

# Caractérisation environnementale et valorisation par lixiviation des rejets de flottation.

Mbuya B.I.<sup>1\*</sup>, Kawama F.N.<sup>1</sup> et Nkulu G.N.<sup>2</sup>

## Paper History

Received:  
July 21, 2017

Revised:  
November 05, 2017

Accepted:  
January 17, 2018

Published:  
March 30, 2018

## Keywords:

AMD, TME, flotation tailings, leaching, Taguchi approach, static test, kinetic test

## ABSTRACT

### Environmental characterization and leaching valorization of flotation tailings

Acid mine drainage (AMD) generated by tailings is the result of an oxidation of sulfurous minerals. In order to prevent the production of AMD, chemical static tests and the kinetic tests were carried out. The first ones aimed at the prediction of AMD whereas the kinetic test made it possible to evaluate the mobility of trace metallic elements (TME). The static characterization results show that the tailings of Kakanda concentrator (KDC) is uncertain generating acid because the neutralization potential (NP = 5.75 kg CaCO<sub>3</sub>/t) and the acid generation potential (AP = 6.875 kg CaCO<sub>3</sub>/t) calculated give a ratio NP/AP of 0.836 and a net neutralization potential (NNP) of -1.125 kg CaCO<sub>3</sub>/t. The kinetic test showed that the mobilized metals exceeded the permissible threshold of the Congolese standard. Valorization by leaching showed that the optimum conditions are: pH = 0.5, Concentration Fe<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> = 25g / L, Temperature = 80 ° C and Time = 1h for Cu and pH = 1.5, Concentration Fe<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> = 25 g / L, Temperature = 60 ° C and Time = 1 h for Co. These conditions make it possible to obtain solubilization yields of 97.85% and 97.26% respectively for Cu and Co.

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

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

\* To whom correspondence should be addressed.: [mbuya.bienvenu@gmail.com](mailto:mbuya.bienvenu@gmail.com)

## INTRODUCTION

L'arc cuprifère du Katanga constitue un district minier polymétallique important, localisé dans les roches du système Katangien [FRANÇOIS, 1974]. Il recèle une variété des minéralisations, notamment le cuivre et ses accompagnateurs (cobalt, uranium, nickel), le zinc et le plomb puis de gîtes de fer, des métaux précieux [INTIOMALE, 1982]. Grâce à ce contexte géologique particulièrement favorable, le Katanga représente l'une des provinces de la RD-Congo les plus actives dans le domaine de l'industrie minière.

L'industrie minière engendre des impacts environnementaux négatifs par la production d'une grande quantité de rejets miniers sous forme de rejets de concentrateur ou de résidus miniers, de roches stériles et d'eaux de mines et de traitement [BENZA AZOUA et al., 2004 ; GOSSELIN et AUBERTIN, 2007 ; VADAPALLI et al., 2008 ; DEMERS et BUSSIÈRE, 2008 ; AWOH, 2012 ; SIMATE et NDLOVU, 2014 ; OBREQUE et al., 2015].

Les rejets sulfurés générés par l'industrie minière constituent souvent une source de contamination environnementale [SIMATE et NDLOVU, 2014]. Cette dernière est liée à leur instabilité physique (cas des haldes à stériles et les digues de retenue des parcs à résidus), mais aussi et surtout à leur instabilité chimique suite à leurs interactions avec l'atmosphère, en particulier avec l'eau et l'air [KANIKI, 2008 ; KITOBO, 2009 et BOUZAHZAH et al., 2014]. En effet, les rejets miniers solides peuvent contenir des quantités parfois non négligeables en minéraux métalliques non exploitables, tels que les sulfures de Fe [GITARI et al., 2005]. Ces derniers, lorsqu'exposés naturellement à l'action de l'oxygène de l'air et de l'humidité (eau), s'oxydent et produisent de l'acidité. Ce phénomène est appelé drainage minier acide (DMA) [AUBERTIN et

al., 2002 ; AWOH, 2012 et ALLARD, 2014].

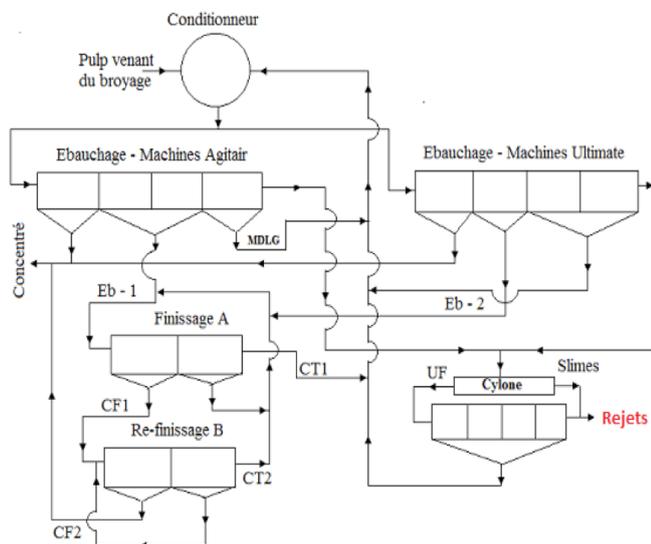
Le phénomène de production d'acide favorise la mise en solution de divers éléments, qui sont plus solubles à bas pH. L'acidité, combinée à la présence de contaminants potentiellement toxiques, notamment les métaux (Fe, Al, Mn, Zn, Cu, Cd, Hg, Pb, Co, Ni, Ta, As,...), peut affecter sérieusement les écosystèmes, qui reçoivent les effluents contaminés [MORIN et HUTT, 1994 et AUBERTIN et al., 2003]. Le DMA est considéré comme le plus important problème environnemental auquel l'industrie minière fait face, et vue la gravité des dommages que ce phénomène peut avoir sur l'environnement, sa prédiction est d'importance capitale.

