

基于 Box-Behnken 试验设计的柞水菱铁尾矿最佳回收工艺参数

刘明宝¹, 杨超普¹, 阎赞¹, 印万忠²

(1. 陕西省尾矿资源综合利用重点实验室, 商洛学院化学工程与现代材料学院, 陕西 商洛, 726000; 2. 东北大学资源与土木工程学院, 辽宁 沈阳, 110004)

摘要: 根据 Box-Behnken 中心组合试验设计原理, 在条件试验基础上, 采用六因素三水平的响应曲面分析法, 建立了柞水菱铁尾矿深度还原-磁选工艺的二次多项式模型, 试验以磁选铁精矿的品位为响应值作响应面和等高线值, 研究了不同试验条件对铁精矿品位的影响。结果表明, 基于 Box-Behnken 试验设计的响应面分析及模型拟合所得参数可靠, 在配碳量为 21.5%, 碳酸钠用量 14.1%, 焙烧温度 1278℃, 保温时间 125 min, -0.037 mm 含量为 86% 和磁场强度 260 mT 为时, 可获得品位为 90.86%, 回收率为 81.35% 的最终选别指标。

关键词: Box-Behnken 试验设计; 铁尾矿; 资源综合利用

doi:10.3969/j.issn.1000-6532.2018.04.035

中图分类号: TD989

文献标志码: A

文章编号: 1000-6532 (2018) 04-0152-06

随着钢铁工业的迅猛发展, 铁矿资源的开发规模日益扩大, 导致尾矿堆存规模不断扩张, 堆存的尾矿不仅占用大量土地, 造成资源浪费, 甚至还会污染环境^[1-2]。过去由于选矿技术水平的限制, 铁尾矿中剩余铁的回收利用率不高, 近年来, 深度还原-磁选联合工艺的进步为铁尾矿中铁的综合回收提供了良好的技术支撑, 其中的深度还原是指将复杂难选含铁物料在低于其熔化温度下, 用还原剂将含铁矿物还原成金属铁, 并使金属铁长成为一定粒度铁颗粒的过程^[3-5]。

柞水大西沟菱铁矿储量在 3 t 吨以上, 其全铁品位在 28% 左右。原矿目前采用的处理工艺主要为焙烧-磁选, 在多年的生产过程中, 积累了大量的尾矿资源, 针对柞水大西沟铁尾矿进行资源综合利用技术研究具有十分迫切的环境意义。

响应曲面法是由英国统计学家 G. Box 和 Wilso 在上世纪 50 年代提出来的^[6], 用来对所感兴趣的响应受多个变量影响的问题进行试验、建模和数据分析, 其目的是优化这个相应, 该方法在目前的工程试验中的应用范围越来越广, 基于此, 本试验在

该铁尾矿深度还原-磁选单因素试验研究的基础上, 采用 Box-Behnken 中心组合实验设计方法建立了最终铁精矿品位与各因子之间的数学模型, 以期获得最优工艺参数, 进而获得高品质铁精矿。

1 试验原料

1.1 矿石性质

原料取自柞水大西沟菱铁矿尾矿库, 主要化学组成、XRD 分别见表 1 和图 1, 粒度组成见表 2。

表 1 原矿化学组成分析 /%

Table 1 Chemical composition of the raw ore

TFe	SiO ₂	CaO	MgO	Al ₂ O ₃	P ₂ O ₅	SO ₃	K ₂ O
17.17	75.38	2.03	1.06	3.11	0.06	0.98	0.21

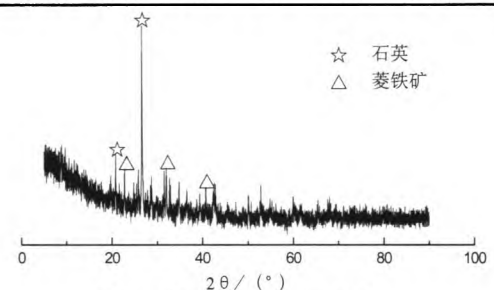


图 1 菱铁矿尾矿 XRD 图

Fig. 1 XRD pattern of siderite tailings

收稿日期: 2017-02-28; 改回日期: 2017-03-09

基金项目: 陕西省自然科学基金 (2016JQ5059); 陕西省教育厅重点实验室专项 (16JS030); 商洛市服务地方专项 (SK2014-01-10, SK2015-18); 商洛学院服务地方专项 (14SKY029)

作者简介: 刘明宝 (1982-) 男, 讲师, 博士, 主要从事复杂共伴生矿分离技术及理论研究。

表2 不同粒级铁含量分布

Table 2 Iron distribution of different size fractions

粒度/mm	产率/%	铁品位/%	铁分布率/%
+0.075	8.8	13.76	7.05
-0.075+0.045	16.52	15.78	15.18
-0.045+0.038	33.89	17.31	34.17
-0.038	40.79	18.35	43.59
合计	100.00	17.17	100.00

