



响应面法优化金精矿中性焙烧产物的自浸金过程

徐 涛¹, 赵留成², 李绍英²

(1. 中铝中国铜业有限公司企业管理部, 北京 100082;
2. 华北理工大学 矿业工程学院, 唐山 063009)

摘 要: 采用单因素试验和响应面试验方法, 对金精矿中性焙烧产物的自浸金过程中 Na_2SO_3 、 CuSO_4 、 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 、 Na_2CO_3 等添加剂浓度进行优化研究, 分析各添加剂及其相互作用对金浸出率的影响规律、显著性、次序。结果表明: 金浸出率随着 Na_2SO_3 浓度的增加逐渐增大, 而随 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 浓度、 CuSO_4 浓度、 Na_2CO_3 浓度的增加呈先增大后降低的趋势; CuSO_4 浓度和 Na_2CO_3 浓度对金浸出率的影响显著, 并且 CuSO_4 浓度的影响显著性大于 Na_2CO_3 浓度; 在 Na_2SO_3 0.14 mol/L、 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 2.1 mol/L、 CuSO_4 0.06 mol/L、 Na_2CO_3 0.12 mol/L 最优工艺条件下, 金浸出率达到 96.31%, 试验值与模型预测值间的误差只有 0.86%, 响应面优化得到的二次多项式模型是合理可靠的。同时, 金精矿的中性焙烧-自浸金工艺为金的高效非氰浸出提供新思路。

关键词: 金精矿; 中性焙烧产物; 自浸金; 非氰浸出; 响应面法

文章编号: 1004-0609(2017)-03-0629-08

中图分类号: TD953

文献标志码: A

目前, 金的提取仍以氰化法为主, 但氰化法浸金时间长, 氰化物价格昂贵, 且具有剧毒性, 对人体和周围生态环境造成严重危害^[1]。在非氰浸金技术研究较多的有硫脲法^[2]、硫代硫酸盐法^[3]、碘化法^[4-5]、多硫化物法和含硫浸金试剂法^[6]等, 其中含硫浸金试剂是以石灰和硫黄合成的非氰浸金试剂, 其浸金速度快、选择性强、适应性广, 被认为是一种较有应用前景的非氰浸金试剂^[7]。周源等^[8]采用含硫浸金试剂对 Au 48 g/t、Cu 2.31%、Pb 3.6%、S 32.02% 的某多金属硫化物矿进行浸出, 金的浸出率达到 95%。李晶莹等^[9]采用含硫浸金试剂浸取废弃线路板中的金, 金浸出率达到 85% 以上。陈怡等^[10]采用含硫浸金试剂对某碳质金精矿进行焙烧-浸出研究, 金浸出率达到 96%。为了综合利用金精矿中的硫元素和提高金精矿的金浸出率, 本文作者^[11]曾对金精矿进行了中性焙烧-自浸金工艺可行性的研究, 即在中性气氛下焙烧金精矿, 使载金硫化矿物中的硫以单质的形式产出, 将单质硫与石灰合成含硫浸金试剂, 浸出焙烧产物中的金, 金浸出率为 88.70%。综上可知, 含硫试剂浸金不仅适用于多种含金物料, 而且都能获得较高的金浸出率, 但是在添加剂对浸金过程影响的显著性方面研究较少。

本文作者采用单因素试验和响应面试验方法, 考察 Na_2SO_3 、 CuSO_4 、 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 和 Na_2CO_3 4 种添加剂

对金精矿中性焙烧产物自浸金过程的影响, 分析各添加剂及其相互作用对金浸出率影响的显著性及其影响次序, 确定最优浸金工艺条件。添加剂对含硫浸金试剂浸出过程影响显著性的研究对调控含硫试剂浸金过程和促进其浸金机理研究具有重要意义。

1 实验

1.1 实验原料

试样为福建省双旗山金矿的浮选金精矿, 其化学多元素分析结果见表 1。由表 1 可知, 金精矿中金的品位为 62.68 g/t, 含硫 30.52%, 锌、铅、铜等有害元素含量很低。在氮气流量 1.0 L/min、焙烧温度为 800 °C、焙烧时间 60 min 的条件下, 金精矿经中性焙烧后其焙烧产物的产率为 82.52%, 其中金的品位为 75.96 g/t, 含硫 21.26%; 单质硫转化率为 42.53%, 为含硫浸金试剂的合成提供了充足的单质硫。焙烧产物的 X 射线衍射分析结果如图 1 所示。由图 1 可知, 焙烧产

收稿日期: 2015-12-28; 修订日期: 2016-06-27

通信作者: 赵留成, 讲师, 博士; 电话: 15210662945; E-mail: zhaoliucheng2006@163.com

表 1 金精矿化学多元素分析结果

Table 1 Chemical multi-element analysis results of gold concentrate (mass fraction, %)

Au	Ag	Fe	Cu	Zn	Pb
62.68×10^{-3}	98.35×10^{-3}	31.75	0.24	0.05	0.05
S	CaO	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	
30.52	2.71	3.02	8.34	23.32	

