

Evaluation statistique et étude de la lixiviation du rejet de flottation d'un minéral cuprocobaltifère: Apports de la méthode de Taguchi et Analyse de la variance.

Mbuya B. I^{1,2*} et Tshimombo A. M.^{2,3}

Abstract

Paper History

Received:
August 10, 2016

Revised:
November 7, 2016

Accepted:
January 20, 2017

Published online :
March 27, 2017

Keywords:

Taguchi method, ANOVA,
leaching, tailing,
flotation

Statistical evaluation and leaching study of a flotation tailing Cu – Co ore: Contributions of Taguchi method and Analysis of variance.

The Taguchi and analysis of variance (ANOVA) methods were used to help interpreting the results of a leaching test on a Cu-Co flotation tailing grading 1.56% Cu and 0.39% Co. The aim of the study was to assess metallurgically the parameters influencing the leaching behavior of the tailing. An orthogonal array L25 (5⁵) (5 parameters with 5 levels) was used for conducting optimization tests in order to assess the initial acidity effect (A = 25, 50, 75, 100 and 125 g/L), the time (T = 30, 60, 90, 120 and 150 min), the temperature (T = 25, 35, 45, 55 and 65 ° C), the density of the pulp (S/L = 10, 15, 20, 25 and 30% solids) and the ferrous iron concentration (Conc. Fe²⁺ = 0.1, 2.5, 5 and 7.5 g/L) on the solubilization yields of metals. Under optimal conditions (A: 50 g / L, t 60 min, T: 45 ° C, S / L: 15% solids and Fe²⁺ conc. 2.5 g / L) for copper and (A: 100 g/L, t 60 min, T: 65 ° C, S/L: 15% solids and Fe²⁺ conc. 2.5 g / L) for cobalt; the experimental results of the selective leaching showed that the solubilization yields were 96.58 and 97.47% for Cu and Co, respectively.

¹Département de Métallurgie, Faculté Polytechnique, Université de Likasi, B.P. 1946, Likasi, Katanga, R.D. Congo

²Département de Métallurgie, Faculté Polytechnique, Université de Lubumbashi, B.P. 1825, Lubumbashi, Katanga, R.D. Congo

³Section Mécanique, Institut Supérieur de Techniques Appliquées, Avenue de l'Aérodrome, N° 3930, Barumbu, B.P. 6593 KINSHASA 31, Kinshasa, R.D. Congo

* To whom correspondence should be addressed: mbuya.bienvenu@gmail.com; Tel: (+243) 998 745 075

INTRODUCTION

Les conditions opératoires jouent un rôle crucial dans le comportement des métaux de valeur lors de leur dissolution [PAREUIL, 2009]. Un grand nombre de paramètres est susceptible d'influencer le comportement de lixiviation d'un rejet. La composition chimique du rejet et de la solution de lixiviation, ratio liquide/solide (L/S), la durée de lixiviation, le pH et la taille des grains du matériau, sont les facteurs les plus importants [PESTRE, 2007 et PEYRONNARD, 2008]. Dans ce travail, deux approches sont envisagées pour évaluer le comportement à la lixiviation de notre rejet: la méthode de Taguchi et l'analyse de la variance

(ANOVA). Toutes ces deux méthodes sont basées sur les plans d'expériences.

Les plans d'expériences permettent d'organiser au mieux les essais qui accompagnent une recherche scientifique ou des études industrielles [GOUZY, 2006]. A partir du moment où l'on recherche le lien existant entre une grandeur d'intérêt, exemple du rendement de mise en solution des métaux de valeur, et des variables opératoires, température, agitation, pH, Eh, concentration des réactifs,..., les plans d'expériences sont les plus indiqués [PHADKE, 1998 et GOUZY, 1990]. Cependant, la nature de ce lien reste mathématique car les renseignements obtenus ne fournissent aucune

lumière sur les phénomènes qui gouvernent le processus de lixiviation. La nécessité de comprendre le comportement à la lixiviation de notre rejet nous conduira à prendre en considération les concepts avancés des méthodes d'analyse statistiques : méthode de Taguchi et l'analyse de la variance.

La méthodologie de Taguchi et l'analyse de la variance sont les deux outils statistiques qui seront utilisés en considérant un plan d'expériences orthogonal L25(5⁵). La méthodologie de Taguchi est une approche simple et systématique qui a été utilisée dans beaucoup de travaux pour déterminer et optimiser les paramètres importants affectant un procédé [YANG *et al.*, 1998; MAHAPATA *et al.*, 2004; SAHIN, 2005; DOBRZANSKI *et al.*, 2007; KAMYABI-GOL *et al.*, 2009; DEMIRCI *et al.*, 2010; ZHANG *et al.*, 2010; LLYAS *et al.*, 2010]. La détermination des conditions optimales de lixiviation en utilisant la méthode de Taguchi a été étudiée dans plusieurs travaux antérieurs [NKULU, 2012; GUO *et al.*, 2010; LLYAS *et al.*, 2010; SAFARZADEH *et al.*, 2007].

Les avantages reconnus à cette méthode sont l'optimisation des paramètres en réduisant le nombre d'essais, un gain en temps et un minimum des coûts [PHADKE, 1988]. L'analyse de la variance est une méthode statistique complémentaire à la méthode de Taguchi permettant de déterminer l'importance relative de chaque paramètre [HVALEC *et al.*, 2004].

La dissolution du cuivre et du cobalt s'effectue suivant les réactions ci – après [HABASHI, 1970, BLAZY, 1970; VENKATACHALAM, 1998 et PHILIBERT *et al.*, 2002] :



La lixiviation du cuivre se fait en présence de l'acide sulfurique seul tandis que celle du cobalt se fait en présence d'un réducteur, sulfate ferreux, car la lixiviation des oxydes supérieures tels que Co₂O₃ requiert la présence d'un réducteur [PHILIBERT *et al.*, 2002; BLAZY, 2003] d'une part et, d'autre part la minéralisation la plus importante du cobalt en République Démocratique du Congo est sous forme d'hétérogénite [ALVAYAI, 2006].