由表1和XRD分析结果可以看出,大西沟菱铁矿尾矿中的主要化学成分为石英,有用金属矿物主要为未充分还原的菱铁矿。由表2可知,该尾矿粒度较细,-0.075 mm以下粒级中铁元素含量占有率在90%以上,-0.045 mm粒级部分铁占有率将近80%,因此,铁矿物在该尾矿中的嵌布粒度很细,这也能是其中菱铁矿未充分还原的重要因素。采用常规选别工艺回收细粒嵌布的铁尾矿中铁的效果一般较差,而深度还原-磁选工艺则对该类型的铁矿物有较好的回收效果。

1.2 还原剂

试验所用还原剂为煤粉,块煤经干燥,破碎至-1 mm混匀备用,其工业分析结果见表3。

表3 还原煤粉工业分析结果/%

Table 3 Industry analysis results of reductant coal

LCad	Vad	Aad	Mad
65.22	18.07	6.51	10.2

由表3可见,所用煤固定碳含量较高,显示煤粉热值较高,可满足试验要求。

1.3 还原助剂

CaO(分析纯); Na₂CO₃(分析纯)。

1.4 主要仪器

电感耦合等离子光谱发生仪(ICP-AES); 马弗炉; 制样机; 磁选管等。

表4 还原煤粉工业分析结果/%

Table 4 Industry analysis results of reductant coal

因素	水平		
	-1	0	1
配碳量/%	20	21	22
碳酸钠用量/%	14	15	16
还原温度/℃	1265	1275	1285
保温时间/min	110	120	130
-0.037mm含量/%	78	83	88
磁场强度/mT	260	290	320

2 结果与讨论

2.1 Box-Behnken 试验因素与水平设计

由前期单因素实验结果可知,当配碳量为21%,碳酸钠用量为15%,还原温度为1275℃,保温时间为120 min,焙烧后产物-0.037 mm含量为83%,磁场强度为290 mT时可获得品位为83.01%,回收率为88.90%的最终选别指标。在此基础上,Box-Behnken试验的因素与水平设计见表4。

2.2 Box-Behnken 试验及结果

对配碳量(A),碳酸钠含量(B),还原温度(C),保温时间(D),磨矿细度(E)及磁场强度(F)作如下变换:

$$X_i = (Z_i - Z_0) / Z$$

式中,X_i为自变量的编码值,Z_i为自变量的真实值,Z₀为试验中心点处自变量的真实值,Z为自变量的变化步长,以铁精矿品位为响应值(Y)。柞水地区菱铁尾矿深度还原-磁选铁精矿品位响应曲面分析试验设计方案与试验结果见表5。

表5 Box-Behnken 试验设计与结果

Table 5 Designs and results of Box-Behnken test

序号	A/%	B/%	C/°C	D/min	E/sec	F/mT	Y/%	回收率/%
1	0	1	-1	0	1	0	81.00	88.00
2	0	1	1	0	-1	0	87.92	82.12
3	1	0	1	0	0	-1	88.23	82.52
4	1	0	0	-1	-1	0	82.30	86.21
5	0	-1	0	0	-1	-1	84.07	85.04
6	-1	0	0	1	1	0	84.01	84.81
7	1	1	0	1	0	0	87.88	82.07

8	0	0	-1	-1	0	1	79.43	90.23
9	0	1	0	0	1	1	85.08	85.99
10	0	-1	0	0	1	-1	87.03	81.57
11	-1	0	-1	0	0	-1	80.64	88.35
12	-1	0	1	0	0	1	85.00	87.38
13	-1	0	0	-1	-1	0	80.23	88.23
14	1	0	-1	0	0	-1	83.94	86.66
15	0	1	-1	0	-1	0	80.40	89.01
16	0	-1	-1	0	-1	0	78.66	90.77
17	0	-1	1	0	-1	0	83.11	84.77
18	0	0	0	0	0	0	83.12	87.95
19	0	0	-1	1	0	1	84.05	87.59
20	1	0	0	1	1	0	87.84	81.20
21	0	0	0	0	0	0	83.01	88.90
22	0	-1	1	0	1	0	85.31	87.68
23	0	1	0	0	-1	1	79.13	89.46
24	0	0	1	1	0	-1	88.71	82.11
25	0	0	1	-1	0	1	88.45	82.35
26	0	-1	0	0	1	1	80.14	88.21
27	-1	-1	0	1	0	0	87.99	81.30
28	0	1	1	0	1	0	85.45	87.54
29	0	0	0	0	0	0	83.01	88.11
30	-1	1	0	1	0	0	83.36	83.87
31	0	0	0	0	0	0	83.01	88.11
32	0	1	0	0	-1	-1	81.36	88.07
33	0	-1	-1	0	1	0	82.95	86.60
34	1	-1	0	1	0	0	88.29	82.58
35	-1	0	-1	0	0	1	80.38	89.40
36	0	0	1	1	0	1	86.60	87.68
37	0	-1	0	0	-1	1	79.13	90.92
38	0	0	-1	1	0	-1	86.76	83.39
39	1	0	0	1	-1	0	86.20	83.21
40	1	0	1	0	0	1	84.30	81.77
41	1	-1	0	-1	0	0	84.15	81.76
42	0	0	0	0	0	0	83.01	88.23
43	1	0	-1	0	0	1	80.47	82.79
44	-1	-1	0	-1	0	0	73.83	91.70
45	1	1	0	-1	0	0	79.40	89.22
46	1	0	0	-1	1	0	83.34	87.79
47	-1	0	0	1	-1	0	85.20	86.93
48	-1	0	1	0	0	-1	86.74	84.64
49	0	1	0	0	1	-1	85.36	87.07
50	0	0	0	0	0	0	83.01	88.12
51	-1	1	0	-1	0	0	79.36	89.87