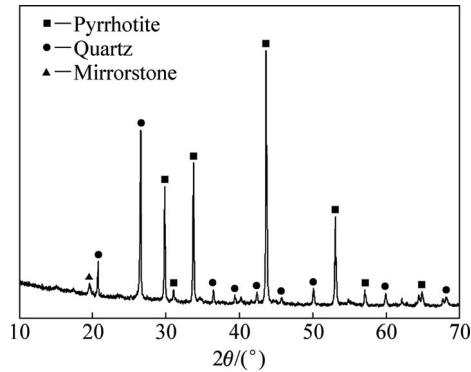


图 1 金精矿中性焙烧产物的 XRD 谱

Fig. 1 XRD pattern of neutral roasted product of gold concentrate

物中金属矿物主要为磁黄铁矿,脉石矿物主要为石英,还有少量的白云母。

1.2 实验方法

浸出试验方法:称取 50 g 焙烧产物,采用 RK/BM-三辊四筒棒磨机以 67%的磨矿浓度(质量分数)进行磨矿,过滤、烘干后作为浸出试样。将含硫浸金试剂与试样一同置于 500 mL 的烧杯中,按照浸出试验条件调整浸出温度和添加试剂,所用试剂均为分析纯,利用 JJ-4A 六联数显恒温电动搅拌器进行搅拌浸出。浸出试验完成后,经过滤、洗涤、烘干、混匀、取样,采用活性炭吸附-碘量法分析浸渣中金的品位,按照式(1)计算金的浸出率:

$$\eta = \frac{m \times \beta - m_1 \times \beta_1}{m \times \beta} \times 100\%$$
 (1)

式中: η 为金的浸出率, %; m 为试样质量, g; m_1 为浸渣质量, g; β 为试样中金的品位, g/t; β_1 为浸渣中金的品位, g/t。

含硫浸金试剂的合成条件:单质硫、石灰、水的质量比为 2:1:50,加热沸腾 45 min,所用单质硫为金精矿中性焙烧过程中生成的单质硫。

响应面试验设计方法:在单因素试验的基础上,采用 Design-Expert 8.0 软件^[12-13],使用中心组合设计

方法对浸出过程中添加剂因素进行响应面试验和分析。以 Na₂SO₃ 浓度(X_1)、CuSO₄ 浓度(X_2)、NH₃·H₂O 浓度(X_3)、Na₂CO₃ 浓度(X_4)为考察因素,金浸出率(Y)为响应值,根据中心组合设计(Central composite design)^[14-15],采用响应面法在 4 因素 5 水平上对焙烧产物的自浸金工艺条件进行优化,以获得最佳的浸出工艺条件。 2^4 的全因子中心设计共需要 31 组试验,其中包括 16 个因素点,8 个轴点和 7 个中心点,计算公式如下:

$$N = 2^n + 2n + n_c = 2^4 + 2 \times 4 + 7 = 31$$
 (2)

式中: N 为试验数量; n 为因素个数; n_c 为重复试验的中心点。

每个响应值 Y 与试验因素 X_1 、 X_2 、 X_3 、 X_4 的相互关系模型可由式(3)中的二次多项式求得。

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^n \beta_i X_i + \sum_{i=1}^n \beta_{ii} X_i^2 + \sum_{i < j} \beta_{ij} X_i X_j$$
 (3)

式中: Y 为预测的响应值; β_0 为系数常数; β_i 为线性系数; β_{ii} 为二次方程系数; β_{ij} 相互作用系数; X_i 、 X_j 为试验因素编码值。

2 结果与讨论

2.1 单因素试验

2.1.1 Na₂SO₃ 浓度对金浸出率的影响

为了考察 Na₂SO₃ 浓度对焙烧产物浸出效果的影响,在磨矿细度小于 0.038 mm 的含量占 90%,含硫浸金试剂浓度 15%,NH₃·H₂O 1.2 mol/L, CuSO₄ 0.06 mol/L, Na₂CO₃ 0.1 mol/L,浸出温度 60 ℃,浸出时间 7 h,液固比 6:1,搅拌速度 550 r/min 的条件下,分别进行不同 Na₂SO₃ 浓度的浸出试验。试验结果如图 2 所示。

由图 2 可知,金的浸出率随着 Na₂SO₃ 浓度的增加逐渐提高。当 Na₂SO₃ 浓度由 0.08 mol/L 增加到 0.14 mol/L 时,金浸出率从 71.84%提高至 92.95%。继续增大 Na₂SO₃ 浓度,金浸出率基本保持不变。Na₂SO₃ 是含硫浸金试剂浸出体系的稳定剂,一方面可减缓 S_x²⁻和 S₂O₃²⁻的氧化分解,另一方面 SO₃²⁻可与溶液中可能存在的 S²⁻、S⁰、CuS、Cu₂S 反应生成 S₂O₃²⁻并保证浸金体系中 Cu²⁺的不断循环^[16]。综合考虑,选择 Na₂SO₃ 浓度为 0.14 mol/L。

2.1.2 NH₃·H₂O 浓度对金浸出率的影响

在 Na₂SO₃ 0.14 mol/L, CuSO₄ 0.06 mol/L, Na₂CO₃ 0.1 mol/L,其他浸金工艺条件同上的条件下,分别进

行不同 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 浓度的浸出试验。试验过程中如果 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 浓度大于 1.2 mol/L, 则采用二次加药的方法, 即浸出开始时按 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 1.2 mol/L 添加, 浸出 3 h 后补加剩余部分。试验结果如图 3 所示。

