: 20.08.2025

Anahtar Kelimeler

Lityum-İyon Piller
Geri Dönüşüm
Hidrometalurji
Makine Öğrenmesi

A Machine Learning-Based Approach for Modeling Leaching Conditions in the Recycling of NMC Lithium-Ion Batteries

Abstract

In this study, the effects of leaching parameters on the hydrometallurgical recycling of NMC-type ($\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z\text{O}_2$) lithium-ion batteries were investigated using machine learning-based models. The dataset, compiled from the literature, consists of 269 experimental data points and includes key variables such as time, temperature, solid-to-liquid (S/L) ratio, H_2O_2 concentration, and citric acid concentration. The dissolution rates of lithium (Li) and transition metals (Co, Ni, Mn) were used as target variables. Linear Regression, Decision Tree, and Random Forest algorithms were compared during the modeling process, with the Random Forest model achieving the highest accuracy ($R^2 > 0.88$). Model outputs were interpreted using SHAP (SHapley Additive Explanations) analysis to determine the relative importance of the variables, and Partial Dependence Plots (PDPs) were used to visualize the effects of process parameters on leaching behavior. The findings revealed that operational conditions such as temperature and time were particularly decisive for Li dissolution, while H_2O_2 and citric acid concentrations had a greater influence on the dissolution of transition metals. This study demonstrates that re-evaluating literature data through artificial intelligence can effectively guide experimental optimization efforts.

Research Article

Article History

Received: 18.07.2025
Accepted: 20.08.2025

Keywords

Li-Ion Batteries,
Recycling,
Hydrometallurgy,
Machine Learning

1. Giriş

Son yıllarda elektrikli araçlar, taşınabilir elektronik cihazlar ve enerji depolama sistemlerindeki hızlı gelişmeler, lityum-iyon pillerin küresel üretim ve tüketiminde önemli bir artışa yol açmıştır. Bu artışla birlikte, kullanılmış Li-iyon pillerin oluşturduğu çevresel yük ve değerli metal kaybı da ciddi bir sorun haline gelmiştir (Fan ve ark., 2020). Özellikle NMC ($\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z\text{O}_2$) tipi katotlara sahip piller, lityum (Li), kobalt (Co), nikel (Ni) ve mangan (Mn) gibi kritik metalleri içermeleri nedeniyle geri dönüşüm açısından yüksek ekonomik ve çevresel değere sahiptir (Celep ve ark., 2023; Yu ve ark., 2024).

Doğrudan fiziksel ayırma (Diekmann ve ark., 2017), pirometalurjik (Holzer ve ark., 2021), biyoteknolojik (Bahaloo-Horeh and Mousavi, 2017) ve hidrometalurjik (Lv ve ark., 2020) yöntemler olmak üzere çeşitli teknolojilerle bu metallerin geri kazanımı mümkündür. Bu yöntemler arasında hidrometalurji; yüksek saflıkta ürün eldesi, seçici çözünürlük, düşük enerji tüketimi ve daha az zararlı emisyon avantajları nedeniyle öne çıkmaktadır (Fahimi ve ark., 2022). Ancak hidrometalurjik süreçlerin optimize edilmesi, çok sayıda parametrenin bir arada değerlendirilmesini gerektirmekte ve bu durum geleneksel deneysel yöntemlerle zaman alıcı ve maliyetli olmaktadır.

Son dönemde bilimsel çalışmalarda giderek artan şekilde yer bulan makine öğrenmesi (ML) algoritmaları (Acilar, 2020; Musabeyoglu ve ark., 2024), bu gibi çok parametrelili süreçlerde etkin modelleme ve öngörü sunma potansiyeli taşımaktadır. ML uygulamaları, yalnızca karmaşık etkileşimleri anlamlandırmakla kalmayıp, aynı zamanda deneysel tasarımlara yön vererek sürecin verimliliğini artırabilir (Niu ve ark., 2025).

Bu çalışmada, literatürden derlenen kapsamlı deneysel verilere dayanarak, NMC tipi Li-iyon pillerin hidrometalurjik geri dönüşümünde kullanılan liç parametrelerinin makine öğrenmesi ile modellenmesi amaçlanmaktadır. Farklı regresyon modelleri karşılaştırılarak en uygun model belirlenmiş, SHAP ve PDP analizleri ile değişkenlerin etkisi yorumlanmıştır.

