

APPLICATION DU PROCÉDE JAROSITE POUR L'ÉLIMINATION DU FER CONTENU DANS LES RESIDUS DE ZINC DE L'UNITE D'ELECTROLYSE DE GHAZAOUET (TLEMEN)

Soumis le 07/12/1999 – Accepté le 17/06/2000

Résumé

L'objet de cette étude consiste en l'élimination du fer sous forme de jarosite. Les différents types de jarosites élaborées à base de Na^+ , NH_4^+ et K^+ ont été identifiées par DRX. Les influences de la concentration de l'agent de précipitation et du temps de contact ont été examinées. Le procédé jarosite développé a été appliqué sur des solutions de lixiviation de zinc de Ghazaouet pour l'élimination du fer.

Mots clés: fer, jarosite, agent de précipitation, lixiviation.

Abstract

The aim of the study is to precipitate iron in jarosite form. Different type of jarosite have been prepared and characterised by DRX method. The influence of the precipitation agent concentration and contact time on jarosite process have been also studied. The jarosite process developed has been applied to remove iron contained in leaching solution of zinc residue.

Key words: Iron, jarosite, DRX, residue, leaching.

S. CHEGROUCHE ⁽¹⁾

A. BENSMALI ⁽²⁾

A. AKNOUN ⁽¹⁾

A. MELLAH ⁽¹⁾

⁽¹⁾ Centre de Recherche Nucléaire
Commissariat à l'Energie Atomique
B.P 43 Draria, G.G. Alger (Algérie)

⁽²⁾ Institut de Chimie Industrielle
USTHB Alger (Algérie)

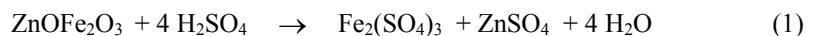
Le procédé jarosite qui consiste en la précipitation du fer est largement utilisé dans le domaine de l'hydrometallurgie du zinc [1].

Des travaux de recherche ont montré que le procédé jarosite dispose d'avantages dont les principaux sont mentionnés ci-après :

- La précipitation du fer est opérée à une température inférieure à 100°C et une pression égale à 1 atm.

- La précipitation des deux phases s'effectue par une simple filtration.

Les résidus de zinc issus de la lixiviation du minerai de zinc (ZnS) de l'unité d'électrolyse de Ghazaouet (Tlemcen) renferment une quantité importante de fer combiné avec le zinc. Les principaux constituants sont les silicates de zinc ZnSiO_2 , de ferrites de zinc $\text{ZnO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$ (68%) et d'aluminates de zinc $\text{ZnO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$. Ces phases minéralogiques sont formées au cours de l'étape de grillage des résidus de zinc [2]. Ce procédé est basé sur la précipitation du fer sous forme de $\text{M}_2\text{Fe}_6(\text{OH})_{12}(\text{SO}_4)_4$ avec: $\text{M} = \text{K}^+, \text{NH}_4^+, \text{Na}^+$. Les réactions globales de précipitation du fer à partir des ferrites de zinc sont décrites par :



Dans le présent travail, nous avons d'une part effectué des tests de précipitation du fer sous forme de jarosite, et d'autre part, examiné les principaux paramètres influençant le procédé jarosite. Il s'agit de la nature, la concentration des agents de précipitation et le temps de réaction.

ملخص

الهدف من هذه الدراسة هو ترسيب الحديد على شكل "جاروسيت" و في هذا الصدد فإن أنواع من الجاروسيت قد حضرت بتقنية إنفراج الأشعة السينية "DRX".

كما أن تأثير تركيز معامل الترسيب و زمن الإحتكاك الجاروسيت قد تم دراستهما، و في النهاية تم تطبيقها على محاليل بقايا الزنك لحذف الحديد.

الكلمات الرئيسية: الحديد، الجاروسيت، DRX.

TESTS EXPERIMENTAUX

Procédure de préparation de la jarosite

Les tests de précipitation du fer sous forme de jarosite ont été effectués à partir de solutions de FeSO_4 . Les agents précipitants utilisés sont: K_2SO_4 , $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ et Na_2SO_4 . Les solutions de FeSO_4 et les agents de précipitation sont introduits sous une agitation de 300 tours/ min, dans un bêcher de 150 ml. La température du système est maintenue à 70°C au moyen d'un bain-marie. Les conditions de précipitation du fer sont les suivantes:

- le pH du mélange réactionnel est fixé à 1,5 [3],
 - l'excès de l'acide est neutralisé par LiCO_3 ,
 - la concentration en fer est égale à 1,0 g/l,
 - la concentration des sels alcalins et le temps d'agitation sont variables,
- selon le domaine expérimental consigné dans le tableau 1.