由图 3 可知, 当 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 浓度由 0.8 mol/L 增加到 1.8 mol/L 时, 金浸出率从 88.63% 提高至 95.82%。继续增加 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 浓度, 金的浸出率逐渐降低。当 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 浓度为 2.4 mol/L 时, 金浸出率降至 93.46%, 降低了 2.36%。过高浓度的 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 会使溶液的 pH 值增加, 而高碱度会阻碍金的溶解反应, 降低金的浸出率。因此, $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 浓度为 1.8 mol/L 较为合适。

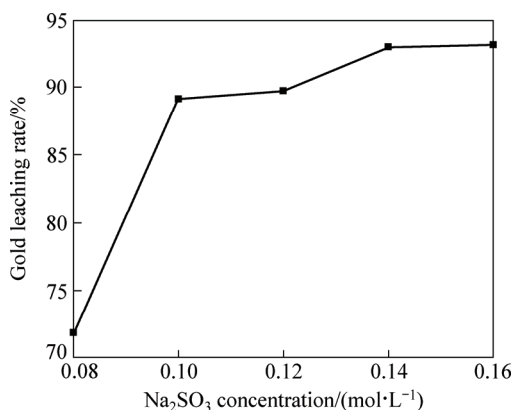


图 2 Na_2SO_3 浓度对金浸出率的影响

Fig. 2 Effect of Na_2SO_3 concentration on gold leaching rate

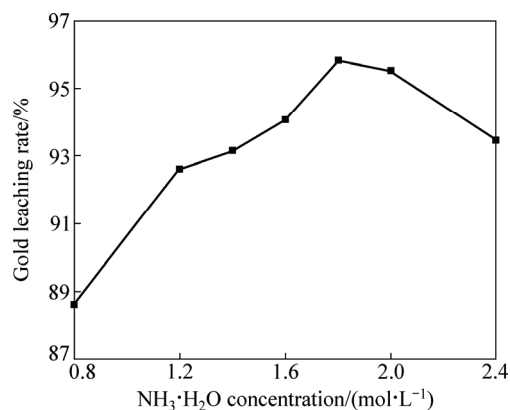


图 3 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 浓度对金浸出率的影响

Fig. 3 Effect of $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ concentration on gold leaching rate

2.1.3 CuSO_4 浓度对金浸出率的影响

在 Na_2SO_3 0.14 mol/L, $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 1.8 mol/L, Na_2CO_3 0.1 mol/L, 其他浸金工艺条件同上的条件下, 分别进行不同 CuSO_4 浓度的浸出试验。试验结果如图 4 所示。

由图 4 可知, CuSO_4 用量较少时, 金浸出率很低, 随着 CuSO_4 浓度的增加, 金浸出率不断上升。这是由于浸出溶液中添加的 Cu^{2+} 主要与 NH_3 形成铜氨络离子

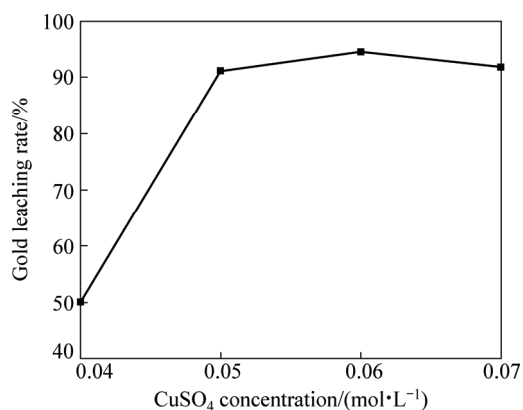


图 4 CuSO_4 浓度对金浸出率的影响

Fig. 4 Effect of CuSO_4 concentration on gold leaching rate

$[\text{Cu}(\text{NH}_3)_4]^{2+}$, 在含硫浸金试剂的浸金体系中催化金的溶解^[17], 不加或少加 Cu^{2+} 时金的浸出率都较低。当 CuSO_4 浓度为 0.06 mol/L 时, 金浸出率达到最大值 94.49%, 继续增加 CuSO_4 浓度, 金浸出率略有降低。因此, CuSO_4 浓度为 0.06 mol/L 较为合适。

2.1.4 Na_2CO_3 浓度对金浸出率的影响

Na_2CO_3 对含硫浸金试剂的浸出过程影响较大, 不仅有助于溶液 pH 值的稳定, 而且可以阻碍 S_x^{2-} 和 $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ 离子与 CO_2 反应和促进 NH_3 以 NH_4^+ 离子的形式存在, 减缓氨水的挥发。因此为了考察 Na_2CO_3 浓度对焙烧产物浸出效果的影响, 进行不同 Na_2CO_3 浓度的浸出试验。试验条件为 Na_2SO_3 0.14 mol/L, $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 1.8 mol/L, CuSO_4 0.06 mol/L, 其他浸金工艺条件同上。试验结果如图 5 所示。

由图 5 可知, 随着 Na_2CO_3 浓度的增加, 金浸出率呈先增大后减小的趋势。当 Na_2CO_3 浓度为 0.05 mol/L 时, 金浸出率较低, 仅有 77.86%; 随着 Na_2CO_3 浓度的增加, 金浸出率不断上升, 当 Na_2CO_3 浓度为