2. Materyal ve Yöntem

2.1. Asit seçimi ve veri setinin oluşturulması

Bu çalışmada kullanılan veri seti, lityum-iyon pillerin hidrometalurjik liç yoluyla geri dönüşümüne odaklanan bilimsel literatürden derlenmiştir. İlk olarak, bu alandaki 116 akademik makale sistematik biçimde taranmış; yalnızca liç yöntemi içeren ve NMC katotlarıyla yapılan çalışmalara odaklanılmıştır. Literatüre bakıldığında sülfürik asit ve sitrik asidin bu pillerdeki değerli metalleri çözmek için en sık kullanılan asitler olduğu tespit edilmiştir. Bu asitleri kullanan ve yöntem ve parametre benzerliği taşıyan 11 makaleden süre, sıcaklık, katı/sıvı (K/S) oranı, H_2O_2 oranı, asit türü ve asit yoğunluğu gibi temel liç parametreleri ile Li, Co, Ni ve Mn çözünme oranlarını içeren, 179'u sitrik asit, 90'ı sülfürik aside ait, toplam 269 veri toplanmıştır. Makalelerdeki veriler doğrudan tablolar yoluyla veya grafiklerden WebPlotDigitizer yazılımı kullanılarak çıkarılmıştır. Bu çalışmada kullanılan veri seti, literatürde yer alan deneysel çalışmalardan doğrudan derlenmiş olup herhangi bir normalize etme, standartlaştırma ya da aykırı değer temizleme işlemi uygulanmadan kullanılmıştır. Bu tercih, modelin ham veriler üzerinde genel eğilimleri yakalama yeteneğini değerlendirmek ve gerçek dünya verilerine dayalı bir yaklaşım geliştirmek amacıyla yapılmıştır. Sitrik asit; hem literatürde en sık kullanılan asitlerden birisi olması hem de elimizdeki en fazla veriye sahip olması nedeniyle hedef asit olarak seçilmiştir.

2.2. Metal çözünme korelasyonunun incelenmesi

Modelleme öncesinde, hedef metaller (Li, Co, Ni, Mn) arasındaki çözünme ilişkilerinin anlaşılması amacıyla Pearson korelasyon analizi uygulanmıştır. Bu analiz, birden fazla hedef

değişkenin benzer ya da farklı çözünme davranışları gösterip göstermediğini belirlemek amacıyla gerçekleştirilmiştir. Korelasyon matrisleri, modelleme stratejisinin (örneğin, hedeflerin gruplanması) oluşturulmasına yön vermiştir.

2.3. Regresyon modellerinin uygulanması

Elde edilen veri seti üzerinde üç farklı regresyon algoritması uygulanmıştır: Doğrusal Regresyon (Linear Regression), Karar Ağacı (Decision Tree Regressor) ve Rastgele Orman (Random Forest Regressor). Modelleme süreci Python programlama dili kullanılarak, yaygın olarak kullanılan scikit-learn kütüphanesi aracılığıyla gerçekleştirilmiştir. Modeller, veri setindeki bağımsız değişkenler ile hedef değişkenler (Li ve geçiş metallerinin liç verimleri) arasındaki ilişkileri temsil etme yeteneklerine göre değerlendirilmiştir.

Model performansları karşılaştırılırken üç temel değerlendirme metriği kullanılmıştır: R^2 (determinasyon katsayısı), MAE (Ortalama Mutlak Hata) ve RMSE (Kök Ortalama Kare Hatası). Tüm algoritmalarda hiperparametreler, algoritmaların varsayılan ayarları kullanılarak belirlenmiştir; bu sayede modellerin temel performansları karşılaştırmalı olarak gözlemlenmiştir.

Bu analizler, liç sürecindeki deneysel parametrelerin hedef çıktılar üzerindeki etkilerinin en doğru şekilde hangi model tarafından temsil edildiğini belirlemek amacıyla yapılmıştır.

2.4. SHAP ve PDP analizleri

Modelin daha derinlemesine anlaşılması amacıyla, Rastgele Orman algoritması ile eğitilen modelin çıktıları SHAP (SHapley Additive exPlanations) analizi ile yorumlanmıştır. SHAP değerleri, her bir giriş değişkeninin model tahmini üzerindeki katkısını pozitif veya negatif yönde göstererek, değişken etkilerini açıklamaya yardımcı olur.

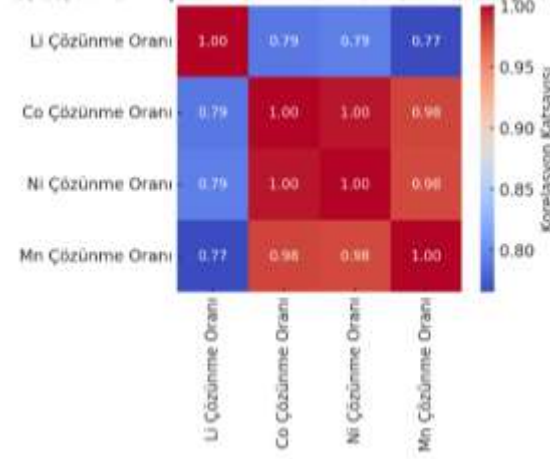
Buna ek olarak, PDP (Partial Dependence Plots) grafikleri kullanılarak, her bir bağımsız değişkenin hedef değişken üzerindeki ortalama etkisi görselleştirilmiştir. Bu grafikler, deneysel tasarım sürecine rehberlik edecek şekilde parametrelerin etkilerini sade biçimde ortaya koymuştur.