Les rejets (tailings) de concentrateur de Kakanda qui font l'objet de cette étude sont acheminés sous forme de pulpe vers un bassin de décantation appelé parc à résidus où ces rejets sont confinés à l'aide de la topographie et de digues de retenue étanches. Ces rejets sont susceptibles de contenir des éléments traces métalliques (ETM) dont la particularité est d'être indestructibles et d'être toxiques parfois à des teneurs très faibles [LUTANDULA et MALOBA, 2013].

Le concentrateur de Kakanda (KDC) traite par campagne les minerais provenant principalement des carrières Mukondo et Kabolela situées à une dizaine de kilomètres de Kakanda. Les minerais de Mukondo sont oxydés et titrent en moyenne 2,44% Cu et 1,46% Co tandis que ceux provenant de Kabolela sont sulfurés et titrent 3% Cu et 1,6% Co. KDC produit des concentrés titrant environ 13% Cu et 10% Co. Son régime des réactifs a été conçu afin d'optimiser la récupération plus améliorée du cuivre et du cobalt. En dehors des réactifs de flottation traditionnels des minerais oxydés à savoir : le carbonate de sodium à 10% (modifiant), le silicate de sodium à 30% (déprimant des fines), le sulphydrate de sodium à 24% (sulfurant) et le SinfrothG41

à 100% (moussant), le régime des réactifs du KDC comprend le butylxanthate de potassium à 10% ainsi qu'une mixture à base de 17% de Rinkalore-10, 41% de Rinkalore-840 et 42% de NaSH à 24% jouant respectivement les rôles de collecteurs principal et secondaire. Pour les minerais sulfurés, les deux réactifs sont utilisés : Éthyle xanthate de Potassium (SIPX à 10%) et Isopropyl xanthate de Potassium (SIPX à 10%) utilisés comme collecteurs mélangés à 50%. Le NaHS n'est pas utilisé pour ce type des minerais.

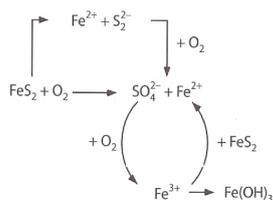
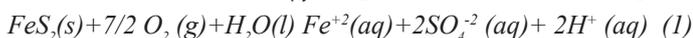
Le schéma de traitement simplifié est montré à la **Figure 1**. Le rejet sulfuré sur lequel porte cette étude titre en moyenne 1,38% Cu et 0,81% Co.



MDLG : Middlings  
Eb -1: Concentré ébauché des machines Agitair  
Eb -2: Concentré ébauché des machines Ultimate  
Finissage A: Utilisation des machines - Agitair  
Re-finissage B: Utilisation des machines - Ultimate  
CF1: Concentré du finissage  
CT1: Cleaner tails du finissage  
CF2: Concentré du re-finissage  
CT2: Cleaner tails du re-finissage

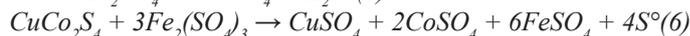
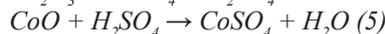
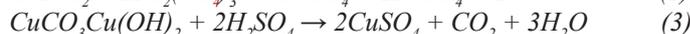
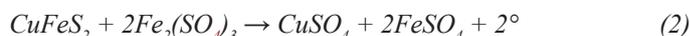
**Figure 1** | Flowsheet simplifié du concentrateur de Kakanda (KDC)

La pyrite ( $FeS_2$ ), présente dans le rejet, est considérée comme l'un des minéraux les plus actifs dans la génération du DMA. La réaction d'oxydation de la pyrite a été largement décrite par plusieurs auteurs [SINGER et al., 1970 ; LOWSON et al., 1982 ; FERGUSON et al., 1988 ; BOUZAHZAH et al., 2014]. L'oxydation biotique a lieu en présence de microorganismes tandis que l'oxydation abiotique est définie comme l'oxydation chimique. De plus, les oxydations biotique et abiotique peuvent être occasionnées par l'oxygène seulement (oxydation directe) ou par l'oxygène et le fer (oxydation indirecte). Des réactions chimiques sont communément utilisées pour représenter ces mécanismes d'oxydation. Dans le processus d'oxydation directe abiotique et biotique, l'oxygène oxyde directement la pyrite (Eq.1). La **Figure 2** montre les mécanismes de formation du DMA de la pyrite [SIMATE et NDLOVU, 2014]



**Figure 2** | Illustration des mécanismes de génération de DMA de la pyrite

Les réactions de lixiviation des principaux minerais porteurs de métaux valorisables sont décrites après (Eq. 2 à 6) [VENKATACHAM, 1998; WAGNER et COOK, 1999; PHILIBERT et al., 2002].



La lixiviation du rejet étudié sera réalisée par une méthode multivariée ; contrairement à l'optimisation conventionnelle, les méthodes d'optimisation statistique peuvent prendre en compte les interactions des variables dans la génération des réponses du processus [GOUPY, 1996]. Les méthodes de plan d'expériences ont été utilisées dans divers domaines, tels que la chimie et l'ingénierie chimique [TUMAYET GUCER, 2011; ZOLGHARNEIN et al., 2014] et le traitement des minerais [MOHAPATRA et al., 2009; YI et al., 2010; TORRALVO et FERNANDEZ-PEREIRA, 2011; TRIPATHY and MURTHY, 2012; MCGRATH et al., 2013; BOYLU, 2013; NKULU et al., 2013 ; KOKKILIC et al., 2015; MBUYA et al., 2017] pour optimiser les réponses du processus. La méthode d'optimisation basée sur les plans d'expériences orthogonaux de Taguchi sera exploitée dans cette étude. Les avantages reconnus à cette méthode sont la réduction du nombre d'essais, la reproductibilité des résultats, un gain en temps et en coût [POIRIER, 1993 ; DROESBEKE et al., 1997 ; GOUPY, 2005].

La caractérisation environnementale telle qu'envisagée dans ce travail portera sur l'application des tests statiques en vue de prédire le DMA suivie des essais cinétiques pour analyser, l'adéquation à la norme Congolaise, des ETM mobilisés. L'objectif ultime sera la valorisation par lixiviation des rejets sulfurés par la méthode multivariée basée sur le plan d'expériences de Taguchi.