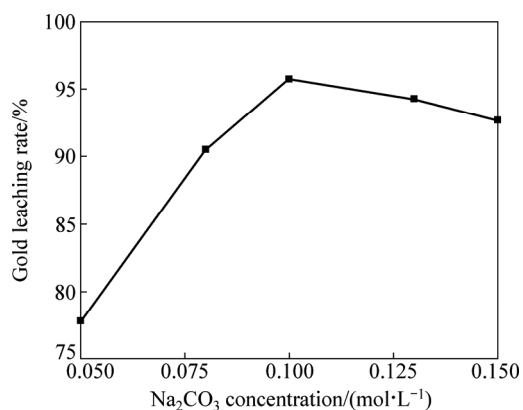


图 5 Na_2CO_3 浓度对金浸出率的影响

Fig. 5 Effect of Na_2CO_3 concentration on gold leaching rate

0.1 mol/L 时,金浸出率达到 95.73%;继续增大 Na₂CO₃ 浓度至 0.15 mol/L,金浸出率则减小至 92.67%。因此,Na₂CO₃ 浓度为 0.1 mol/L 较为合适。

2.2 响应面优化试验

通过金精矿中性焙烧产物的浸金单因素试验结果可知,添加剂 Na₂SO₃、CuSO₄、NH₃·H₂O 和 Na₂CO₃ 的浓度都对金浸出率有较大影响。为了进一步分析各添加剂及其相互作用对金浸出率显著性的影响,提高金的浸出率,采用响应面法优化金精矿中性焙烧产物的自浸金工艺条件,试验设计的中心点为单因素试验的最优工艺条件,即 Na₂SO₃ 0.14 mol/L, NH₃·H₂O 1.8 mol/L, CuSO₄ 0.06 mol/L, Na₂CO₃ 0.1 mol/L。

表 3 响应面试验结果

Table 3 Results of response surface experiment

Serial No.	Concentration/(mol·L ⁻¹)				Gold leaching rate, Y/%	Predicted leaching rate/%	Relative error/%
	Na ₂ SO ₃ , X ₁	CuSO ₄ , X ₂	NH ₃ ·H ₂ O, X ₃	Na ₂ CO ₃ , X ₄			
1	0.12	0.05	1.50	0.08	80.81	80.28	-0.66
2	0.16	0.05	1.50	0.08	83.26	81.94	-1.59
3	0.12	0.07	1.50	0.08	90.28	89.79	-0.54
4	0.16	0.07	1.50	0.08	91.81	91.32	-0.53
5	0.12	0.05	2.10	0.08	81.74	81.34	-0.49
6	0.16	0.05	2.10	0.08	85.15	82.97	-2.56
7	0.12	0.07	2.10	0.08	90.96	90.27	-0.76
8	0.16	0.07	2.10	0.08	93.15	91.76	-1.49
9	0.12	0.05	1.50	0.13	85.45	85.29	-0.19
10	0.16	0.05	1.50	0.13	86.28	84.89	-1.61
11	0.12	0.07	1.50	0.13	92.53	92.62	0.10
12	0.16	0.07	1.50	0.13	93.25	92.10	-1.23
13	0.12	0.05	2.10	0.13	88.60	87.00	-1.81
14	0.16	0.05	2.10	0.13	87.63	86.57	-1.21
15	0.12	0.07	2.10	0.13	93.98	93.75	-0.24
16	0.16	0.07	2.10	0.13	94.74	93.19	-1.64
17	0.10	0.06	1.80	0.10	93.84	94.03	0.20
18	0.18	0.06	1.80	0.10	91.68	95.13	3.76
19	0.14	0.04	1.80	0.10	60.78	63.29	4.13
20	0.14	0.08	1.80	0.10	78.29	79.42	1.44
21	0.14	0.06	1.20	0.10	92.71	93.62	0.98
22	0.14	0.06	2.40	0.10	93.04	95.77	2.93
23	0.14	0.06	1.80	0.05	85.50	87.43	2.26
24	0.14	0.06	1.80	0.15	92.15	93.86	1.86
25	0.14	0.06	1.80	0.10	95.16	95.78	0.65
26	0.14	0.06	1.80	0.10	95.61	95.78	0.18
27	0.14	0.06	1.80	0.10	94.40	95.78	1.46
28	0.14	0.06	1.80	0.10	96.38	95.78	-0.62
29	0.14	0.06	1.80	0.10	96.74	95.78	-0.99
30	0.14	0.06	1.80	0.10	96.69	95.78	-0.94
31	0.14	0.06	1.80	0.10	95.50	95.78	0.29

Note: R²=0.964

2.2.1 响应面试验设计及其结果

表 2 所列为响应面试验设计的因素水平及其编码。表 3 所列为基于中心组合设计的响应面试验结果。利用 Design-Expert 8.0 软件对表 3 中的数据进行多元

表 2 响应面试验设计的因素水平及其编码

Table 2 Experimental factors and levels of response surface methodology

Factor	Code	Level/(mol·L ⁻¹)				
		-2	-1	0	+1	+2
Na ₂ SO ₃	X ₁	0.10	0.12	0.14	0.16	0.18
CuSO ₄	X ₂	0.04	0.05	0.06	0.07	0.08
NH ₃ ·H ₂ O	X ₃	1.20	1.50	1.80	2.10	2.40
Na ₂ CO ₃	X ₄	0.05	0.075	0.10	0.125	0.15