3. Bulgular ve Tartışma

3.1. Metal çözünme oranları arasındaki korelasyonun belirlenmesi

Regrasyon modelleme yapılmadan önce Li, Co, Ni ve Mn çözünme oranları arasındaki korelasyon incelenmiştir. Şekil 1’de verilen korelasyon matrisinde görüldüğü gibi Co, Ni ve Mn metalleri için ikili korelasyon değerlerinin 1’e yakın olması bu metallerin çözünme davranışlarının çok benzer olduğunu gösterir. Bu değer Li ve diğer metaller için daha düşük olup 0,77-0,79 aralığındadır. Bu da lityumun daha farklı davranış sergilediğini göstermektedir. Bu yüzden analizlerde Li ayrı bir grup ve Co, Ni ve Mn (geçiş metalleri, GM) ayrı bir grup olarak incelenmiştir.

Literatürde yer alan bazı çalışmalarda (Niu ve ark., 2023), Li, Co, Ni ve Mn metallerinin leaching verimleri arasında yüksek korelasyon bildirilmiştir. Bu durum, kullanılan geniş parametre aralığı (25 farklı asit tipi, çok sayıda deneysel koşul) nedeniyle tüm metallerin benzer koşullarda çözünmesini sağlamış olabilir. Oysa bu çalışmada sadece sitrik asit kullanılmış olup, Li’nin farklı çözünme davranışı belirgin şekilde gözlemlenmiştir. Ayrıca korelasyon analizinde Pearson yöntemi tercih edilmiş, bu da yalnızca doğrusal ilişkileri değerlendirmiştir. Farklı korelasyon yöntemlerinin (ör. Spearman) kullanılması, benzer veri setlerinde farklı sonuçlar ortaya koyabilir.



Şekil 1. Farklı metallerin çözünme oranlarının korelasyon katsayıları

3.2. Verilerin modellenmesi ve model performanslarının karşılaştırılması

Verilerin analizi için farklı modeller denenmiş ve veri setini en iyi açıklayan model seçilmiştir. Uygulanan Doğrusal (Linear), Rastgele Orman (Random Forest) ve Karar Ağacı (Decision Tree) regresyonların karşılaştırması Tablo 1’de yapılmıştır.

Tablo 1. Farklı regresyon modellere ait ölçütler

Model	Li			GM		
	R ²	MAE	RMSE	R ²	MAE	RMSE
Doğrusal (Linear)	0,678	11,46	14,602	0,688	11,349	14,447
Rastgele Orman (Random Forest)	0,883	6,364	8,805	0,893	6,469	8,473
Karar Ağacı (Decision Tree)	0,793	8,618	11,692	0,862	7,074	9,609

Random Forest, hem Li hem de GM’ler için $R^2 \approx 0,88-0,89$ ile en iyi genel performansı ve en düşük MAE/RMSE’yi sunmuştur.

Karar Ağacı, Rastgele Orman’a göre daha yüksek hatalara ve biraz daha düşük R^2 ’ye sahip olmasına rağmen makul derecede iyi performans göstermektedir.

Doğrusal Regresyon en zayıf performansı göstermektedir ve bu da liç sürecinde doğrusal olmayan etkilerin önemli olduğunu göstermektedir.

Bu sonuçlar, Rastgele Orman modelin, liç süreçlerindeki karmaşık, doğrusal olmayan etkileşimleri yakalamak için oldukça uygun olduğunu doğrulamaktadır.

3.3. SHAP analizi bulguları

Analizin devamında modelin nasıl çalıştığını daha iyi anlamak için SHAP grafikleri oluşturulmuştur. SHAP grafikleri, makine öğrenmesi modellerinin karar verme süreçlerini daha anlaşılır hale getirmek için kullanılan güçlü yorumlama araçlarıdır. Bu yöntem, her bir girdinin model çıktısına ne kadar katkı sağladığını matematiksel olarak hesaplayarak, modelin neden belirli bir tahminde bulunduğunu açıklar. SHAP grafikleri, her bir girdinin model tahminine olan katkısını pozitif veya negatif yönde göstererek, değişkenlerin önem sırasını ve etkisini görselleştirir. Genellikle yatay eksen SHAP değeri yer alır; bu değer büyüdükçe girdinin model tahmini üzerindeki etkisi artar. Renk skalası ise ilgili girdinin düşüktür yükseğe değeri aldığını gösterir. Pozitif SHAP değerleri, tahmini artırıcı; negatif SHAP değerleri ise tahmini azaltıcı etki anlamına gelir. Böylece hem hangi değişkenlerin daha

belirleyici olduğu hem de bu değişkenlerin nasıl bir etki yönüne sahip olduğu açıkça yorumlanabilir.

Li için SHAP grafiği Şekil 2-a'da verilmiştir. Bu grafiğe göre aşağıdaki yorumlar yapılabilir:

Sıcaklık: En etkili özellik. Yüksek değerler (kırmızı) Li liç oranını (pozitif SHAP değerleri) önemli ölçüde artırır.