Paramètres	Valeurs minimales	Valeurs maximales
Temps d'agitation (min)	120	300
Masse de K_2SO_4 (g)	0,26	1,03
Masse de Na_2SO_4 (g)	0,20	0,80
Masse de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ (g)	0,19	0,78

Tableau 1: Domaine expérimental de précipitation du fer.

Les valeurs des masses de différents sels ont été déterminées à partir de la réaction (2) en tenant compte de la stœchiométrie de cette réaction.

Après la précipitation du fer et la séparation des deux phases, la concentration résiduelle du fer est déterminée par complexométrie par l'EDTA [4].

Analyse des jarosites

Les jarosites obtenues dans différentes conditions de précipitation sont lavées plusieurs fois avec de l'eau distillée et de l'acétone puis séchées à une température de 110°C. L'identification des jarosites est effectuée par diffraction aux rayons X.

RESULTATS ET DISCUSSIONS

Précipitation du fer

Cas de K_2SO_4

La variation de la masse du fer précipité sous forme de jarosite en fonction de la masse de K_2SO_4 est illustrée par la figure 1.

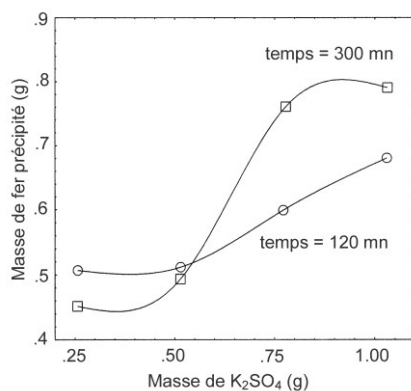


Figure 1: Influence de la masse de K_2SO_4 sur la précipitation du fer.

Nous remarquons que lorsque la masse du sel K_2SO_4 varie de 0,25 à 1,03 g, la masse du fer précipitée augmente de 0,51 à 0,63 g qui représente un taux d'élimination de 63% à $t = 120$ min. La même variation de masse de K_2SO_4 conduit à l'élimination du fer de 78% du fer à $t = 300$ min.

Cas de Na_2SO_4

La variation de la masse du fer précipité sous forme de jarosite en fonction de la variation de la masse de Na_2SO_4 est illustrée par la figure 2.

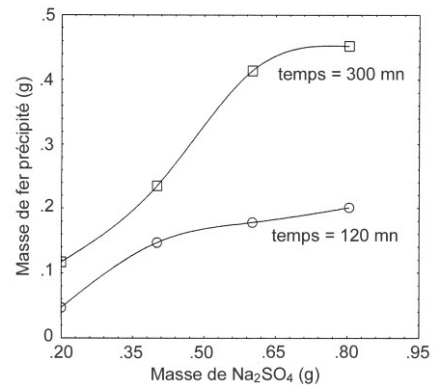


Figure 2: Influence de la masse de Na_2SO_4 sur la précipitation du fer.

Nous remarquons que lorsque la masse du sel Na_2SO_4 varie de 0,20 à 0,80 g, la masse du fer précipitée augmente de 0,05 à 0,20 g qui représente un taux d'élimination de 20% à $t = 120$ min. La même variation de masse de Na_2SO_4 conduit à l'élimination du fer de 45% du fer à $t = 300$ min.

Cas de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$

La variation de la masse du fer précipité sous forme de jarosite en fonction de la variation de la masse $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ est représentée par la figure 3.

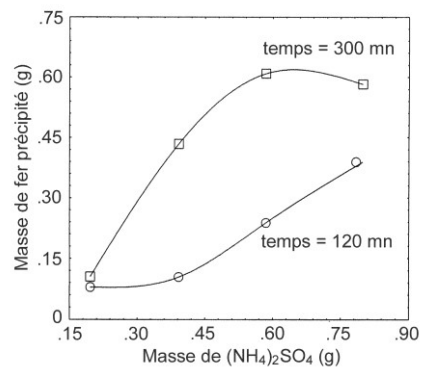


Figure 3: Influence de la masse de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ sur la précipitation du fer.

Nous remarquons que lorsque la masse du sel $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ varie de 0,196 à 0,784 g, la masse du fer précipitée augmente de 0,08 à 0,39 g qui représente un taux d'élimination du fer de 39% à $t = 120$ min. La même variation de masse de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ conduit à l'élimination du fer de 53% du fer à $t = 300$ min.

Caractérisation des jarosites

Les précipités du fer obtenus ont été caractérisés par la méthode de DRX afin d'obtenir le type de jarosite à base de K^+ , Na^+ et NH_4^+ .

Analyse de la jarosite notée J₁

Cette jarosite a été préparée dans les conditions opératoires suivantes: $m_{K_2SO_4} = 1,03$ g et $t = 300$ min.