回归拟合，金浸出率符合二次多项式模型(见式(4))，其中 X_1 、 X_2 、 X_3 、 X_4 的值为编码值。

$$\begin{aligned} Y= & 95.78+0.27 X_1+4.03 X_2+0.54 X_3+1.61 X_4- \\ & 0.032 X_1 X_2-0.00875 X_1 X_3-0.51 X_1 X_4- \\ & 0.15 X_2 X_3-0.54 X_2 X_4+0.16 X_3 X_4- \\ & 0.3 X_1^2-6.11 X_2^2-0.27 X_3^2-1.28 X_4^2 \end{aligned} \quad (4)$$

该二次多项式拟合的相关性系数 $R^2=0.946$ ，根据 R^2 与 1 的接近程度判断模型选择是否合适， R^2 与 1 越接近，说明所选模型的预测值与试验值越接近^[18]。图 6 所示为金浸出率试验值和预测值的对比结果，可见试验结果的点基本上分布在预测直线的周围，试验值与预测值非常接近，相对误差小于 5%，表明二次多项式模型适合描述试验因素和金浸出率的相关性。

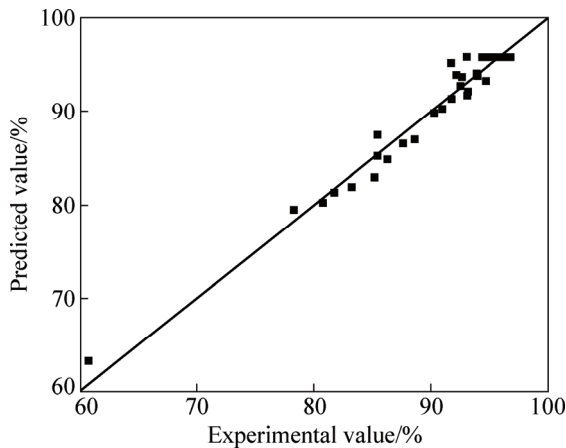


图 6 金浸出率试验值与预测值的对比
Fig. 6 Comparison of gold leaching experimental values with prediction values

2.2.2 方差分析

金浸出率的方差分析结果如表 4 所列。由表 4 可以看出，模型的 F 值为 30.62，说明此模型具有重要的参考价值，只有 0.01% 的机会使信噪比出现错误。模型的 P 值小于 0.0001，表明该二次多项式模型极显著($P \leq 0.01$ ，即说明所选模型可信度极高，模拟精确)，金浸出率模型可以用二次多项式(见式(4))描述。式(4)的回归系数显著性检验表明：因素 X_2 、 X_4 、 X_2^2 、 X_4^2 对金浸出率的影响极显著($P \leq 0.01$)，而 X_1 、 X_3 、 $X_1 X_2$ 、 $X_1 X_3$ 、 $X_1 X_4$ 、 $X_2 X_3$ 、 $X_2 X_4$ 、 $X_3 X_4$ 、 X_1^2 、 X_3^2 的交互效应对金浸出率的影响不显著($P > 0.05$)，即 CuSO_4 浓度和 Na_2CO_3 浓度对金浸出率的影响显著，并且 CuSO_4 浓度的影响显著性大于 Na_2CO_3 浓度。

2.2.3 金浸出率的响应曲面

利用 Design-Expert 8.0 软件绘制出试验因素对金

表 4 方差分析结果

Table 4 Results of variance analysis

Source	Sum of squares	df	Mean square	F value	P value
Model	1559.02	14	111.36	30.62	<0.0001
X_1	1.82	1	1.82	0.50	0.4900
X_2	390.43	1	390.43	107.37	<0.0001
X_3	6.98	1	6.98	1.92	0.1850
X_4	62.08	1	62.08	17.07	0.0008
$X_1 X_2$	0.0169	1	0.0169	0.0046	0.9465
$X_1 X_3$	0.0012	1	0.0012	0.0003	0.9856
$X_1 X_4$	4.24	1	4.24	1.17	0.2960
$X_2 X_3$	0.35	1	0.35	0.10	0.7610
$X_2 X_4$	4.73	1	4.73	1.30	0.2708
$X_3 X_4$	0.42	1	0.42	0.12	0.7376
X_1^2	2.59	1	2.59	0.71	0.4109
X_2^2	1066.62	1	1066.62	293.33	<0.0001
X_3^2	2.12	1	2.12	0.58	0.4561
X_4^2	47.21	1	47.21	12.98	0.0024
Residual	58.18	16	3.64		
Lack of fit	53.67	10	5.37	7.15	0.0128
Pure error	4.51	6	0.75		
Cor total	1617.20	30			

浸出率影响的响应曲面，通过三维曲面可评价试验因素对金浸出率的交互作用。如果一个试验因素的响应曲面坡度相对平缓，表明该因素对金浸出率影响较小，反之，如果一个试验因素响应曲面坡度较为陡峭，表明响应值对该因素水平的改变比较敏感^[19]。金浸出率的响应曲面如图 7 所示。

由图 7 可知，在 Na_2SO_3 浓度、 CuSO_4 浓度、 $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 浓度、 Na_2CO_3 浓度 4 个因素中， CuSO_4 浓度和 Na_2CO_3 浓度在试验条件范围内对金浸出率的影响最为显著，金浸出率随着 CuSO_4 浓度和 Na_2CO_3 浓度的增加，都呈先增大后减小的趋势，此试验结果与单因素试验结果规律性一致。