Aynı zamanda düşük sıcaklıklar (mavi) tahmini önemli ölçüde azaltır. Bu durum sıcaklık değişiminin büyük ölçüde etkisinin olduğunu gösterir.

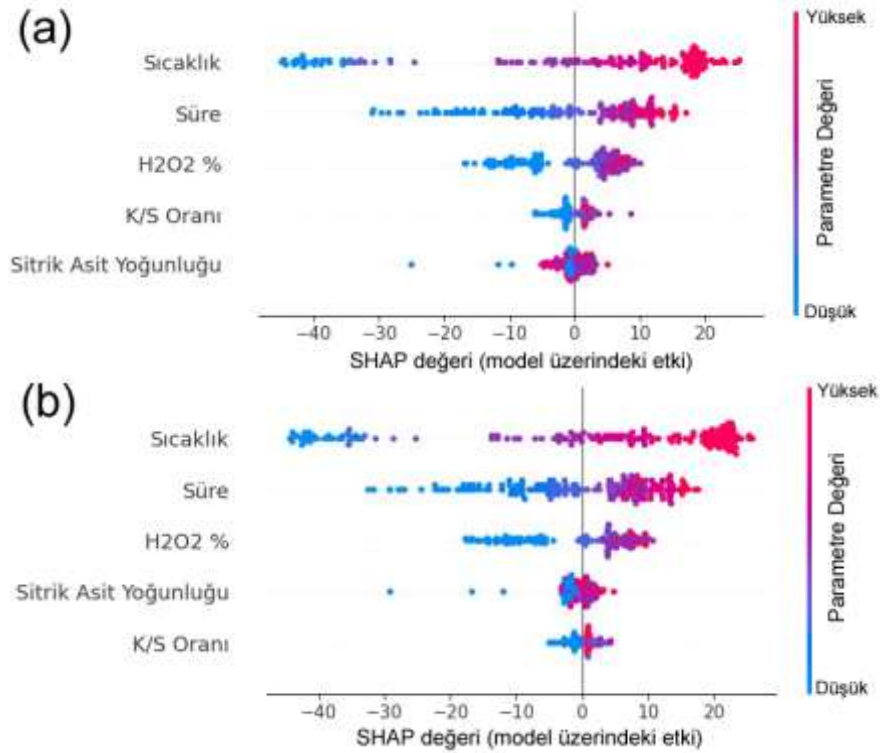
Süre: Sıcaklık kadar olmasa da güçlü bir etkiye sahiptir. Süre değişikliği tahminde büyük değişikliğe yol açıyor.

H₂O₂% : Eklenmesi çözünme üzerinde orta derecede olumlu etkisi görülmektedir.

K/S Oranı: Çok net bir ayrım yoktur. Hem yüksek hem de düşük değerler tahminleri her iki yönde de etkileyebilir. Bu durum doğrusal olmayan veya diğer parametrelerle etkileşimli bir etkiye işaret ediyor olabilir.

Sitrik Asit Yoğunluğu (Sitrik Asit Konsantrasyonu): Şaşırtıcı bir şekilde bu modelde parametreler arasında en az etkili olanıdır.

GM için SHAP grafiği Şekil 2-b'de verilmiştir. Li için yapılan yorumlar büyük ölçüde GM için de geçerlidir. Fakat sitrik asidin yoğunluğu GM'ler için Li'den biraz daha etkili olduğu görülmektedir. Ayrıca H₂O₂'ye baktığımızda yüksek olduğunda pozitif etkisi olduğu anlaşılmaktadır (kırmızı), ancak Li'ye kıyasla daha az belirgindir. Bu, GM'lerin Li'ye kıyasla H₂O₂ artışına daha az bağlı olabileceğine işaret edebilir.