## MATÉRIELS ET MÉTHODES

### Préparation de l'échantillon

L'échantillon traité est un rejet de flottation à la mousse du concentrateur de Kakanda (KDC). Un lot de 2500 g a été constitué par échantillonnage stratifié. L'analyse granulométrique a été réalisée à travers une série de tamis ASTM de dimension comprise entre 850 et 38  $\mu m$ . Le tamisage humide a été préféré à cause de la finesse de particules minérales. L'analyse chimique du rejet a été réalisée, selon le cas, par Spectrométrie d'Absorption Atomique (SAA) (AA400, Perkin Elmer), Spectrométrie d'Emission Atomique utilisant un Plasma à Couplage Inductif (ICP-AES) (OPTIMA 2100DV, Perkin Elmer), et par Titrimétrie.

### Tests de caractérisation environnementale

Les tests statiques chimiques et essai cinétique seront utilisés pour la caractérisation du rejet. Les premiers se sont déroulés en deux étapes : la détermination du potentiel de génération d'acide (PA) relié à la présence des minéraux générateurs d'acidité (acidogènes) et la détermination du potentiel de neutralisation (PN) associé aux minéraux neutralisants (acidivores). Lors de l'essai cinétique, l'échantillon a été soumis à des cycles de lixiviation correspondant au protocole expérimental de la muni-cellule d'altération tel que décrit au point (voir la section **Essai cinétique en Muni-cellule d'altération**).

### Les tests statiques chimiques

Pour la détermination du PN, la méthode de Sobek commence par un test préliminaire appelé test de Fizz. L'addition de quelques gouttes d'HCl à 2 g d'échantillon ont permis d'évaluer visuellement l'effervescence. L'intensité de l'effervescence (nulle (N), faible (F), modérée (M) ou forte (F)) a permis par la suite de déterminer la concentration et le volume de l'acide chlorhydrique à ajouter à l'échantillon pour sa digestion en vue de la détermination de son PN.

Après le test de Fizz, l'échantillon (2 g) est mis dans un erlenmeyer avec 90 mL d'eau déionisée et le volume d'HCl fixé par le test de Fizz, puis chauffé à 50°C. Le chauffage est maintenu jusqu'à ce que les bulles produites par la réaction de l'échantillon

à l'acide chlorhydrique s'estompent. Après refroidissement, la solution est titrée avec du NaOH (0.1N) jusqu'à un pH final de 7.0 ( $\pm 0.02$ ) pour évaluer l'acidité restante (non consommée par les minéraux neutralisants) et par conséquent, la détermination du PN. Le PA est calculé plus facilement en utilisant le soufre sulfate de l'échantillon (déterminé par analyse chimique) et en le multipliant

$$PN = \frac{50a((x - y(\frac{b}{a})))}{c} \quad (7)$$

par un coefficient stœchiométrique de 31,25. Les calculs se feront avec les deux formules suivantes (Eq. 7 et 8).

$$PA = 31,25S_{SO_4^{2-}} \quad (8)$$

Où PN et PA sont les potentiels de neutralisation et de génération d'acide respectivement (kg CaCO<sub>3</sub>/t de rejet) ; 50 un facteur de conversion, a et b les normalités du HCl et du NaOH respectivement (N) ; x et y les volumes des solutions de HCl et NaOH respectivement (mL) ; c la masse de l'échantillon (g).

### Essai cinétique en Muni-cellule d'altération

Lors de l'essai cinétique en mini-cellule d'altération, l'échantillon est rincé deux fois par semaine. Le premier rinçage est suivi par deux jours où l'échantillon est laissé à l'air ambiant, puis rincé le quatrième jour et laissé à l'air ambiant pendant trois jours, puis le cycle reprend de nouveau.

Les lixiviats récupérés lors de cet essai cinétique sont caractérisés pour leurs propriétés électrochimiques à l'aide d'électrodes pour le pH, le Eh et l'acidité/alcalinité. Une partie des lixiviats est filtrée, acidifiée, puis analysée pour déterminer les concentrations en métaux, sulfates (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>) et autres ions dissous (mg/kg) dont certains sont les indicateurs directs des réactions d'oxydation-neutralisation (comme le Ca, Mg et Mn).

### Essais de lixiviation

Les essais de lixiviation ont été réalisés dans un bêcher de 500 mL. La solution lixiviante est une eau acidulée d'acide sulfurique (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> à 98%) et d'une quantité adéquate de sulfate ferrique (Fe<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>·5H<sub>2</sub>O) comme agent oxydant. Un échantillon de 20 g est mélangé dans le bêcher avec la solution lixiviante, le tout placé sur une plaque chauffante agitée mécaniquement. La température a été mesurée grâce à un thermomètre placé de manière permanente dans le milieu réactionnel. Après lixiviation, les lixiviats et les résidus ont été analysés par SAA et ICP-AES pour déterminer les teneurs en Cu et Co. L'acidité libre a été déterminée par dosage.

### Le plan d'expériences de Taguchi

Les paramètres suivants ont été retenus pour les essais de lixiviation : pH (x<sub>1</sub>), quantité de Fe<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> (x<sub>2</sub>), température (x<sub>3</sub>) et le temps (x<sub>4</sub>). Le **Tableau 1** liste ces paramètres et leurs niveaux de variation.