2.2.4 响应面优化及其模型验证

由于二次多项式模型(见式(4))对该浸出试验显著，因此，以金浸出率为响应值，通过 Design-Expert 8.0 软件得到响应面优化的最佳工艺条件为 Na_2SO_3 浓度 0.14 mol/L、 CuSO_4 浓度 0.06 mol/L、 $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 浓度 2.10 mol/L、 Na_2CO_3 浓度 0.12 mol/L。在此条件下，金浸出率的预测值为 97.17%。

为了验证响应面法优化结果的可靠性，在上述最

优条件下进行 3 组平行浸出试验。预测值与试验值的对比结果见表 5。在最优工艺条件下, 金浸出率分别为 96.74%、95.89%、96.31%, 取其平均值为试验结果, 金浸出率为 96.31%, 试验值与预测值基本吻合, 误差只有 0.86%, 说明此二次多项式模型可以对金浸出率进行分析和预测。

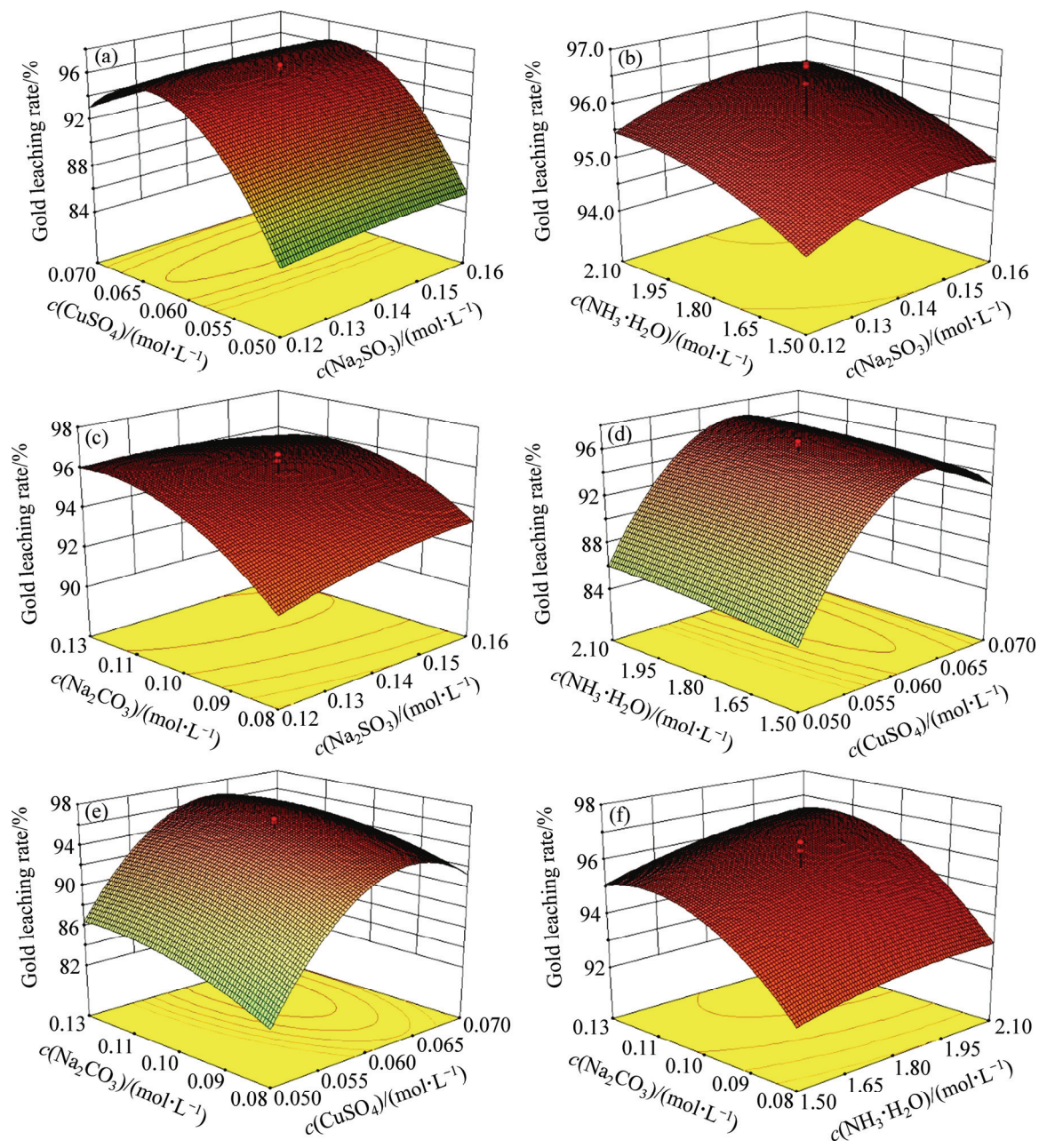


图 7 金浸出率的响应曲面

Fig. 7 Response surface of gold leaching rate: (a) Effect of Na_2SO_3 and CuSO_4 concentration; (b) Effect of Na_2SO_3 and $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ concentration; (c) Effect of Na_2SO_3 and Na_2CO_3 concentration; (d) Effect of CuSO_4 and $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ concentration; (e) Effect of CuSO_4 and Na_2CO_3 concentration; (f) Effect of $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ and Na_2CO_3 concentration