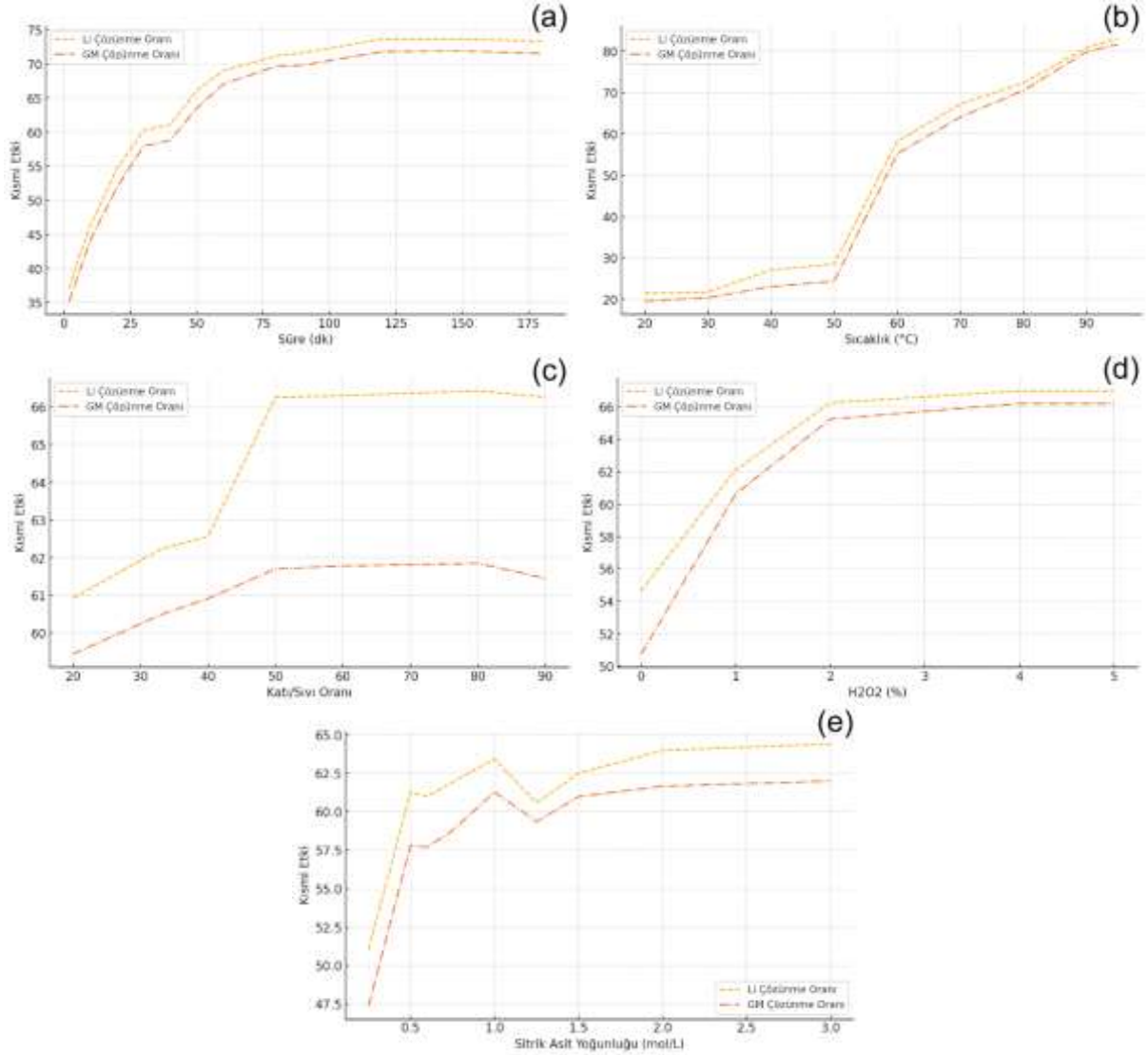
Şekil 2. Rastgele Orman modeline göre SHAP grafikleri

Literatürdeki benzer bir çalışmaya (Niu ve ark., 2023) bakıldığında her iki çalışmada da sıcaklık, süre, H_2O_2 ve asit konsantrasyonu gibi parametrelerin model üzerindeki etkisi benzer şekilde değerlendirilmiştir. Ancak pulp density (katı/sıvı oranı) bu çalışmada görece daha düşük önem derecesine sahipken, literatürde (Niu ve ark., 2023) ikinci sırada yer almıştır. Bu fark, Niu ve arkadaşlarının çalışmasında pulp density aralığının çok geniş tutulması (2–300 g/L) ve farklı asit sistemlerinin (organik ve inorganik) kullanılması ile açıklanabilir. Ayrıca, bu çalışmada yalnızca sitrik asit kullanılması, pulp density'nin çözünme verimleri üzerindeki etkisinin daha sınırlı gözlenmesine neden olmuş olabilir. Oysa literatürde farklı asit türlerinin (özellikle güçlü inorganik asitlerin ve karışım sistemlerinin) kullanılması, pulp density'nin metal çözünürlüğü üzerinde daha belirleyici bir faktör hâline gelmesine yol açmıştır. Bu durum SHAP analizinde gözlenen parametre sıralamasındaki farklılığın başlıca nedenlerinden biri olabilir.