La matrice orthogonale L<sub>16</sub>(4<sup>4</sup>) a été utilisée pour la planification et la conduite des essais de lixiviation. Le **Tableau 2** montre ce

**Tableau 1 : Paramètres expérimentaux et valeurs quantitatives de chaque niveau**

Noms et codification des paramètres		niveaux			
		1	2	3	4
pH	(x <sub>1</sub> )	0,5	1	1,5	2
Quantité Fe <sub>2</sub> (SO <sub>4</sub> ) <sub>3</sub> (g/L)	(x <sub>2</sub> )	0	15	25	40
Température (°C)	(x <sub>3</sub> )	25	40	60	80
Temps (heure)	(x <sub>4</sub> )	1	2	3	4

**Tableau 2 : Plan d'expériences L16(44) appliqué à la lixiviation**

Nombre d'essais	Paramètres et leurs niveaux			
	x <sub>1</sub>	x <sub>2</sub>	x <sub>3</sub>	x <sub>4</sub>
1	1	1	1	1
2	1	2	2	2
3	1	3	3	3
4	1	4	4	4
5	2	1	2	3
6	2	2	1	4
7	2	3	4	1
8	2	4	3	2
9	3	1	3	4
10	3	2	4	3
11	3	3	1	2
12	3	4	2	1
13	4	1	4	2
14	4	2	3	1
15	4	3	2	4
16	4	4	1	3

plan d'expériences.

L'ordre des essais a été obtenu en insérant les paramètres dans les colonnes de la matrice orthogonale L16(44) choisie comme plan d'expériences. Le **Tableau 2** est une matrice orthogonale L16(44), 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 [MBUYA et TSHIMOMBO, 2017].

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 et al., 1997]. La méthode Taguchi prend en compte la dispersion des résultats en intégrant à l'analyse une information supplémentaire : le ratio signal/bruit [MADHAV and PHADKE, 2010].

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  $S/B = -10 \log(L)$ , où L est la perte de qualité et S/B est exprimé en dB (décibel).

Les rendements de mise en solution du Cu et du Co seront maximisés ; de ce fait, SAFARZADEH et al. [2007], DEMIRCI et al. [2011] et MBUYA et al. [2017] ont utilisé la formule (9) pour le calcul du ratio S/B.

$$S/B = -10 \log\left(\frac{1}{n} \sum \frac{1}{Y_i^2}\right) \quad (9)$$

où S/B est la caractéristique de performance, n le nombre de répétition de la performance pour la combinaison expérimentale et Y<sub>i</sub><sup>2</sup> la valeur de la performance de i<sup>ème</sup> expérience.

### RÉSULTATS

Les résultats de l'analyse chimique de l'échantillon sont donnés dans le **Tableau 3**. Il se dégage que le rejet est à prédominance sulfurée et titre en moyenne 1,38 % Cu et 0,81% Co. Les formes

Tableau 3| Composition chimique de l'échantillon du rejet

Eléments	Cu <sup>tot</sup>	Cu <sup>ox</sup>	Co <sup>tot</sup>	Co <sup>ox</sup>	Fe <sup>tot</sup>	S <sup>tot</sup>	
%	1,38	0,27	0,81	0,37	1,77	2,45	0,22

Tableau 4| Réponse de la prévision statique du risque de DMA du rejet

PA (kg CaCO <sub>3</sub> /t)	PN (kg CaCO <sub>3</sub> /t)	R = PN/PA
6,875	5,75	0,836

Cu et Co.

L'analyse granulométrique révèle que 90% de l'échantillon ont une granulométrie inférieure à 75 µm.

L'examen minéralogique a montré la présence des minéraux suivants : Chalcopirite (CuFeS<sub>2</sub>), Chalcosite (Cu<sub>2</sub>S), Pyrite (FeS<sub>2</sub>), Carrolite (CuCo<sub>2</sub>S<sub>4</sub>), Malachite (Cu<sub>2</sub>(OH)<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>), Chrysocolle (Cu<sub>3</sub>SiO<sub>3</sub>·2H<sub>2</sub>O), Hétérogénite (Co<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·CoO·CuO·nH<sub>2</sub>O·Cu<sub>2</sub>O) et la gangue est constituée de la dolomite (CaMg(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>) et la silice

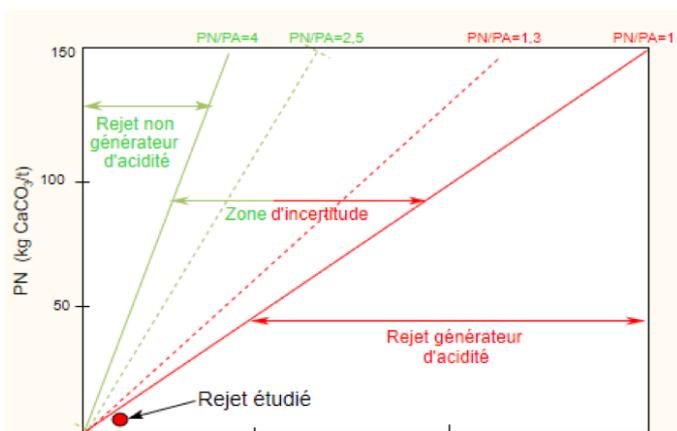


Figure 3| Réponse de la prévision statique de DMA basée sur le rapport PN/PA

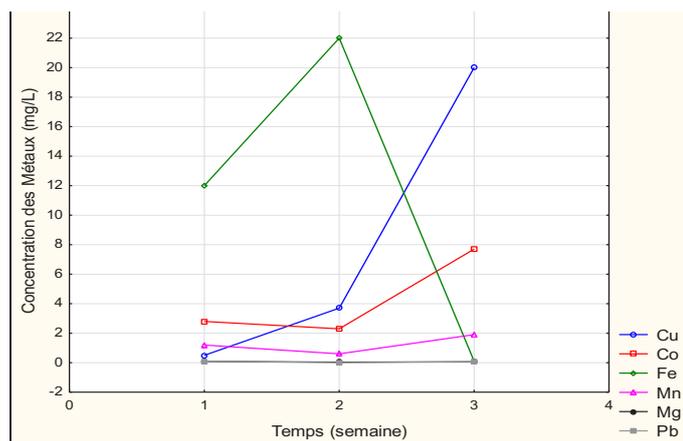


Figure 4| Mobilité des ETM en fonction du temps

(SiO<sub>2</sub>).

Les résultats de la caractérisation environnementale sont repris dans le Tableau 4. La Figure 3 représente la réponse de la prévision statique de génération de l'acidité.