Etant donné les similitudes d'approches observées dans l'analyse des résultats expérimentaux par les deux méthodes statistiques exploitées dans ce travail, l'objectif de cette étude est d'apporter une lumière sur les phénomènes impliqués dans la lixiviation du rejet en utilisant la méthode de Taguchi et l'analyse de la variance.

MATERIEL ET METHODES

Matériels et méthodes

L'échantillon étudié est un rejet obtenu par flottation à la mousse. Ce rejet est sous forme de pulpe dont la densité avoisine 1300 g/L. Les pulpes recueillies ont été décantées, siphonnées et séchées à l'étuve à 100 °C pendant 48 heures. A l'aide du broyeur à cylindre, l'échantillon a été broyé puis tamisé au vibrotamiseur de 10 mesh de maille. Les refus ont été recirculés au broyeur, tandis que les passants ont subi une série d'homogénéisations. Enfin, ils ont été soumis à un quartage pour diminuer le volume de l'échantillon tout en conservant sa représentativité.

Le concentrateur traite un minerai titrant 2,15% Cu et 0,39% Co. Il produit un concentré titrant 10-12% Cu et 0,60% Co avec des rendements de récupération de 55% pour le cuivre et 31% pour le cobalt.

L'analyse granulométrique a été réalisée en utilisant une série de tamis ASTM de dimensions comprises entre 300 et 38 µm. Vu la finesse des grains, le tamisage humide a été préféré au tamisage à sec. Toutes les fractions obtenues ont été séchées à l'étuve, pesées et les principaux éléments ont été analysés afin de déterminer la répartition dans les différentes tranches granulométriques. Neuf tranches granulométriques ont été constituées et analysées. Les résultats montrent que la grande partie de l'alimentation, soit 41,66 %, se trouve dans la fraction fine, c'est-à-dire inférieure à 38 microns. Il a été également observé que cette même fraction est la plus riche en Cu et en Co. En effet, elle renferme 2,21 % Cu et 0,31% Co. Les essais de lixiviation ont été menés dans une première phase par la méthode classique dite méthode univariée consistant à maintenir constant tous les paramètres en variant un seul paramètre. A partir de ces essais préliminaires, le plan d'expériences a été choisi ainsi que les niveaux des paramètres retenus.

Plan d'expériences

Méthode de Taguchi

Pour la conduite des tests de lixiviation en cuvée agitée, les paramètres suivants ont été retenus : acidité

initiale (A), Temps (B), Température (C), Densité pulpe (D) et la concentration de Fe^{2+} (E). Le **Tableau 1** reprend les paramètres et leurs niveaux.

Tableau 1. Paramètres expérimentaux et valeurs quantitatives de chaque niveau

Noms et codification des Paramètres	Niveaux				
	1	2	3	4	5
Acidité de départ (g/L) - A	25	50	75	100	125
Temps (min) - B	30	60	90	120	150
Température ($^{\circ}\text{C}$) - C	25	35	45	55	65
Densité pulpe (%) - D	10	15	20	25	30
Quantité Fe II (g/L) - E	0	1	2,5	5	7,5

La matrice orthogonale du plan fractionnaire a été choisie pour la conduite du plan d'expérience. La matrice orthogonale L25(5^5) laquelle comprend 5 paramètres avec chacun 5 niveaux de variation a été choisie pour de raison de compatibilité avec les conditions opératoires choisies. Dans la méthode proposée, les interactions réciproques possibles entre facteurs ne sont pas prises en considération dans la matrice orthogonale.

L'ordre des essais a été obtenu en insérant les paramètres dans les colonnes de la matrice orthogonale L25(5^5) choisie comme plan d'expériences. Le **Tableau 2** est une matrice orthogonale L25(5^5), une table d'intégration de nombres entiers dont les colonnes représentent les niveaux des facteurs. Chaque rangée représente un essai qui est en fait un ensemble des niveaux spécifiques de chaque facteur [NKULU, 2012 ; SAFARZADEH *et al.*, 2008].

La philosophie de l'approche conception robuste selon Taguchi consiste à minimiser l'impact des facteurs parasites en identifiant la combinaison optimale des paramètres contrôlés pour rendre le processus plus robuste. Cela signifie qu'il faut optimiser conjointement le résultat moyen et la dispersion du résultat autour de la moyenne [DROESBEKE, 1997]. La méthode Taguchi prend en compte la dispersion des résultats en intégrant à l'analyse une information supplémentaire : le ratio signal/bruit.

La méthode de Taguchi utilise la fonction de perte de qualité pour mesurer la variabilité des caractéristiques de performance autour de la valeur cible robustesse. La valeur de la fonction de perte est en plus transformée en ratio Signal-Bruit (Signal-Noise ratio : S/N) qui est un

indicateur de performance [BERNARD, 2000]. Le calcul de cet indicateur découle directement de la fonction de perte de qualité sous la forme [SAFARZADEH *et al.*, 2007 ; GOUZY, 1996] :

$$\text{S/B} = 10 \cdot \log(L) \quad (6)$$

Où L est la perte de qualité et S/B est exprimé en dB (décibel).

Tableau 2. Matrice orthogonale L25(5^5) appliquée à la lixiviation

Nº de l'essai	Paramètres et leurs niveaux				
	A	B	C	D	E
1	1	1	1	1	1
2	1	2	2	2	2
3	1	3	3	3	3
4	1	4	4	4	4
5	1	5	5	5	5
6	2	1	2	3	4
7	2	2	3	4	5
8	2	3	4	5	1
9	2	4	5	1	2
10	2	5	1	2	3
11	3	1	3	5	2
12	3	2	4	1	3
13	3	3	5	2	4
14	3	4	1	3	5
15	3	5	2	4	1
16	4	1	4	2	5
17	4	2	5	3	1
18	4	3	1	4	2
19	4	4	2	5	3
20	4	5	3	1	4
21	5	1	5	4	3
22	5	2	1	5	4
23	5	3	2	1	5
24	5	4	3	2	1
25	5	5	4	3	2

Généralement, il y a 3 catégories caractéristiques de performance dans l'analyse du ratio S/B : le minimum est meilleur (minimiser), le maximum est le meilleur (maximiser) et la cible est la meilleur (valeur cible) [PHADKE, 1998].