3.4. PDP (partial dependence plot) bulguları

Analizlerin son aşamasında PDP grafikleri çizilmiştir. Bu grafikler bir veya iki bağımsız değişkenin hedef değişken üzerindeki ortalama etkisini görselleştirmek için kullanılan yorumlayıcı araçlardır. Bu grafikler, modelin diğer tüm değişkenlerini sabit tutarak yalnızca ilgili değişkenin nasıl bir etki oluşturduğunu gösterir. Yatay eksen bağımsız değişkenin değeri yer alırken, dikey eksen bu değişkenin model çıktısına olan ortalama etkisi gösterilir. Böylece, değişkenin artması ya da azalması durumunda modelin nasıl tepki verdiği analiz edilebilir. PDP grafikleri, özellikle deneysel tasarımlarda parametrelerin hedef çıktılar üzerindeki eğilimlerini anlamak ve optimize etmek açısından önemli bilgiler sunar. Farklı değişkenler için çizilen PDP grafikleri Şekil 3'te gösterilmiştir. Bu grafikler her değişkenin Li ve GM liç oranı üzerindeki etkisini anlatmaktadır. Şekil 3-a liç süresinin etkisini göstermektedir. 0–60 dakika arası her iki çözünme oranında da belirgin bir artış görülüyor. Bu, reaksiyonun başlangıç aşamasında kinetiğin hızlı olduğunu ve çözünmenin bu dönemde daha etkin gerçekleştiğini gösteriyor. 60–120 dakika arası artış devam etse de, eğim giderek azalıyor. Bu durum, çözünmenin doygunluk eğilimine girdiğini, yani sistemdeki reaktiflerin sınırlandığını düşündürüyor. 120–180 dakika arası her iki çözünme oranı da plato yapıyor. Bu, daha uzun sürelerin ilave fayda sağlamadığını, optimal sürenin yaklaşık 120 dakika civarında olduğunu gösteriyor. Li Çözünme Oranı, GM çözünme oranına kıyasla her aşamada biraz daha yüksektir. Bu, Li'nin daha kolay veya daha hızlı çözündüğünü gösteriyor olabilir.

Şekil 3-b sıcaklığın etkisini göstermektedir. 20–50 °C arası her iki çözünme oranı düşük seviyelerde ve oldukça durağan. Bu sıcaklık aralığında sistemin kinetik olarak yavaş çalıştığı anlaşılıyor. 50–60 °C arası her iki çözünme oranında çok belirgin bir sıçrama var. Bu nokta, kritik bir eşik gibi görünüyor ve aktivasyon enerjisinin aşıldığı bir aralık olabilir. 60–90+ °C arası artış devam ediyor ancak eğim daha yatık hale geliyor. Bu da çözünmenin verimli şekilde sürdüğünü, ancak sıcaklığın etkisinin artık giderek sınırlı hale geldiğini gösteriyor. Li çözünme oranı, her sıcaklık seviyesinde GM çözünme oranından biraz daha yüksek kalıyor. Özellikle 60–80 °C aralığı, hem Li hem de GM için optimum çözünme eğiliminin sağlandığı aralık gibi görünüyor. 90 °C ve üstü ise yüksek çözünürlük oranı sunmakla birlikte, enerji maliyeti açısından değerlendirilmelidir.



Şekil 3. Farklı parametreler için PDP grafiği, a) süre, b) sıcaklık, c) katı/sıvı oranı, d) H₂O₂ oranı ve d) asit yoğunluğu

Şekil 3-c liç işlemlerinde katı/sıvı oranının (g/L) hem Lityum (Li) hem de Geçiş Metallerinin (GM) çözünme oranları üzerindeki etkisini gösteriyor. 20–40 g/L arası kısmi etkide hafif ama kararlı bir artış söz konusu. Çözünme performansı bu aralıkta düzenli şekilde iyileşiyor. 40–50 g/L arası her iki eğrinin de belirgin biçimde sıçrama yaptığı bir bölge. Bu, çözünme mekanizmasının bu aralıkta daha verimli çalıştığını ve sistemde yeterli etkileşim ortamının oluştuğunu gösteriyor. 50–90 g/L arası kısmi etkiler plato yapıyor. Li çözünme oranı sabitlenmiş gibi görünürken, GM çözünme oranında 80’den sonra çok hafif bir düşüş gözleniyor. Aşırı yüksek S/L oranları, çözünme oranını sınırlayabilir. Bu, sıvı fazdaki iyon transferinin zorlaşması veya çözeltide doygunluk yaklaşmasıyla açıklanabilir. Optimum bölge 40–60 g/L arası gibi görünüyor — çözünme verimi yüksek, ancak sistem hâlâ akışkan kalabiliyor. Li çözünme oranı tüm değerlerde GM’ye göre daha yüksek ve daha istikrarlı. Ancak GM için eğri daha duyarlı, S/L oranı arttıkça çözünme daha erken sabitleniyor, yani katı faz fazlalığı GM çözünmesini biraz daha olumsuz etkileyebilir.