Les résultats de l'essai cinétique sont repris dans le Tableau 5. La Figure 4 présente la cinétique de mobilité des éléments traces métalliques (ETM) contenus dans le rejet sulfuré étudié. Il se dégage une nette dissolution des métaux.

Les essais de lixiviation ont été conduits en accord avec le plan

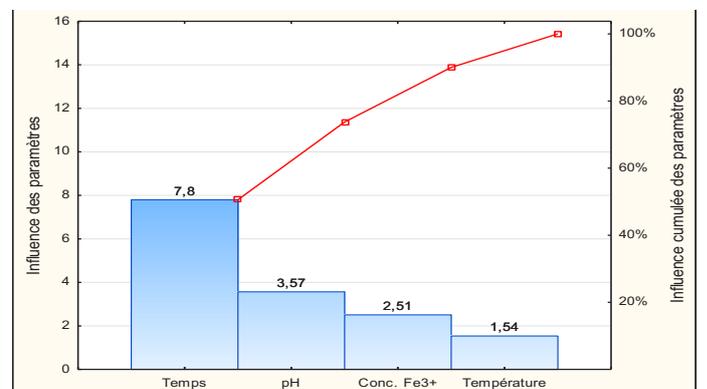
orthogonal L16(44) repris au Tableau 2. Le Tableau 6 donne les rendements de mise en solution du Cu et Co pour les 16 essais avec deux répliques. Les Tableaux 7 et 8 donnent les moyennes marginales du ratio signal-bruit S/B par niveau de facteurs pour la lixiviation du cuivre et cobalt, respectivement. Elles ont

Tableau 5| Fréquence d'arrosage et valeur de pH et de Eh par échantillon

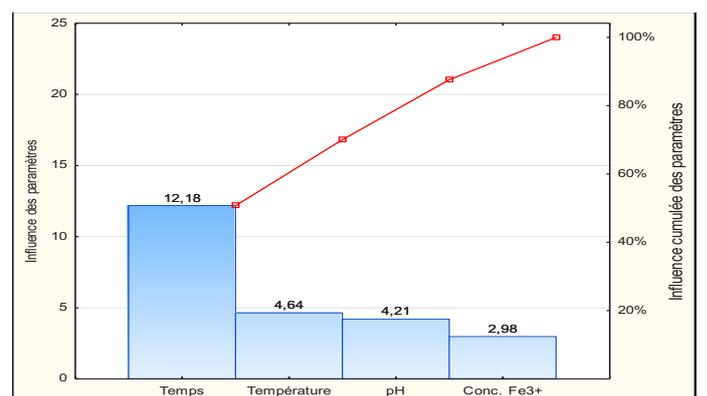
Temps [semaines]	Eh [mV]	pH	Mobilité des ETM [mg/l]					
			Cu	Co	Fe	Mn	Mg	Pb
1	452,8	4,40	0,5	2,8	12	1,2	0,09	0,1
2	250,2	6,01	3,7	2,3	22	0,6	0,04	0,008
3	159,9	4,71	20	7,7	0,1	1,9	0,06	0,07

Tableau 6| Moyenne marginale par niveau de facteurs pour la lixiviation du cuivre

Niveaux	Paramètres			
	X <sub>1</sub>	X <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	X <sub>4</sub>
1	36,77	32,98	34,05	39,74
2	34,34	35,35	34,48	32,93
3	34,80	35,48	34,99	34,50
4	33,20	35,30	35,59	31,94
Influence (Δ)	3,57	2,51	1,54	7,80
Ratio S/B attendu sous conditions optimales	X <sub>1</sub> = 0,5	X <sub>2</sub> = 25 g/L	X <sub>3</sub> = 80°C	X <sub>4</sub> = 1 h



Figures 5| Diagramme de Pareto montrant l'influence des paramètres de lixiviation du rejet pour le cuivre



Figures 5| Diagramme de Pareto montrant l'influence des paramètres de lixiviation du rejet pour le cobalt

été calculées avec la formule (9) et confirmées par le logiciel Statgraphics v.17.

Les valeurs élevées de la métrique fonctionnelle S/B représentent les modalités des paramètres optimisant les rendements de lixiviation des métaux [SAFARZADEH et al., 2007 ; MBUYA et al., 2017]. L'analyse des **Tableau 7** et **8** a donné les configurations optimales suivantes  $x_1=1$ ,  $x_2=3$ ,  $x_3=4$  et  $x_4=1$  pour le cuivre et  $x_1=3$ ,  $x_2=3$ ,  $x_3=3$  et  $x_4=1$  pour le cobalt. Les optimums trouvés sont pH=0,5,

Concentration  $Fe_2(SO_4)_3=25g/L$ , Température = 80°C et Temps = 1h pour le Cu et pH=1,5, Concentration  $Fe_2(SO_4)_3=25g/L$ , Température = 60°C et Temps = 1h pour le Co. Dans ces conditions, les rendements des solubilisations maximales de 97,85 % pour le cuivre et 97,26 % pour le cobalt ont été obtenus.

L'influence des paramètres opérationnels est obtenue par différence entre la valeur la plus élevée et la plus petite de la métrique fonctionnelle S/B pour chaque paramètre. Les **Figure**

**Tableau 6| Plan d'expériences et rendement d'extraction des métaux cuivre et cobalt**

Nombre d'essais	Paramètres et leurs niveaux				Rendement d'extraction (%)	
	$x_1$	$x_2$	$x_3$	$x_4$	Cu	Co
1	1	1	1	1	96,84	96,40
2	1	2	2	2	51,22	36,39
3	1	3	3	3	71,39	60,59
4	1	4	4	4	64,05	29,19
5	2	1	2	3	43,79	47,01
6	2	2	1	4	35,56	9,6
7	2	3	4	1	97,85	97,26
8	2	4	3	2	48,44	27,01
9	3	1	3	4	29,37	38,81
10	3	2	4	3	65,95	60
11	3	3	1	2	48,98	36,79
12	3	4	2	1	96,18	96,10
13	4	1	4	2	31,76	28,08
14	4	2	3	1	97,82	97,21
15	4	3	2	4	36,49	29,52
16	4	4	1	3	38,52	21,44