表 5 金浸出率预测值与试验值的对比结果

Table 5 Predicted and experimental values of gold leaching rate

Concentrate/ $(\text{mol}\cdot\text{L}^{-1})$				Gold leaching rate/%	
Na_2SO_3	CuSO_4	$\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$	Na_2CO_3	Experimental value	Predicted value
0.14	0.06	2.10	0.12	96.31	97.17

3 结论

1) 浸出单因素试验结果表明, 金浸出率随着 Na_2SO_3 浓度的增加逐渐增大, 而随 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 浓度、 CuSO_4 浓度、 Na_2CO_3 浓度的增加呈先增大后降低的趋势。

2) 通过响应面优化试验, 建立了金浸出率与各添加剂因素的二次多项式模型。方差分析结果表明, 模型的 R^2 为 0.946, P 值小于 0.0001, 说明此模型极显著; CuSO_4 浓度和 Na_2CO_3 浓度对金浸出率的影响显著, 并且 CuSO_4 浓度的影响显著性大于 Na_2CO_3 浓度。

3) 在 Na_2SO_3 0.14 mol/L, $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 2.1 mol/L, CuSO_4 0.06 mol/L, Na_2CO_3 0.12 mol/L 最优浸出工艺条件下, 金浸出率预测值为 97.17%, 试验值为 96.31%, 试验值与预测值的误差只有 0.86%, 响应面优化试验得到的二次多项式模型可对金精矿中性焙烧产物的金浸出率进行分析和预测。

REFERENCES

- [1] 钟俊. 非氰浸金技术的研究及应用现状[J]. 黄金科学技术, 2011, 19(6): 57–61.
ZHONG Jun. Research and application status of non-cyanide gold leaching technology[J]. Gold Science and Technology, 2011, 19(6): 57–61.
- [2] ALTANSUKH B, BURMAA G, NYAMDELGER S, ARIUNBOLOR N, SHIBAYAMA A, HAGA K. Gold recovery from its flotation concentrate using acidic thiourea leaching and organosilicon polymer[J]. International Journal of the Society of Material Engineering for Resources, 2014, 20: 29–34.
- [3] FENG D, van DEVENTER J S J. Oxidative pre-treatment in thiosulphate leaching of sulphide gold ores[J]. International Journal of Mineral Processing, 2010, 94(1/2): 28–34.
- [4] 李绍英, 赵留成, 孙春宝, 袁喜振, 王培龙, 邓祥意, 刘柯. 基于同时平衡原理的 $\text{Au-I-H}_2\text{O}$ 系热力学分析[J]. 中国有色金属学报, 2015, 25(7): 1987–1992.
LI Shao-ying, ZHAO Liu-cheng, SUN Chun-bao, YUAN Xi-zhen, WANG Pei-long, DENG Xiang-yi, LIU Ke. Thermodynamic analysis for $\text{Au-I-H}_2\text{O}$ system based on principle of simultaneous equilibrium[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2015, 25(7): 1987–1992.
- [5] WANG Hai-xia, SUN Chun-bao, LI Shao-ying, FU Ping-feng, SONG Yu-guo, LI Liang, XIE Wen-qing. Study on gold concentrate leaching by iodine-iodide[J]. International Journal of Minerals Metallurgy and Materials, 2013, 20(4): 323–328.
- [6] 赵留成, 孙春宝, 李绍英, 龚道振, 康金星. SO_3^{2-} 、 $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ 、 Cu^{2+} 对高硫精矿硫合剂浸出的影响[J]. 黄金, 2013, 34(10): 63–67.
ZHAO Liu-cheng, SUN Chun-bao, LI Shao-ying, GONG Dao-zhen, KANG Jin-xing. Effects of SO_3^{2-} , $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$, Cu^{2+} on high-sulfur gold concentrate leaching using Lime-Sulfur-Synthetic-Solution(LSSS)[J]. Gold, 2013, 34(10): 63–67.
- [7] 傅平丰, 孙春宝, 康金星, 龚道振. 硫合剂法浸金的原理、稳定性及应用研究进展[J]. 贵金属, 2012, 33(2): 67–70.
FU Ping-feng, SUN Chun-bao, KANG Jin-xing, GONG Dao-zhen. Progress of gold extraction mechanism, stability of extraction reagents and its application of Lime-Sulfur-Synthetic-Solution (LSSS) method[J]. Precious Metals, 2012, 33(2): 67–70.
- [8] 周源, 余新阳. 金银选矿与提取技术[M]. 北京: 化学工业出版社, 2011: 125.
ZHOU Yuan, YU Xin-yang. Gold and silver mineral processing and extraction technology[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2011: 125.
- [9] 李晶莹, 黄璐. 硫合剂法浸取废弃线路板中金的试验研究[J]. 黄金, 2009, 30(10): 48–51.
LI Jing-ying, HUANG Lu. Experimental research on leaching gold from waste printed circuit board by LSSS method[J]. Gold, 2009, 30(10): 48–51.
- [10] 陈怡, 宋永辉. 某碳质金精矿硫合剂法浸出试验研究[J]. 黄金, 2012, 33(3): 43–46.
CHEN Yi, SONG Yong-hui. Study on leaching gold from carbonaceous gold ores by lime-sulphur-synthetic-solution[J]. Gold, 2012, 33(3): 43–46.
- [11] 赵留成, 寇珏, 孙春宝, 张舒婷, 王培龙, 刘柯. 载金硫化物焙烧-自浸出过程研究[J]. 工程科学学报, 2015, 37(8): 1000–1007.
ZHAO Liu-cheng, KOU Jue, SUN Chun-bao, ZHANG Shu-ting, WANG Pei-long, LIU Ke. Roasting and self-leaching process research of gold-bearing sulfides[J]. Chinese Journal of Engineering, 2015, 37(8): 1000–1007.
- [12] AZIZI D, SHAFAEI S Z, NOAPARAST M, ABDOLLAHI H. Modeling and optimization of low-grade Mn bearing ore leaching using response surface methodology and central composite rotatable design[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2012, 22(9): 2295–2305.
- [13] LI Dong, PARK K, WU Zhan, GUO Xue-yi. Response surface design for nickel recovery from laterite by sulfation-roasting-leaching process[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2010, 20(S1): s92–s96.
- [14] 夏玉峰, 杨建兵, 田永生, 杨显红. 基于响应面法的汽车离合器盘毂温锻-冷精整工艺多目标优化[J]. 中南大学学报(自然科学版), 2015, 46(9): 3203–3230.
XIA Yu-feng, YANG Jian-bing, TIAN Yong-sheng, YANG