Par rapport aux catégories caractéristiques de performance, le plus grand ratio S/B correspond à la meilleure performance. Par conséquent, le niveau optimum d'un paramètre est celui qui a le plus grand

ratio S/B [DEMIRCI, 2011]. Les caractéristiques de performance sont évaluées par les expressions suivantes [DROESBEKE, 1997 et YUAN, 2009] :

Le maximum est le meilleur (higher the better) :

$$SB_L = -10 \log \left(\frac{1}{n} \sum \frac{1}{Y_i^2} \right) \quad (7)$$

Le minimum est le meilleur (lower the best) :

$$SB_S = -10 \log \left(\frac{1}{n} \sum Y_i^2 \right) \quad (8)$$

où SBL et SBS sont des caractéristiques de performance, n le nombre de répétition de la performance pour la combinaison expérimentale et Y_i^2 la valeur de la performance de $i^{\text{ème}}$ expérience.

Dans la méthode de Taguchi, l'expérience correspondant aux conditions optimums trouvées peut ou ne pas être faite durant la phase d'expérimentation mais la valeur de la performance de l'expérience peut être prédictée par l'utilisation de la fonction de prédiction suivante [SAFARZADEH *et al.*, 2007] :

$$Y_{\text{Opt}} = \frac{T}{n} + \left(A_i - \frac{T}{n} \right) + \left(B_j - \frac{T}{n} \right) + \dots \quad (9)$$

où n est le nombre total d'essais, T la somme de toutes les réponses des essais et A_i, B_j, \dots la moyenne des réponses du niveau i, j, ...

Analyse de la variance

La seconde approche statistique que nous utilisons dans cette étude est l'analyse de la variance (ANOVA). Contrairement à ce que laisse penser son nom, l'analyse de variance n'étudie pas les différences de variances entre populations mais les différences de moyenne [VIVIER, 2002]. Cette méthode doit son nom au fait qu'elle utilise des mesures de variance afin de juger du caractère significatif ou non, c'est-à-dire de la significativité des différences de moyenne mesurées entre populations [RABIER, 2007].

D'une façon générale, en matière de régression, le principe de l'analyse de la variance est de subdiviser la variation totale en une composante factorielle relative à l'équation de régression ou au modèle utilisé, et une composante résiduelle, la première devant être testée par rapport à la deuxième. Les composantes factorielle et résiduelle seront mathématiquement représentées

par des carrés moyens, c'est-à-dire des variances [BERNARD, 2005].

L'intérêt de l'analyse de la variance est de pouvoir tester de manière absolue l'influence des facteurs sur les variations d'une réponse donnée. L'analyse de la variance permettra de déterminer statistiquement : les paramètres les plus significatifs, la contribution et le degré de contribution de chaque facteur sur la dissolution des métaux.

RESULTATS

L'analyse chimique du rejet a été réalisée par Spectrométrie d'Absorption Atomique et par Spectrométrie d'Emission Atomique utilisant un Plasma à Couplage Inductif (ICP-AES). Les résultats de l'analyse chimique de ce rejet sont repris dans le Tableau 3.

Tableau 3. Composition chimique des rejets

	Ech 1	Ech 2	Moyenne
Cu _{total} (%)	1,56	1,55	1,56
Cu _{oxyde} (%)	1,27	1,14	1,21
Co _{total} (%)	0,33	0,25	0,29
Co _{oxyde} (%)	0,27	0,23	0,25
Fe _{total} (%)	2,51	2,36	2,44
Mn (%)	0,18	0,14	0,16
Ni (%)	0,01	0,01	0,01
Zn (%)	0,62	0,80	0,71
SiO ₂ (%)	64,97	62,45	63,71
MgO (%)	3,38	6,81	5,1
Al ₂ O ₃ (%)	3,06	3,84	3,45

Les résultats de la caractérisation chimique dans le Tableau 3 montrent que les rejets sont majoritairement des oxydes (78% Cu oxyde et 86 % Co oxyde) et présentent une très faible teneur en sulfure. C'est un rejet riche dont la teneur en cuivre avoisine 1,56%.

Les résultats de l'analyse minéralogique montrent que les minéraux de cuivre sont la malachite (Cu₂CO₃.(OH)₂), en forte proportion, et la chrysocolla (CuSiO₃.2H₂O), en faible proportion. Tandis que ceux du

cobalt sont principalement sous forme d' hétérogénite ($\text{aCo}_0.\text{bCo}_2\text{O}_3$). Outre ces minéraux, étaient également présents la chalcosine (Cu_2S), la limonite ($\text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$) et la pseudomalachite ($\text{Cu}_5(\text{PO}_4)_2(\text{OH}) \cdot \text{H}_2\text{O}$) en très faible proportion. On note aussi la présence de dolomite ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$) et de silice (SiO_2) comme principaux minéraux de la gangue.

Optimisation des paramètres opératoires par la méthode classique

Le choix des niveaux des paramètres étudiés a été fait sur base des essais d'orientation. Les résultats sont repris dans le **Tableau 4** et schématisés aux **Figures 1, 2** et **3**. Ces séries d'essais ont été réalisées par la méthode classique. Ainsi, nous avons maintenu constant les paramètres suivants Agitation = 600 trs/min, Temps = 120 min, Température = 30° C, Densité pulpe 12%. Pour chaque série d'essais, le paramètre étudié a été varié suivant les niveaux mentionnés dans le **Tableau 4**.