**Tableau 7| Moyenne marginale par niveau de facteurs pour la lixiviation du cuivre**

Niveaux	Paramètres			
	$x_1$	$x_2$	$x_3$	$x_4$
1	36,77	32,98	34,05	39,74
2	34,34	35,35	34,48	32,93
3	34,80	35,48	34,99	34,50
4	33,20	35,30	35,59	31,94
Influence ( $\Delta$ )	3,57	2,51	1,54	7,80
Ratio S/B attendu sous conditions optimales	$x_1 = 1,5$	$x_2 = 25 g/L$	$x_3 = 80 ^\circ C$	$x_4 = 1 h$

**Tableau 8| Moyenne marginale par niveau de facteurs pour la lixiviation du cobalt**

Niveaux	Paramètres			
	$x_1$	$x_2$	$x_3$	$x_4$
1	33,96	33,47	29,32	39,71
2	30,37	31,55	33,43	30,03
3	34,58	34,03	33,95	32,82
4	31,19	31,05	33,40	27,53
Influence ( $\Delta$ )	4,21	2,98	4,64	12,18
Ratio S/B attendu sous conditions optimales	$x_1 = 1,5$	$x_2 = 25 g/L$	$x_3 = 60 ^\circ C$	$x_4 = 1 h$

5 et 6 montrent l'influence des paramètres étudiés. Elles sont présentées sous forme de diagramme de Pareto comme il a été proposé par MBUYA et al., [2017] pour illustrer la loi probabiliste 80/20.

## DISCUSSION

La **Figure 3** montre que le rejet de KDC est générateur d'acidité avec un rapport PN/PA=0,836. Ce rejet renferme donc une plus grande quantité de minéraux acidogènes par rapport à la quantité de minéraux neutralisants. Étant donné que la température maximale atteinte lors des tests statiques est de 50 °C, la pyrite FeS<sub>2</sub> serait le minéral le plus actif dans la production de l'acide. Les valeurs de PN (5,75 kg CaCO<sub>3</sub>/t) et PA (6,875 kg CaCO<sub>3</sub>/t) sont relativement faibles. Pour mieux appréhender le phénomène de DMA, on utilise également le critère du pouvoir net de neutralisation (PNN=PN-PA) qui vaut -1,125 kg CaCO<sub>3</sub>/t. L'analyse du PNN montre que le rejet est plutôt incertain, c'est ainsi que les essais cinétiques ont été associés à cette étude.

La **Figure 4** montre que les métaux contenus dans le rejet sont dissous. Le fer se met en mobilité dès le premier arrosage, mais au deuxième arrosage il y aurait coexistence de Fe<sup>3+</sup> et de Fe<sup>2+</sup>, d'où la présence du phénomène d'oxydo-réduction du couple (Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup>) qui favorise la génération de DMA et au troisième arrosage, il y aurait précipitation du fer sous forme d'hydroxyde. Les valeurs de pH (4,40 à 6,01) confirment cette hypothèse

Tout au long du premier arrosage on a une prédominance du Co<sup>2+</sup>, la forme de Mn est sous forme de Mn<sup>2+</sup> tout le long de cet arrosage, mais le magnésium est en forte mobilité du fait que l'étendue de stabilité des ions Mg<sup>2+</sup> est remarquable dans les domaines des potentiels de 159,9 à 452,8 mV et dans le domaine de pH compris entre 4,4 et 6,01. Le Cu se dissout facilement, ceci est en adéquation avec les analyses minéralogiques où le cuivre serait majoritairement sous forme de chalcosite et de malachite, minéraux réputés moins réfractaires à la mise en solution dans les conditions opératoires fixées.

Bien que le rejet soit dans la zone d'incertitude quant à la génération d'acide, les teneurs en métaux mobilisés lors de l'essai cinétique (Cu: 20 mg/L ; Pb: 0,1) sont très supérieures à la norme congolaise (Cu: 1,5 ; Pb: 0,01 mg/L), une gestion efficace s'impose pour minimiser la contamination des eaux souterraines. Nous envisageons l'extraction des métaux de valeur par un schéma de traitement qui passe par la lixiviation.

Les **Figure 5** et **6** hiérarchisent l'influence des paramètres étudiés, respectivement pour le Cu et Co. Le temps s'est révélé influent dans les deux cas, les rendements des solubilisations maximales de 97,85 % pour le cuivre et 97,26 % pour le cobalt ont été obtenus. L'analyse des conditions opératoires optimisant le Cu et Co montre que la valorisation par lixiviation est possible car les sulfures génèrent l'acidité, les ions Fe<sup>3+</sup>/Fe<sup>2+</sup> et ions sulfures (S<sup>2-</sup>, S<sub>2</sub><sup>2-</sup>, S<sub>2</sub>O<sub>3</sub><sup>2-</sup>), qui participent activement à la mise en solution des sulfures polymétalliques.

## CONCLUSION

Le but de cette étude était de caractériser le rejet sulfuré du concentrateur de Kakanda en vue de prédire le comportement environnemental. Les tests statiques et essai cinétique montrent que ce rejet est un générateur d'acide incertain du fait de son pouvoir net de neutralisation (PNN= -1,125 kg CaCO<sub>3</sub>/t) compris entre 20 et -20 kg CaCO<sub>3</sub>/t. L'essai cinétique a montré que les métaux mobilisés dépassaient le seuil admissible par la norme congolaise. La valorisation par lixiviation a montré que les rendements des solubilisations de 97,85 % pour le Cu et 97,26 % pour le Co pouvaient être atteints. Le temps est le paramètre influençant statistiquement la dissolution du Cu et Co.