Şekil 3-d liç sisteminde oksitleyici ajan olarak kullanılan H₂O₂’nin (yüzde konsantrasyon olarak) hem Lityum (Li) hem de Geçiş Metallerinin (GM) çözünme oranlarına

olan etkisini gösteriyor. 0–2% H_2O_2 arası hem Li hem de GM çözünme oranlarında belirgin bir artış görülüyor. Bu, H_2O_2 'nin etkili bir oksitleyici olduğunu ve özellikle bu aralıkta reaksiyon kinetiğini ciddi oranda hızlandırdığını gösteriyor. 2–5% H_2O_2 arası artış devam ediyor ancak çok daha düşük eğimle. Eğriler plato eğiliminde; sistem artık H_2O_2 'den sınırlı fayda sağlıyor olabilir. Özellikle 2% seviyesinden sonra, çözünme oranları doyumluğa ulaşıyor. H_2O_2 , özellikle TM'lerin (örneğin $Co^{3+} \rightarrow Co^{2+}$ gibi) redoks dönüşümleri için kritik rol oynar. Oksijen radikalleriyle daha fazla metal iyonunu çözeltide tutabilir. Ancak aşırı H_2O_2 kullanımı, bazı sistemlerde çözeltinin stabilitesini bozabilir (özellikle asidik ortamda bozunma ile O_2 çıkışı), bu nedenle ekonomik ve teknik açıdan optimum değer 2–3% gibi görünüyor. H_2O_2 artışı her iki çözünme oranını da artırsa da, GM çözünme oranı H_2O_2 'ye daha hassas görünüyor (daha dik eğim). Li çözünürlüğü ise zaten yüksek olduğundan, H_2O_2 ile daha sınırlı bir artış göstermiş olabilir. Şekil 3-d liç çözeltisinde kullanılan sitrik asidin molar konsantrasyonunun etkisini göstermekte. 0.1–0.5 mol/L aralığı her iki çözünme oranında da çok belirgin bir artış görülüyor. Bu, sistemin düşük asit konsantrasyonlarında çözünmeye çok duyarlı olduğunu ve iyonlaşmanın hızlı arttığını gösteriyor. Her ne kadar 1.0–1.5 mol/L aralığında küçük bir dalgalanma gözlenirse de, bu sapma büyük olasılıkla deneysel gürültü veya model kaynaklı olabilir. Bu nedenle genel eğilim dikkate alındığında, artan sitrik asit konsantrasyonu ile hem Li hem de GM çözünme oranlarının istikrarlı biçimde yükseldiği söylenebilir. 2 mol/L'den sonra neredeyse plato çiziyor. Bu aralıkta çözünme oranları artık doyumluğa ulaşmakta. Sitrik asit, hem pH düşürücü hem de kompleks oluşturucu (şelatlayıcı) ajan olarak çalışır. Bu nedenle özellikle GM iyonlarının çözünmesinde çok etkili. Ancak çok yüksek konsantrasyonlarda, kompleks dengesi kararsızlık yaratabilir ya da çözelti viskozitesi artarak difüzyonu kısıtlayabilir. Li çözünme oranı daha yüksek, ancak GM çözünme oranı daha kararlı bir artış gösteriyor. Li çözünürlüğü daha erken doyumluğa ulaşırsa da, kompleksleme davranışları farklı olduğu için GM eğrisi daha düzenli seyrediyor.

Niu ve arkadaşlarının (Niu ve ark., 2023) çalışmasına elde edilen sonuçlar genel eğilimler bakımından tutarlı olmakla birlikte, bazı parametrelerde dikkat çekici farklar gözlemlenmiştir. Örneğin, her iki çalışmada da sıcaklık artışı Li çözünürlüğünü anlamlı şekilde artırmakta, ancak Niu ve arkadaşlarının çalışmasında bu artış daha yüksek sıcaklıklarda (90 °C civarı) doyumluğa ulaşırken, bizim çalışmamızda optimum aralık 60–80 °C olarak tespit edilmiştir. Benzer şekilde, süre parametresi her iki çalışmada da 90–120 dakika aralığında plato eğilimi göstermekte olup, çözünme tepkimesinin bu aralıkta tamamlandığı görülmektedir. Katı/sıvı oranı açısından ise belirgin bir fark dikkat çekmektedir: Bizim çalışmamızda 40–60 g/L aralığı optimum değerler sunarken, Niu ve arkadaşlarının çalışmasında K/S oranı çok daha geniş aralıkta değerlendirilmiş ve maksimum çözünme ~100 g/L dolaylarında gerçekleşmiştir. Bu durum, bizim çalışmamızda kullanılan tek asit tipi (sitrik asit) ve veri aralığının daha dar olmasıyla açıklanabilir. H_2O_2 oranı için her iki çalışmada da %2–3 aralığında optimum etki gözlenmiş, ancak Niu ve arkadaşlarının çalışmasında bu etki daha erken plato eğilimi göstermiştir. Son olarak, asit konsantrasyonu arttıkça Li çözünürlüğü her iki çalışmada da artmakta, ancak 1.5–2.0 mol/L sonrası doyum noktasına ulaşılmaktadır. Bu bulgular, her iki modelin genel eğilimleri benzer şekilde yakaladığını, ancak deneysel parametre aralıkları ve kullanılan asit türü gibi etkenlerin çözünme davranışları üzerinde belirleyici olduğunu ortaya koymaktadır.

4. Sonuç

Bu çalışmada, NMC tipi lityum-iyon pillerin hidrometalurjik geri dönüşüm süreçlerinde kullanılan temel liç parametrelerinin çözünme verimi üzerindeki etkisi, makine öğrenmesi teknikleri kullanılarak incelenmiştir. SHAP ve PDP analizleriyle desteklenen modelleme sonuçları, deneysel bulguların sayısal olarak yorumlanmasına ve süreç optimizasyonuna katkı sağlamaktadır.