Tableau 4. Résultats d'essais d'orientations en variant l'Acidité initiale (Essai n°1), la Densité pulpe (Essai n°2) et la Vitesse d'agitation (Essai n°3) en fonction du rendement de lixiviation du Cu

Essai n° 1		Essai n° 2		Essai n° 3	
Acidité initiale (g/L)	Rend Cu (%)	Densité pulpe (%)	Rend Cu (%)	Vitesse d'agitation (trs/min)	Rend Cu (%)
5	36,20	2	98,37	200	96,24
11	49,68	5	98,03	400	97,72
21	79,28	9	98,01	600	98,07
37	91,06	12	98,00	800	98,07
43	95,48	17	97,83	1000	98,24
85	98,15	29	95,81		

Influence de l'acidité

La **Figure 1** présente les résultats de la variation de l'acidité initiale sur la solubilisation du cuivre.

L'examen de la **Figure 1** montre que le rendement de solubilisation du cuivre augmente avec l'acidité initiale. A ces valeurs d'acidité fixées, les ions cuivrés se trouvent dans leur domaine de stabilité [POURBAIX, 1963], ce qui justifierait cette augmentation du rendement, le choix des niveaux s'orientera vers les valeurs d'acidité de plus en plus élevées.

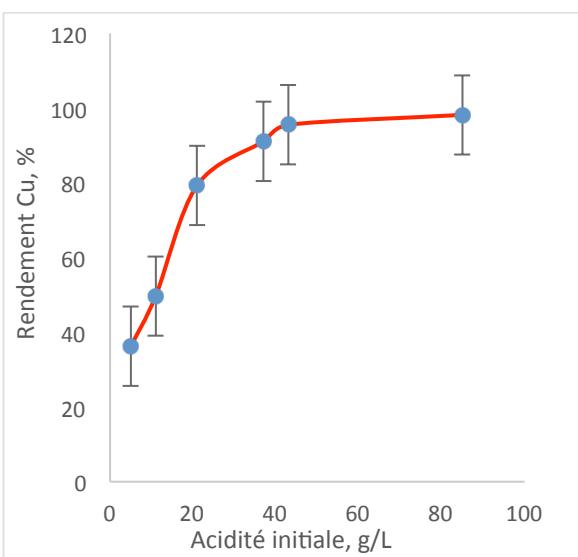


Figure 1. Influence de l'acidité initiale sur le rendement de solubilisation du Cu

Influence de la densité pulpe

La **Figure 2** présente les résultats de la variation de la densité pulpe sur la solubilisation du cuivre.

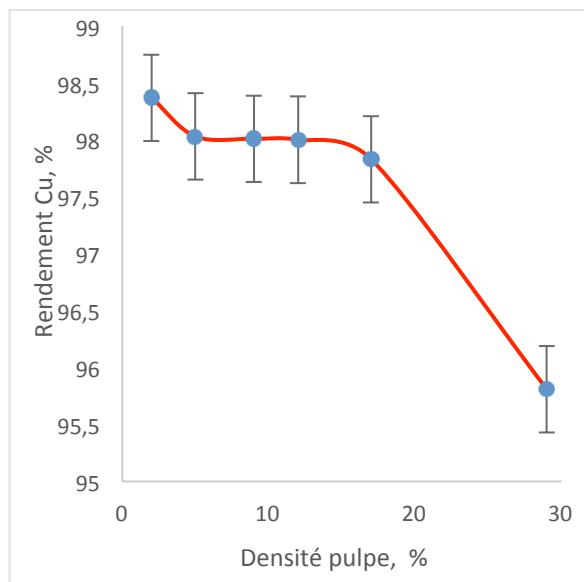


Figure 2. Influence de la densité pulpe sur le rendement de solubilisation du Cu

De la **Figure 2**, on observe une légère diminution du rendement cuivre avec augmentation de la densité pulpe. Cette diminution du rendement serait consécutive à la concentration du réactant qui reste presque constante [BINGOL et CANBAZOGLU, 2004]. L'allure constante et invariante de la courbe montrant l'évolution du rendement de dissolution du cuivre en fonction de la densité pulpe conduit à maintenir le

même intervalle de variation de la densité lors de l'établissement du plan d'expériences de Taguchi.

Influence de l'agitation

La Figure 3 présente les résultats de la variation de la vitesse d'agitation sur la solubilisation du cuivre. La Figure 3 illustre une légère augmentation du rendement Cu avec l'agitation. Le rôle de l'agitation dans la lixiviation est de renouveler la surface réactionnelle qui s'établit entre la particule et la solution lixivante. Le résultat obtenu nous amène à déconsidérer ce paramètre dans l'analyse statistique selon Taguchi.

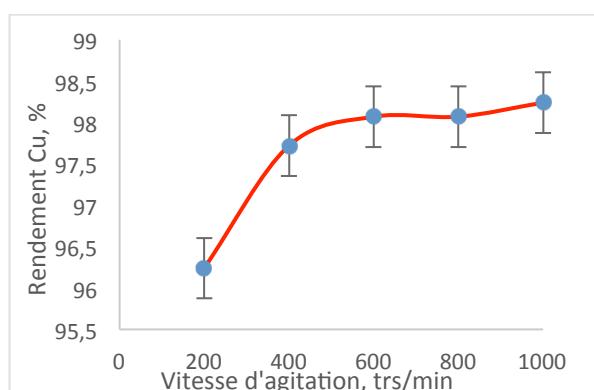


Figure 3. Influence de la vitesse d'agitation sur le rendement de solubilisation du Cu