L'analyse de cette jarosite est consignée dans le tableau 2 et illustrée par la figure 4.

Pics	Jarosite J ₁		Référence 0-261	
	2θ	d, Å	2θ	d, Å
I	17,57	5,0487	17,57	5,0815
II	28,77	3,1042	28,66	3,1154
III	29,12	3,0671	29,05	3,0750
IV	49,91	1,8278	49,83	1,8304

Tableau 2: Analyse de la jarosite J₁ par DRX.

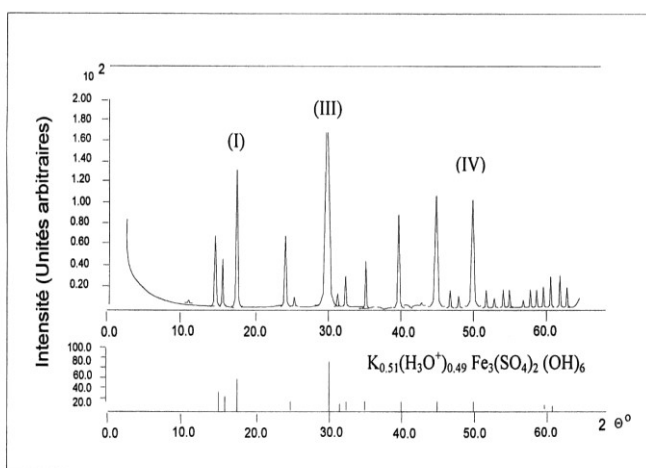
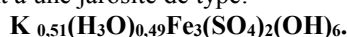


Figure 4: Spectre de diffraction X de la jarosite J₁.

Les pics expérimentaux les plus intenses (I, III et IV) ont été comparés avec la référence standard 0-261 correspondant à une jarosite de type:



Analyse de la jarosite notée J₂

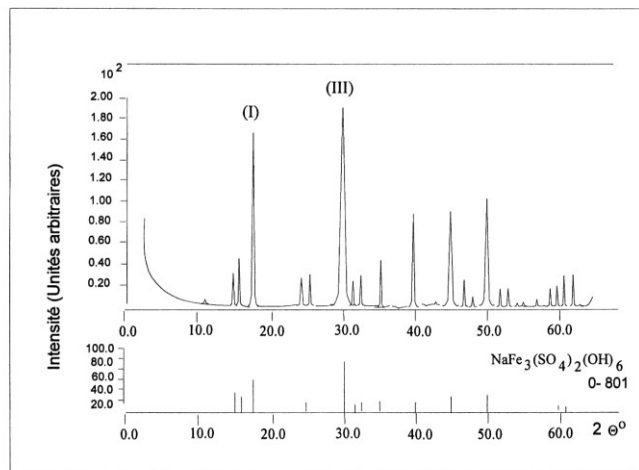
Cette jarosite est élaborée dans les conditions opératoires suivantes: $m_{Na_2SO_4} = 0,81$ g et $t = 300$ min.

L'analyse de cette jarosite est consignée dans le tableau 3 et illustrée par la figure 5.

Pics	Jarosite J ₂		Référence 0-801	
	2θ	d, Å	2θ	d, Å
I	17,75	5,9970	17,50	5,0594
II	28,81	3,0995	28,60	3,1218
III	29,31	3,0446	29,13	3,0666
IV	49,91	1,8278	-	-

Tableau 3: Analyse de la jarosite J₂ par DRX

Les pics expérimentaux les plus intenses (I et III) ont été comparés avec la référence standard 0-801 correspondant à une jarosite de type: $Na_2Fe_3(SO_4)_2(OH)_6$.



Cette jarosite a été préparée dans les conditions opératoires suivantes:

$m_{(NH_4)_2SO_4} = 0,78$ g et $t = 300$ min. L'analyse de cette jarosite est consignée dans le tableau 4 et illustrée par la figure 6.

Pics	Jarosite J ₃		Référence 26-1014	
	2θ	d, Å	2θ	d, Å
I	17,50	5,0650	17,32	5,1216
II	28,79	3,1021	28,76	3,1047
III	29,04	3,0750	-	-
IV	39,09	2,3050	45,66	1,9874
V	45,85	1,9799	49,79	1,8319

Tableau 4: Analyse de la jarosite J₃ par DRX.