Modelleme sürecinde Random Forest algoritması, doğrusal ve karar ağacı modellerine kıyasla daha yüksek doğruluk ve daha düşük hata değerleri ile öne çıkmıştır. Bu durum, liç süreçlerinde değişkenler arasındaki etkileşimlerin karmaşık ve doğrusal olmayan yapıda olduğunu ortaya koymaktadır. SHAP analizleri, sıcaklık ve sürenin Li çözünme oranı üzerinde en belirleyici faktörler olduğunu göstermiştir. PDP grafiklerine göre bu parametrelerin artışı çözünme oranını anlamlı ölçüde artırmakta; ancak 120 dakika süre ve 60–80 °C sıcaklık aralığında doygunluğa ulaşılmaktadır. H₂O₂ oranı ve sitrik asit konsantrasyonu ise özellikle geçiş metallerinin çözünürlüğünde etkili olmuş; 2–3% H₂O₂ ve 1–2 mol/L sitrik asit aralıkları optimum değerler olarak öne çıkmıştır. Katı/sıvı oranı için ise 40–60 g/L aralığı hem Li hem de GM çözünmeleri açısından dengeli ve verimli sonuçlar sunmuştur. PDP grafiklerinde bazı aralıklarda görülen küçük dalgalanmaların, model gürültüsü ya da veri dengesizliğinden kaynaklanabileceği ve genel eğilime odaklanmanın daha doğru olacağı değerlendirilmiştir. Bu analizler, parametrelerin bağımsız etkilerini görselleştirerek deney tasarım süreçlerine önemli katkılar sağlayacak niteliktedir.

Kaynaklar

- Acilar, A.M., 2020. Heating and cooling load estimation of residential buildings using adaboost. R2 regression algorithm. *International Journal on Mathematics, Engineering and Natural Sciences*, 13: 1–12.
- Bahaloo-Horeh, N., Mousavi, S.M., 2017. Enhanced recovery of valuable metals from spent lithium-ion batteries through optimization of organic acids produced by *Aspergillus niger*. *Waste Management*, 60: 666–679.
- Celep, O., Yazici, E.Y., Devenci, H., Dorfling, C., 2023. Recovery of lithium, cobalt and other metals from lithium-ion batteries. *Pamukkale University Journal of Engineering Sciences*, 29(4): 384–400.
- Diekmann, J., Hanisch, C., Froböse, L., Schällicke, G., Loellhoeffel, T., Fölster, A.S., Kwade, A., 2017. Ecological recycling of lithium-ion batteries from electric vehicles with focus on mechanical processes. *Journal of The Electrochemical Society*, 164(1): A6184–A6191.
- Niu, E.S., Liu, B., Yuan, J., Xiao, Y., Xu, Z., 2025. Intelligent metal recovery from spent Li-ion batteries: machine learning breaks the barriers of traditional optimizations. *Green Chemistry*, 27(9): 2478–2492.
- Fahimi, A., Zanoletti, A., Cornelio, A., Mousa, E., Ye, G., Frontera, P., Depero, L.E., Bontempi, E., 2022. Sustainability analysis of processes to recycle discharged lithium-ion batteries, based on the ESCAPE approach. *Materials*, 15(23): 8527.
- Fan, E., Li, L., Wang, Z., Lin, J., Huang, Y., Yao, Y., Chen, R., Wu, F., 2020. Sustainable recycling technology for li-ion batteries and beyond: challenges and future prospects. *Chemical Reviews*, 120(14): 7020–7063.
- Holzer, A., Windisch-Kern, S., Ponak, C., Raupenstrauch, H., 2021. A novel pyrometallurgical recycling process for lithium-ion batteries and its application to the recycling of LCO and LFP. *Metals*, 11(1): 149.
- Lv, W., Wang, Z., Zheng, X., Cao, H., He, M., Zhang, Y., Yu, H., Sun, Z., 2020. Selective recovery of lithium from spent lithium-ion batteries by coupling advanced oxidation processes and chemical leaching processes. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 8(13): 5165–5174.

- Musabeyoglu, A., Tug, N., Durmus, O.C., Akgun, G., Akuner, M.C., 2024. Uhf Rfid localization with machine learning approaches: distance estimation from rssi data. *International Journal on Mathematics, Engineering and Natural Sciences*, 8(1): 166–173.
- Niu, B., Wang, X., Xu, Z., 2023. Application of machine learning to guide efficient metal leaching from spent lithium-ion batteries and comprehensively reveal the process parameter influences. *Journal of Cleaner Production*, 410: 137188.
- Yu, L., Bai, Y., Belharouak, I., 2024. Recycling of lithium-ion batteries via electrochemical recovery: a mini-review. *Batteries*, 10(10): 337.