Tableau 5. Plan d'expérience et résultats expérimentaux de lixiviation

N° L'ESSAI	DE	PARAMETRES ET LEURS NIVEAUX					RENDEMENT OU REPONSE	
		Acidité (g/L)	Temps (min)	T° (°C)	Densité (%Solides)	Qté Fe ²⁺	Cu (%)	Co (%)
1		25	30	25	10	0	91,53	49,04
2		25	60	35	15	1	96,52	87,53
3		25	90	45	20	2,5	95,89	87,39
4		25	120	55	25	5	94,72	87,40
5		25	150	65	30	7,5	92,79	87,10
6		50	30	35	20	5	95,94	87,54
7		50	60	45	25	7,5	97,17	90,28
8		50	90	55	30	0	93,64	57,74
9		50	120	65	10	1	97,83	93,00
10		50	150	25	15	2,5	98,29	95,11
11		75	30	45	30	1	95,98	87,67
12		75	60	55	10	2,5	95,62	90,58
13		75	90	65	15	5	96,54	92,56
14		75	120	25	20	7,5	95,00	88,06
15		75	150	35	25	0	97,12	57,88
16		100	30	55	15	7,5	96,07	90,35
17		100	60	65	20	0	97,75	68,55
18		100	90	25	25	1	95,10	90,65
19		100	120	35	30	2,5	95,19	92,26
20		100	150	45	10	5	96,59	90,24
21		125	30	65	25	2,5	96,57	92,62
22		125	60	25	30	5	95,33	87,45
23		125	90	35	10	7,5	96,12	92,86
24		125	120	45	15	0	96,05	63,63
25		125	150	55	20	1	95,36	92,52

Optimisation des paramètres opératoires par la méthode de plan d'expériences de Taguchi

La table orthogonale L25 (5^5) utilisée comme plan expérimental, le paramétrage des facteurs et leurs valeurs quantitatives correspondantes à chaque niveau, ainsi que l'ordre d'essais ont été donnés au paragraphe 2.

L'ordre des essais a été obtenu en insérant les paramètres dans les colonnes de la matrice orthogonale L25(5^5) choisie comme plan d'expériences du *Tableau 2*. Les résultats ont été obtenus à l'aide du logiciel *Statistica 10*, ils sont repris dans le *Tableau 5*.

Le calcul du ratio SBL a été exécuté pour maximiser la mise en solution du cuivre et du cobalt et une faible dissolution des autres éléments (lixiviation sélective).

La méthode de Taguchi analyse la réponse de chaque essai et la variation correspondante en utilisant le ratio signal – bruit (S/B). Dans le critère d'optimisation choisi, le SBL, la valeur la plus élevée de la métrique fonctionnelle Signal-Bruit (S/B) représente la meilleure performance de la réponse (rendement d'extraction) du système étudié. Le *Tableau 5* donne les moyennes de ratio S/B des facteurs pour chaque niveau de variation.

La *Figure 4* donne les niveaux des paramètres qui optimisent l'extraction du cuivre et du cobalt observée au cours de la lixiviation effectuée conformément au plan d'expériences repris au *Tableau 2*. Le *Tableau 6* reprend les moyennes marginales par niveau des facteurs pour la lixiviation du cuivre et cobalt.

Tableau 6. Moyenne marginale par niveau des facteurs pour la lixiviation du cuivre et cobalt

Niveaux	Paramètres pour le Cuivre				
	A	B	C	D	E
1	39,48766	39,57276	39,55686	39,60135	39,57166
2	39,69588	39,688	39,66141	39,70765	39,65929
3	39,64983	39,59583	39,67588	39,64396	39,67307
4	39,65783	39,62296	39,56153	39,65721	39,62926
5	39,63492	39,64658	39,67044	39,51595	39,59284

Ratio S/B attendu sous conditions optimales	A2=50 g/L	B2=60 min	C3=45 °C	D2=15 % Solides	E3=2,5 g/L
Influence des paramètres	0,20822	0,11524	0,11902	0,1917	0,10141
Interaction entre paramètres Ajustement linéaire	0,03x + 39,55 R ² = 0,26	0,01x + 39,6 R ² = 0,09	-0,02x+39,69 R ² = 0,24	0,01x+39,59 R ² = 0,11	0,0012x+39,62 R ² = 0,0021

Niveaux	Paramètres pour le cobalt				
	A	B	C	D	E
1	37,82276	37,99332	38,05078	38,15734	35,41713
2	38,42387	38,53017	38,31892	38,58548	39,10833
3	38,29471	38,37832	38,39585	38,52307	39,23368
4	38,67892	38,49359	38,32885	38,33469	38,98922
5	38,58472	38,40958	38,71058	38,2044	39,05663

Ratio S/B attendu sous conditions optimales	A4=100 g/L	B2=60 min	C5=65 °C	D2=15 % Solides	E3=2,5 g/L
Influence des paramètres	0,85616	0,53685	0,6598	0,42814	3,81655
Interaction entre paramètres Ajustement linéaire	0,178x+37,827 R ² = 0,705	0,080x+38,122 R ² = 0,344	0,133x+37,96 R ² = 0,795	-0,016x+38,4 R ² = 0,017	0,716x+ 36,2 R ² = 0,472