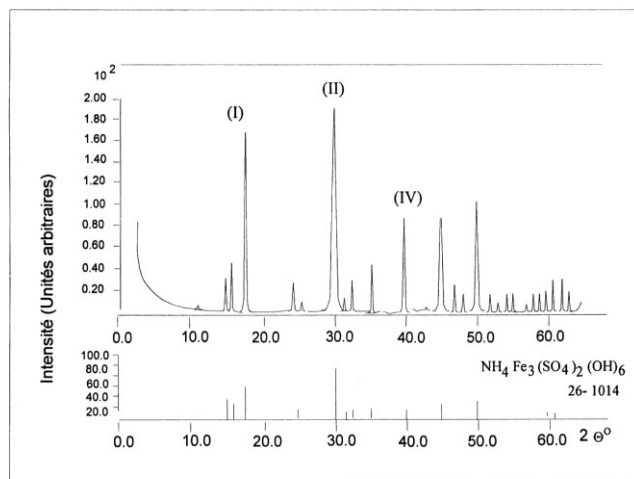
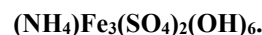


Figure 6: Spectre de diffraction X de la jarosite J₃.

Les pics expérimentaux les plus intenses (I, II et IV) ont été comparés avec la référence standard 26-1014 correspondant à une jarosite de type:



A la lumière des résultats obtenus, nous remarquons que les jarosites élaborées dépendent de la nature de la masse de

précipitation. Les jarosites élaborées dans différentes conditions et caractérisées par DRX sont conformes aux références utilisées.

Application du procédé jarosite

Le procédé jarosite développé a été appliqué sur les solutions de lixiviation du zinc pour précipiter le fer. Les principaux constituants des résidus de zinc sont donnés dans le tableau 5 [5].

Eléments	Zn	Fe	Mn	Cd	Pb	Cu
% massique	20,30	19,72	2,09	0,21	6,78	0,43

Tableau 5: Principaux constituants des résidus de zinc.

Les conditions de précipitation utilisées sont les suivantes:

- Agent de précipitation = K_2SO_4 .
- Sa concentration = 1,03 g.
- Temps d'agitation = 300 min.
- Le pH du mélange réactionnel est fixé à 1,5 (mesuré à 25°C).
- L'excès de l'acide est neutralisé par $LiCO_3$.
- La masse de résidus de zinc = 50g lixiviée par H_2SO_4 .

La jarosite notée J4, obtenue dans les conditions mentionnées auparavant, a été analysée par DRX et les pics expérimentaux les plus intenses ont été comparés avec la référence standard 0-261. Les résultats sont regroupés dans le tableau 6.

Jarosite J4		Référence 0-261	
2θ	d, Å	2θ	d, Å
17,53	5,0592	17,57	5,0815
28,79	3,1021	28,66	3,1154
29,10	3,0692	29,05	3,0750
50,00	1,8249	49,83	1,8304

Tableau 6: Analyse de la jarosite J4 par DRX.

Les pics expérimentaux ont été comparés avec la référence standard 0-261 correspondant à une jarosite de type $K_{0,51}(H_3O)_{0,49}Fe_3(SO_4)_2(OH)_6$ et le rendement d'élimination du fer sous forme de jarosite est de 80 %.

CONCLUSION

La présente étude nous a permis de tirer les conclusions suivantes:

- Comme cela était déjà prévu et au vu des résultats obtenus de précipitation du fer à partir des solutions de lixiviation de zinc, le sel K_2SO_4 est retenu comme agent de précipitation comparativement aux autres agents Na_2SO_4 et $(NH_4)_2SO_4$.
- Les différents types de jarosites élaborés dans différentes conditions et caractérisées par DRX répondent aux jarosites de références utilisées.
- Le procédé jarosite appliqué sur les solutions de lixiviation de zinc a permis l'élimination de 80 % du fer.

BIBLIOGRAPHIE

- [1]- Dutrizac J.E., "The physical chemistry of iron precipitation in the zinc industry", in J.M. Cigan, T.S. Mackey and T.J. O'Keefe (Editors), Lead-Zinc-Tin'80. The Metallurgical Society of AIME, Warrendale, PA, (1979), pp. 532-564.
- [2]- Chegrouche S. and Bensmaili A., "Gallium, germanium and Indium recovery from Algerian residue", 13th International Congress of Chemical and Process Engineering – CHISA'98, Praha Czech Republic, 23-28 August (1998).
- [3]- Elgersma F., Witkamp F. and Van Rosmalen G.M., "Simultaneous dissolution of zinc ferrite and precipitation of ammonium jarosite", *Hydrometallurgy*, 34 (1993), pp. 23-47.
- [4]- Charlot G., "Dosage absorptiométrique des éléments minéraux", Ed. Masson (1979).
- [5]- Zaourar Kh. et Chegrouche S., "Méthodes d'analyses des métaux lourds contenus dans un résidu industriel", 3^{ème} Conférence Maghrébine de Génie des Procédés (COMAGEP3), Tamanrasset, 10-13 Mai (1998). □