## RÉSUMÉ

Le drainage minier acide (DMA) généré par le rejet de concentrateur résulte de l'oxydation des minéraux sulfureux qu'on y retrouve. Afin de prévenir la production de DMA, les tests statiques chimiques et essais cinétiques ont été réalisés. Les premiers ont visé la prédiction du DMA et l'essai cinétique a permis d'évaluer la mobilité des éléments traces métalliques (ETM). Les résultats de caractérisation statique révèlent que le rejet du concentrateur de Kakanda (KDC) est un générateur d'acide incertain car le potentiel de neutralisation (PN=5,75 kg CaCO<sub>3</sub>/t) et le potentiel de génération d'acide (PA=6,875 kg CaCO<sub>3</sub>/t) calculés donnent un ratio PN/PA de 0,836 et un pouvoir net de neutralisation (PNN) de -1,125 kg CaCO<sub>3</sub>/t. L'essai cinétique a montré que les métaux mobilisés dépassaient le seuil admissible par la norme congolaise. La valorisation par lixiviation a montré que les conditions optimales sont : pH = 0,5, Concentration Fe<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> = 25g/L, Température = 80°C et Temps = 1h pour le Cu et pH=1,5, Concentration Fe<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> =25g/L, Température = 60°C et Temps = 1h pour le Co. Ces conditions permettent d'obtenir les rendements des solubilisations de 97,85 % et 97,26 % respectivement pour le Cu et Co.

### Mots clés

DMA, ETM, rejet de flottation, lixiviation, approche de Taguchi, test statique, essai cinétique

## REFERENCES ET NOTES

- ALLARD RP. [2014] : *Caractérisation et neutralisation du drainage minier acide par une dolomie à haute pureté*, DEA, Université de Sherbrooke, pp. 84
- AUBERTIN M., BUSSIÈRE B. and BERNIER L. [2002] : *Environnement et gestion des rejets miniers*, Montreal, Quebec, Les Presses Internationales de Polytechnique.
- AUBERTIN M., MBONIMPA M., BUSSIÈRE B., and CHAPUIS R.P. [2003] : *A model to predict the water retention curve from basic geotechnical properties Canadian Geotechnical Journal*. 40:1104 – 1122.
- AWOH A.S. [2012] : *Étude expérimentale du comportement géochimique de résidus miniers hautement sulfureux sous un recouvrement en eau*, DEA, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, pp. 256
- BENZAOUA M., BUSSIÈRE B., DAGENAIS, A.M. and ARCHAMBAULT M. [2004] : *Kinetic test comparison and interpretation for prediction of the joulet tailings acid generation potential*, *Environmental Geology*, *Geology* 46-8: 1086-1101.
- BERNARD C. [2005]: *Modèles d'analyses de la variance avec Statistica*, GenstatConseils Inc
- BOUZHAH H., BENZAOUA M., BRUNO B. et PLANTE B. [2014] : « *Revue de littérature détaillée sur les tests statiques et les essais cinétiques comme outils de prédiction du drainage minier acide* », *Déchets, Sciences et Techniques*, N°66, pp. 14-31.
- BOYLU F. [2013]: *Modelling and optimisation of ageing characteristics of soda activated Na+-bentonites*. *Appl. Clay Sci.* 83-84, 300-307
- DEMERS I. and BUSSIÈRE B. [2008] : *Repeatability evaluation of instrumented column tests in acid mine drainage prediction and cover efficiency evaluation*, *GeoEdmonton'08*, Québec, Canada, pp.8
- DEMIRCI M.T., SAMANCI A., TARAKÇIOĞLU N., and 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.
- DROESBEKE J.J., FINE J., and SAPORTA G. [1997]: *Plans d'expériences*, Application à l'entreprise, Technip, Ed Paris.
- FERGUSON K.D., and ERICKSON P.M., [1988] : *Pre-Mine Prediction of Acid Mine Drainage*. In: *Dredged Material and Mine Tailings*. Edited by Dr. Willem Salomons and Professor Dr. Ulrich Forstner.
- FRANÇOIS A., [1974] : *Stratigraphie, Tectonique et minéralisations dans l'arc cuprifère du Shaba*, *Centenaire de la société géologique de Belgique*, Liège, 79-101
- GITARI W.M., SOMERSET V.S., PETRIK L.F, KEY D., IWUOHA E. et OKUJENI C. [2005] : *Treatment of acid mine drainage with fly ash*, *Removal of major, minor elements, SO<sub>4</sub> and utilization of the solid residues for*