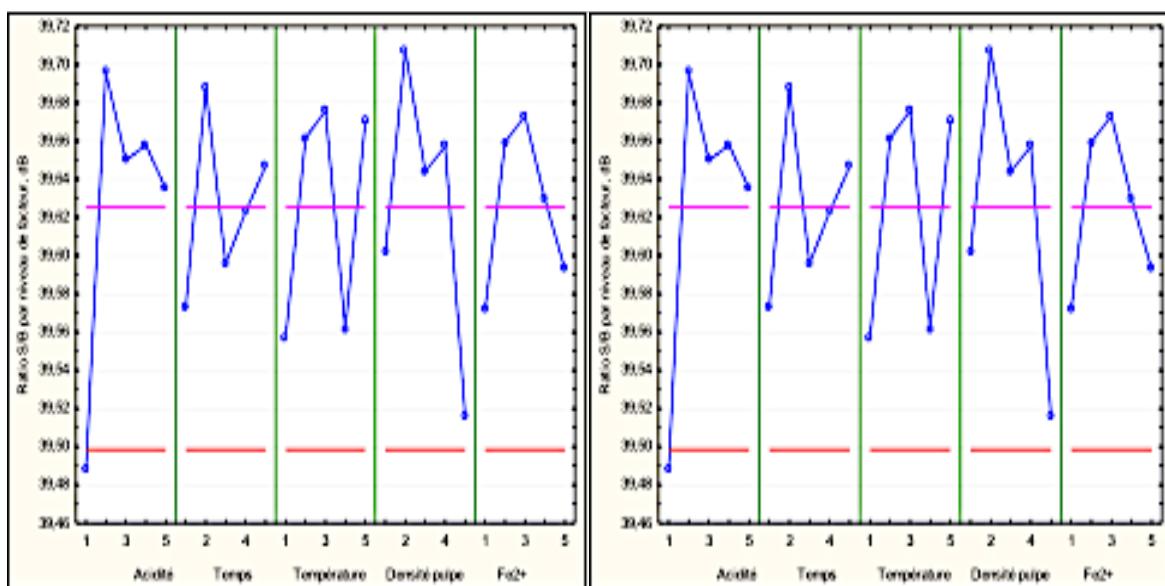


Figure 4. Effet de facteurs contrôlables avec leurs niveaux sur la performance statistique (S/B) pour la lixiviation du cuivre à gauche (4a) et cobalt à droite (4b)

Il ressort de la Figure 4a que l'optimum pour le cuivre correspond aux niveaux A2B2C3D2E3 (les lettres représentent les paramètres et les indices représentent les niveaux. Les valeurs de 50 g/L ; 60 min ; 45 °C ; 15 % solides et 2,5 g/L correspondant respectivement à l'acidité de départ (A), au temps (B), à la température (C), à la densité de la pulpe (D) et à la quantité du fer ferreux (E) sont donc les niveaux de paramètres attendus sous les conditions optimales de lixiviation du cuivre.

Les conditions optimales de lixiviation du cobalt sont données à la Figure 4b. On constate que la

paramétrisation robuste qui donne un optimum d'extraction du cobalt est A4B2C5D2E3 correspondant aux valeurs suivantes : 100 g/L ; 60 min ; 65 °C ; 15 % solides et 2,5 g/L respectivement pour l'acidité de départ, le temps, la température, la densité pulpe et la quantité du fer ferreux.

Les résultats des essais de confirmation effectués dans les conditions optimales et robustes de solubilisation de chaque métal sont repris dans le Tableau 7 qui précise également les caractéristiques hydrométallurgiques de lixiviation.

Tableau 7. Résultats des essais de confirmation effectués dans les conditions optimales

DESIGNATION	CUIVRE			COBALT			CONSOMMATION D'ACIDE			GANGUE	
	Sol.	Rend.	Bilan	Sol.	Rend.	Bilan	Total	Par le Cu	Par le Co		
	kg/ts	%	%	kg/ts	%	%	kg/ts	kg/t-Cu	kg/t-Co	kg/ts	
Confirm. Cu	14,97	95,98	101,45	2,94	89,15	109,84	116,71	22,92	4,48	90,44	893,87
Confirm. Co	15,25	97,74	100,66	3,12	94,66	84,13	123,20	23,20	5,19	49,31	895,20

Du Tableau 7, on remarque que les rendements de solubilisation du cuivre et du cobalt sont respectivement de 95,97 % et 97,74 % et leurs consommations totales d'acide relatives sont 116,71 kg/ts et 123,20 kg/ts dans les conditions optimales. Le modèle prédictif appliqué dans les conditions optimales

de lixiviation du cuivre et du cobalt a donné respectivement un rendement de 96,05 % et 97,98%.

L'analyse de la variance effectuée sur les résultats expérimentaux repris au Tableau 5, Les résultats de l'ANOVA sont donnés dans les Tableaux 8 et 9.

Tableau 8. Analyse de variance du rendement de lixiviation du cuivre

Paramètres (z)	ddl	(fz)	Somme des Carrés (Sz)	Variance (Vz)	F-Exp. (Fz)	Somme Pure (Sz')	Contribution (Pz)
Acidité	4		15,3182	3,8295	2,4399	9,0399	21,84
Temps				Rejeté			
Température	4		8,7815	2,1954	1,3987	2,5033	10,04
Densité pulpe	4		12,4307	3,1077	1,9800	6,1524	16,63
Conc. Fe II				Rejeté			
Résidu	12		18,8347	1,5696	1,00		51,49
Total	24		55,3651	10,7021			100

$F(4,12) = 3,26$ (à 95% de confiance)

Tableau 9. Analyse de variance du rendement de lixiviation du cobalt

Paramètres (z)	ddl	(fz)	Somme des Carrés (Sz)	Variance (Vz)	F-Exp. (Fz)	Somme Pure (Sz')	Contribution (Pz)
Acidité	4		143,1502	35,7876	4,0733	108,0067	2,62
Temps	4		42,1187	10,5297	1,1985	6,9751	0,17
Température	4		58,3041	14,5760	1,6590	23,1606	0,56
Densité pulpe	4		36,2130	9,05325	1,0304	1,0695	0,03
Conc. Fe II	4		3809,34	952,335	108,39	3774,20	91,51
Résidu	4		35,1435	8,78588	1,00		5,11
Total	24		4124,27	1031,067			100

$F(4,4) = 6,39$ (à 95% de confiance)

Les résultats du *Tableau 8* relatifs à l'analyse de variance pour la lixiviation du cuivre montrent que le facteur $F(4,12)$ calculé et confirmé par le logiciel *Statistica* utilisé, est, pour l'acidité de départ, supérieur au $F(3,26)$ critique lu dans les tables de *Ficher-Senedor*. De ce fait, l'acidité de départ est le paramètre le plus significatif. Par ordre d'importance, on constate donc que l'acidité de départ contribue à 21,84% suivi de la densité pulpe avec 16,63% puis de la température avec 10,04% sur le rendement de lixiviation du cuivre.

Les résultats de l'analyse de la variance pour la lixiviation du cobalt sont donnés dans le *Tableau 9*. On constate que la concentration en Fe II, dont le facteur F expérimental (108,39) est largement supérieur à celui des tables (6,39), est le paramètre le plus significatif. La valeur de la probabilité critique de la concentration en Fe II associée à F est de 0,00029, ceci correspond à la plus petite valeur et donc, au paramètre le plus significatif. Les contributions des paramètres sont de 91,51 et 2,62% respectivement pour la concentration en Fe II et l'acidité de départ.