- Xian-hong. Multi-object optimization of warm forging-cold sizing technology for automobile clutch disc-hub based on response surface model[J]. *Journal of Central South University (Science and Technology)*, 2015, 46(9): 3203–3230.
- [15] 李长龙, 彭金辉, 张利波, 李 雨, 雷 鹰, 段昕辉. 响应曲面法优化硫酸铵微波干燥工艺[J]. *化学工程*, 2011, 39(3): 8–12.
- LI Chang-long, PENG Jin-hui, ZHANG Li-bo, LI Yu, LEI Ying, DUAN Xin-hui. Optimization of microwave drying process for ammonia sulfate with response surface methodology[J]. *Chemical Engineering (China)*, 2011, 39(3): 8–12.
- [16] 周 军, 兰新哲, 宋永辉. 改性石硫合剂(ML)浸金试剂稳定性研究[J]. *稀有金属*, 2008, 32(4): 531–535.
- ZHOU Jun, LAN Xin-zhe, SONG Yong-hui. Study on stability of ML reagent[J]. *Chinese Journal of Rare Metals*, 2008, 32(4): 531–535.
- [17] SENANAYAKE G. Analysis of reaction kinetics, speciation and mechanism of gold leaching and thiosulfate oxidation by ammoniacal copper(II) solutions[J]. *Hydrometallurgy*, 2004, 75(1/4): 55–75.
- [18] 马致远, 杨洪英. 响应曲面法优化铜阳极泥微波浸出硒工艺[J]. *中南大学学报(自然科学版)*, 2015, 46(7): 2391–2397.
- MA Zhi-yuan, YANG Hong-ying. Microwave assisted leaching of selenium from copper anode slime optimized by response surface methodology[J]. *Journal of Central South University (Science and Technology)*, 2015, 46(7): 2391–2397.
- [19] YAN Hao, PENG Wen-jie, WANG Zhi-xing, LI Xin-hai, GUO Hua-jun, HU Qi-yang. Reductive leaching technology of manganese anode slag optimized by response surface methodology[J]. *The Chinese Journal of Nonferrous Metals*, 2013, 23(2): 528–534.

Gold self-leaching optimization of neutral roasted products of gold concentrate by response surface methodology

XU Tao¹, ZHAO Liu-cheng², LI Shao-ying²

(1. Department of Business Administration, Chinalco China Copper Corporation Limited, Beijing 100082, China;

2. College of Mining Engineering, North China University of Science and Technology, Tangshan 063009, China)

Abstract: The method of single experiment and response surface experiment were chosen to optimize the self-leaching process for roasted products of gold concentrate under neutral atmosphere. Different additives, such as Na_2SO_3 , CuSO_4 , $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$, Na_2CO_3 and their concentrations were also optimized. Effects of different additives and their interaction on gold leaching rate, significance and influence order, were analyzed. The results show that gold leaching rate gradually increases as the concentration of Na_2SO_3 increases. However, gold leaching rate first increases and then decreases with the concentrations of CuSO_4 , $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ and Na_2CO_3 . The concentrations of CuSO_4 and Na_2CO_3 have significant effects on the gold leaching rate, and the impact of the concentration of CuSO_4 upon the leaching rate is greater than that of Na_2CO_3 . The gold leaching rate reaches 96.31% under the optimum processing conditions that the concentration of Na_2SO_3 is 0.14 mol/L, $\text{NH}_3\cdot\text{H}_2\text{O}$ of 2.1 mol/L, CuSO_4 of 0.06 mol/L, Na_2CO_3 of 0.12 mol/L. The error value between the experimental and the predicted value is only 0.86%, indicating that the quadratic polynomial model deduced from the response surface methodology is reasonable. Meanwhile, the process of neutral roasting and gold self-leaching of gold concentrate provides a new way for the high-efficient non-cyanide leaching.

Key words: gold concentrate; neutral roasted product; gold self-leaching; non-cyanide leaching; response surface methodology

Received date: 2015-12-28; Accepted date: 2016-06-27

Corresponding author: ZHAO Liu-cheng; Tel: +86-15210662945; E-mail: zhaoliucheng2006@163.com

(编辑 王 超)