wastewater treatment, Word of coal ash, Lexington, Kentucky, USA, pp. 23

- GOSSELIN M. et AUBERTIN M., [2007]** : *Évaluation de l'effet du degré de saturation sur la diffusion et la consommation d'oxygène dans des résidus miniers sulfureux*, École Polytechnique de Montréal, Montréal, Québec, Canada, pp. 8
- GOUPY J., [2005]**: *Pratiquer les Plans d'Expériences*.Dunod. Paris, p.560
- GOUPY J., [1996]** : La méthode des plans d'expériences – Optimisation du choix des essais et de l'interprétation des résultats, Ed. Dunod, Paris.
- INTIOMALE M. [1982]** : Le gisement Zn-Pb-Cu de Kipushi, Thèse de doctorat, Université Catholique de Louvain, Belgique.
- KANIKI A.T. [2008]** :*Caractérisation environnementale des rejets minéro-metallurgiques du copperbelt congolais*, Thèse de Doctorat, Université de Liège pp. 238
- KITOBO W.S. [2009]** : *Dépollution et valorisation des rejets miniers sulfurés du Katanga « Cas des tailings de l'Ancien Concentrateur de Kipushi »*, Thèse de Doctorat, Université de Liège, Belgique
- KOKKILIC O., LANGLOIS R., WATERS K.E. [2015]**:*A design of experiments investigation into dry separation using a Knelson Concentrator*. *Minerals Engineering* 72 (2015) 73–86
- LIU H.L., LAN, W.Y. and CHENG Y.C. [2004]** : *Optimal production of sulphuric acid by Thiobacillus thiooxidans using response surface methodology*, *Process Biochemistry* 39, 1953–1961
- LOWSON R.T. [1982]** : *Aqueous oxidation of pyrite by molecular oxygen*. *Chemical Review.*, 82(5): p. 461-497.
- LUTANDULA M.S. and MALOBA B. [2013]**:*Recovery of cobalt and copper through reprocessing of tailings from flotation of oxidised ores*, *J. Environ. Chem. Eng.*, 1(1), 1085–1090.
- MADHAV S., and PHADKE M.S. [2010]**: Introduction to Robust Design (Taguchi Method), Publication scientifique. Accessed from <https://www.isixsigma.com/methodology/robust-design-taguchi-method/introduction-robust-design-taguchi-method>
- MBUYA B.I. et TSHIMOMBO A.M. [2017]** : *Evaluation statistique et étude de la lixiviation du rejet de flottation d'un minerai cuprocobaltifère : Apports de la méthode de Taguchi et Analyse de la variance*, *Congo Sciences*, 5 (1) : 1-11
- MBUYA B.I., KIME M.B., and TSHIMOMBO A.M.D. [2017]**: *Comparative Study of Approaches Based on the Taguchi and ANOVA for Optimising the Leaching of Copper–Cobalt Flotation Tailings*, *Chemical Engineering Communications*, 204(2017): 512 - 521. DOI:10.1080/00986445.2017.1278588
- MCGRATH T.D.H., STAUNTON, W.P., EKSTEEN, J.J., [2013]**. *Development of a laboratory test to characterise the behaviour of free gold for use in a combined flash flotation and gravity concentrator model*. *Miner. Eng.* 53, 276–285.
- MOFFAT W. and WALMSELY M.R.W. [2006]**. *Understanding Lime Calcination Kinetics For Energy Cost Reduction*. 59th Appita Conference Auckland New Zealand 2006.
- MOHAPATRA, S., PRADHAN, N., MOHANTY, S., SUKLA, L.B., [2009]**. *Recovery of nickel from lateritic nickel ore using Aspergillus niger and optimization of parameters*. *Miner. Eng.* 22, 311–313.
- MORIN K.A. and HUTT N.M. [1994]**. *Observed Preferential Depletion of Neutralization Potential Over Sulfide Minerals in Kinetic Tests: Site-Specific Criteria for Safe NP/AP ratios, presented at the international and Land Reclamation and Mine Drainage Conference and the 3rd International Conference on the Abatement of Acidic Drainage*, Pittsburgh, USA, pp : 148-156
- NKULU G., GAYDARDZHIEV S., and MWEMA E. [2013]** : *Statistical analysis of bioleaching copper, cobalt and nickel from polymetallic concentrate originating from Kamoya deposit in the Democratic Republic of Congo*, *Miner. Eng.*, 48, 77–85
- OBREQUE C. J., PÉREZ F.D., GUTIÉRREZ P., CHÁVEZ C.P., [2015]** : *Acid Mine Drainage in Chile: An Opportunity to Apply Bioremediation Technology*, *Hydrol Current Res* 6:215.
- PHILIBERT J., VIGNES A., BRECET Y., and CAMBRAGE P., [2002]**: *Métallurgie du minerai au Matériau (cours et exercices corrigés)*, Dunod, Paris. Pp.1114
- POIRIER J. [1993]** : *Analyse de la variance et de la régression. Plans d'expériences» Techniques del'ingénieur. Traité Mesures et contrôle*, R260, p. 1-23.
- SAFARZADEH M.S., MORADKHANI D., ILKHCHI M.O., and GOLSHAN N.H. [2007]**: *Determination of the optimum conditions for the leaching of Cd–Ni residues from electrolytic zinc plant using statistical design of experiments*, *Sep. Purif. Technol.*, 58(3), 367–376.
- SIMATE, G.S. et NDLOVU S., [2014]** : *Acid mine drainage: Challenges and opportunities*, *Journal of Environmental Chemical Engineering*, Elsevier, p. 19.
- SINGER P.C., and STUMM W. [1970]**: *Acidic Mine Drainage: The rate determining ste*. *Science*, (167): p. 1121-1123.
- TORRALVO F.A., FERNANDEZ-PEREIRA C.[2011]**. *Recovery of germanium from real fly ash leachates by ion-exchange extraction*. *Miner. Eng.* 24, 35–41.
- TRIPATHY S.K., MURTHY Y.R., [2012]**. *Modeling and optimization of spiral concentrator for separation of ultrafine chromite*. *Powder Technol.* 221, 387–394.
- TUMAY O. E., GUCER S. [2011]**: *Central composite design for the optimisation of Cd and Pb determination in PVC materials by atomic absorption spectrometry after Kjeldahl digestion*. *Polym. Testing* 30, 773–778.
- VADAPALLI V.R.K., KLINK M.J., ETCHEBERS O., PETRIK L.F., GITARI W., WHITE R.A., KEY D. and IWUOHA E., [2008]** : *Neutralization of acid mine drainage using fly ash, and strength development of the resulting solid residues*, *South African Journal of Science* 104, pp. 8
- VENKATACHALAM S. [1998]**:*Hydrometallurgy*, Narusa, publishing house, New Delhi; Bombay, London, p. 318
- WAGNER T. and COOK N.J. [1999]** : *Carrollite And Related Minerals Of The Linnaeite Group: Solid Solutions And Nomenclature In The Light Of New Datafrom The Siegerland District. Germany*, pp. 14
- YI S., SU Y., QI B., SU Z., WAN Y., [2010]**. *Application of response surface methodology and central composite rotatable design in optimizing the preparation conditions of vinyltriethoxysilane modified silicalite/polydimethyl-siloxane hybrid pervaporation membranes*. *Sep. Purif. Technol.* 71, 252–262.
- ZOLGHARNEIN J., BAGTASH M., ASANJARANI N.,[2014]**. *Hybrid central composite design approach for simultaneous optimization of removal of alizarin red S and indigo carmine dyes using cetyltrimethylammonium bromide-modified TiO<sub>2</sub> nanoparticles*. *J. Environ. Chem. Eng.* 2 (2), 988–1000.



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/>