DISCUSSION

Deux différences majeures sont constatées dans les processus de mise en solution du cuivre et du cobalt. En effet, les valeurs de 50 g/L pour l'acidité de départ et 45 °C pour la température ont été obtenues pour le cuivre tandis que celles de 100 g/L pour l'acidité de départ et 65 °C pour la température sont obtenues pour le cobalt. Ceci amène, au sens d'analyse statistique, à envisager l'hypothèse selon laquelle les phénomènes qui gouvernent les processus de lixiviation de ces deux métaux seraient différents.

Cette hypothèse semble se confirmer avec les résultats obtenus dans les *Tableaux 8 et 9* où la taille des effets des paramètres, calculée dans le *Tableau 5*, sur la solubilisation du cuivre et du cobalt montre que l'acidité ($\Delta = 0,20882$) et la concentration des ions ferreux ($\Delta=3,81655$) sont les paramètres influents. Par ailleurs, l'analyse de la *Figure 5*, tracée à partir des valeurs de la métrique fonctionne SB reprises dans le *Tableau 6*, montre la présence des points extrêmes et atypiques pour l'acidité et la température. Une reparamétrisation de ces deux paramètres en vue

d'éliminer ces points considérés aberrants a été envisagée mais les résultats obtenus n'ont pas impacté les rendements de solubilisation obtenus. Donc, ces

points considérés atypiques et/ou extrêmes, au sens d'analyse statistique, sont en harmonie avec les résultats obtenus.

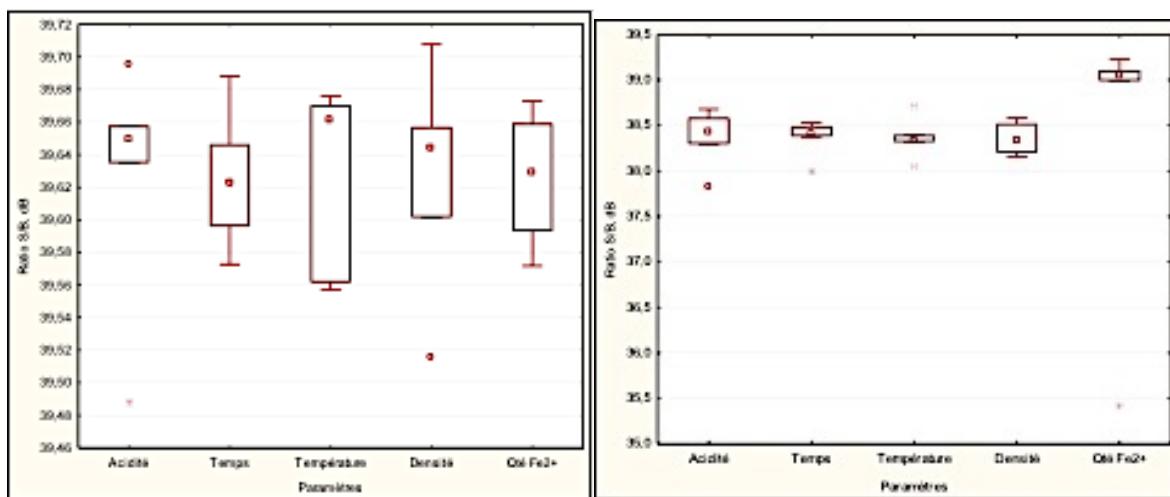


Figure 5. Boites à moustaches des résultats des essais d'optimisation selon les plans d'expériences L25(5⁵) (□ Médiane, □ 25%-75%, □ Etendue hors-atypiques, □ Points atypiques, □ Extrêmes, □ Médiante).

CONCLUSION

La méthode de Taguchi et l'analyse de la variance ont été utilisées pour aider l'interprétation des résultats de lixiviation d'un rejet de flottation en vue d'élucider les phénomènes impliqués dans le processus de mise en solution d'un rejet cuprocobaltifère. L'analyse des résultats suivants les deux approches statistiques a montré que le pH et la concentration des ions ferreux sont les deux paramètres influents selon la méthode de Taguchi et significatifs au sens de la l'analyse de la variance avec 21,84 et 91,75% de contribution pour le cuivre et le cobalt respectivement. Ces résultats permettent de postuler que la mise en solution du Cu dépendrait de la diffusion des ions H⁺ et celle du Co des ions Fe²⁺ à travers les couches résiduelles.

RESUME

Les méthodes de Taguchi et d'analyse de la variance (ANOVA) ont été utilisées pour interpréter les résultats d'un test de lixiviation effectué sur un rejet cuprocobaltifère titrant 1,56% Cu et 0,39% Co. Le but était d'évaluer métallurgiquement les paramètres influençant le comportement de ce rejet durant la lixiviation. Une matrice orthogonale L25(5⁵) (5 paramètres avec 5 niveaux) a été utilisée pour la conduite des essais d'optimisation en vue d'évaluer l'effet de l'acidité de départ (A = 25, 50, 75, 100 et 125 g/L), du temps de lixiviation (t = 30, 60, 90, 120 et 150 min.), de la température (T = 25, 35, 45, 55 et 65 °C), de la densité de la pulpe (S/L = 10, 15, 20, 25 et 30 % solides) et de la concentration en fer ferreux (Conc. Fe²⁺ = 0 ; 1 ; 2,5 ; 5 et 7,5 g/L) sur la solubilisation des métaux. Les résultats expérimentaux de la lixiviation sélective ont montré que

sous les conditions optimales (A : 50 g/L, t : 60 min, T : 45 °C, S/L : 15 % solides et Conc. Fe²⁺ : 2,5 g/L) pour le cuivre et (A : 100 g/L, t : 60 min, T : 65 °C, S/L : 15 % solides et Conc. Fe²⁺ : 2,5 g/L) pour le cobalt, les rendements de solubilisation étaient respectivement de 96,58 % et 97,47%. L'analyse des résultats suivants les deux approches statistiques a montré que le pH et la concentration des ions ferreux étaient les deux paramètres influents et significatifs, respectivement pour le Cu et le Co.

Mots clés : méthode de Taguchi, ANOVA, lixiviation, rejet de flottation.

REFERENCES ET NOTES

- ALVAYAI C. [2006]. Traitement hydrométallurgique des minerais du Katanga, Mémoire de diplôme d'études approfondies, GEOMAC, Université de Liège.
- BERNARD C. [2000]. Conception robuste : Les concepts et la méthodologie de Taguchi dans le design de produits, École Polytechnique de Montréal et Génistat Conseils Inc.
- BERNARD C. [2005]. Modèles d'analyses de la variance avec Statistica, Génistat Conseils Inc.
- BINGOL D. et CANBAZOGLU M. [2004]. Dissolution kinetics of malachite in sulphuric acid, *Hydrometallurgy* 72 :159-165, Elsevier.
- BLAZY P. [1979]. La métallurgie extractive des métaux non ferreux, Société de l'industrie minérale, Saint-Etienne.
- BLAZY P., et JDILEL-AID [2003]. Hydrométallurgie du cuivre, Technique de l'ingénieur (M2 242).
- DEMIRC M.T., SAMANCI A., TARAKÇIOGLU N., ASILTIRK I. [2011]. Optimisation of fatigue life parameters with Taguchi method, 6th International Advanced Technologies Symposium (IATS'11), 16-18, Elazig, Turkey, pp 453- 456.
- DOBROZANSKI L.A., DOMAGALA J., SILVA J.F. [2007] Application of Taguchi method in the optimisation of filament winding of thermoplastic composites, *Archives of Materials Science and Engineering*, 3:133-140.

- DROESBEKE J.J., FINE J., ,SAPORTA G.** [1997]. Plans d'expériences, Application à l'entreprise", Technip, Ed Paris.
- GOUPY J.** [1996]. La méthode des plans d'expériences – Optimisation du choix des essais et de l'interprétation des résultats, Ed. Dunod, Paris
- GOUPY J.** [2006]. Les plans d'expériences, *Revue Modulad*, 34 : 74-116
- GOUPY J.L.** [1990]. Etude comparative de divers plans d'expériences, Révue de statistique appliquée, Tome 38, p 5-44.
- HABASHI,** [1970]. Principles of extractive metallurgy. Volume 2 hydrometallurgy, Edition Gordon and brench, London.
- HVALEC M., GORSEK A. et GLAVIC P.** [2004] Experimental design of crystallization processes using Taguchi method, *Acta Chim. Solvenia*, 51 : 245- 256.
- KAMYABI-GOL A., ZEBARJAD S.M., SAJJADI S. A** [2009].Fabrication of NiO/SiO₂ nanocomposites using sol-gel method and optimization of gelation time using Taguchi robust design method, *Colloids and Surfaces A*, 336 : 69-74.
- NKULU G.** [2012]. Biolixivation de la carrolite – Applications aux minerais sulfurés polymétalliques de l'Arc Cuprifère du Katanga en République Démocratique du Congo (RDC): Cas des minerais de la mine de Kamoya/Kambove, Thèse de Doctorat, Université de Liège, Liège, Belgique.
- PAREUIL P.** [2009]. Etude du comportement à la lixiviation d'un laitier manganifère issu de la valorisation des piles alcalines et salines, Université de Limoges, Thèse de doctorat.
- PESTRE C.** [2007]. Evaluation du rôle des activités microbiennes dans le devenir de déchets essentiellement minéraux en fonction du scénario de valorisation ou de stockage, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, Thèse de doctorat.
- PEYRONNARD O.** [2008]. Apports méthodologiques pour la modélisation du comportement à la lixiviation de résidus minéraux. Application aux solidifiats de boues d'hydroxydes métalliques. Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, Thèse de doctorat.
- PHADKE M.S.** [1998]. Quality Engineering Using Design of Experiment, Quality Control, Robust Design and Taguchi Method, California, Warsworth Books.
- PHILIBERT J., VIGNES A., BRECET Y., et CAMBRAGE P.** [2002]. Métallurgie du minerai au Matériau (cours et exercices corrigés), Dunod, Paris.
- POURBAIX M.**[]. Atlas d'équilibre thermodynamique à 25 °C, Gauthier Villars et Cie, Paris
- RABIER F.** [2007]. Modélisation par la méthode des plans d'expériences du comportement dynamique d'un module IGBT utilisé en traction ferroviaire, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, Paris.
- SAFARZADEH M. S., MORADKHANI M., MEHDI O. I., NEGAR H. G.** [2007]. Determination of the optimum conditions for the leaching of Cd–Ni residues from electrolytic zinc plant using statistical design of experiments, Elsevier, *Separation and Purification Technology* 58 : 367–376
- SAHIN Y.**[2005]. Optimization of testing parameters on the wear behaviour of metal matrix composites based on the Taguchi method, *Materials Science and Engineering A*, 408 : 1-8.
- VENKATACHALA M.S.** [1998]. Hydrometallurgy, Narusa, publishing house, New Delli;, Bombay, London, 318p
- VIVIER S.** [2002]. Stratégie d'optimisation par la méthode des plans d'expériences et application aux dispositifs électrotechniques modélisés par éléments finis, thèse de doctorat, Université des sciences et technologie de Lille.
- YANG W.H., TARNG Y.S.** [1998]. Design optimization of cutting parameters for turning operations based on the Taguchi method, *Journal of Material Process Technology*, 84 : 123-129.



(cc) BY-SA

This work is in open access, licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License. The images or other third party material in this article are included in the article's Creative Commons license, unless indicated otherwise in the credit line; if the material is not included under the Creative Commons license, users will need to obtain permission from the license holder to reproduce the material. To view a copy of this license, visit <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>