52	0	0	1	-1	0	-1	78.40	91.34
53	-1	0	0	-1	1	0	78.26	91.53
54	0	0	-1	-1	0	-1	76.55	92.88

2.3 模型的建立及其显著性检验

对表 5 数据进行多元回归拟合得到铁精矿品位(Y)与配碳量(A), 碳酸钠用量(B), 还原温度(C), 保温时间(D), 磨矿细度(E) 及磁场强度(F) 的二次多项式回归模型如下式所示, 单因素对铁精矿品位的微扰曲线见图 2, 模型显著性检验见表 6。

$Y=83.12+1.31A+0.043B+2.46C+3.3D+0.75E-0.9F-0.76AB-0.32AC-0.49AD+0.73AE-0.68AF+0.64BC-0.73BD-0.15BE+1.16BF-1.55CD-0.65CE+0.74CF+0.17DE-1.47DF$

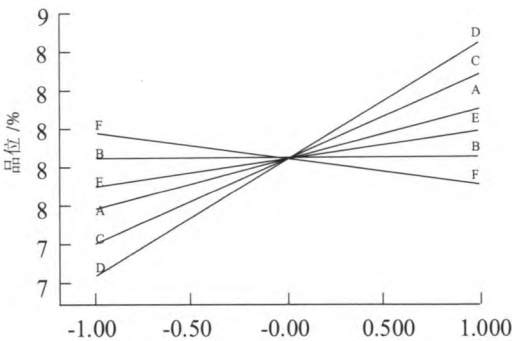


图 2 不同因素对铁精矿品位的微扰曲线

Fig. 2 Perturbation curve of different factors to concentrate grade

表 6 回归模型方差分析结果

Table 6 Analysis results of variance for quadratic polynomial model

变异来源	平方和	自由度	均方	F 值	P 值	备注
模型	565.02	21	26.91	10.25	<0.001	Significant
残差	137.78	32	4.31	-	-	-
失拟项	137.77	27	5.1	2530.29	5.25	Not significant
纯误差	0.01	5	2×10^{-3}	-	-	-
总和	702.8	53	-	-	-	-

由 $F=10.25>F(21, 6)$ 及 $p<0.001$ 可知, 试验所建立的模型显著, 失拟项 $F=5.25<F(6, 27)=3.78$ 可知, 失拟项不显著; 复相关系数 $R=0.9785$, 说明模型拟合程度较好, 误差较小, 可以用此模型来分析和预测柞水菱铁尾矿深度还原 - 磁选工艺参数及结果。由拟合模型参数系数及图 2 可推断出, 在六个影响因素中除磁场强度对精矿指标有负影

响外, 其余各因素对精矿品位均为正影响, 其中碳含量, 还原温度及保温时间对最终铁精矿品位影响最为显著。

2.4 响应曲面分析及优化

在其它因素为 0 水平时考察三个主要影响因素(配碳量, 还原温度及保温时间)对铁精矿指标的影响, 结果见图 3~5。

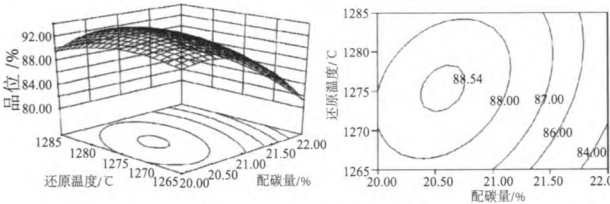


图 3 配碳量、还原温度及其交互作用对铁精矿品位的影响

Fig. 3 Response surface plot and counter plot of the effect of reducing temperature and carbon additive amount and their mutual interactions on the concentrate grade

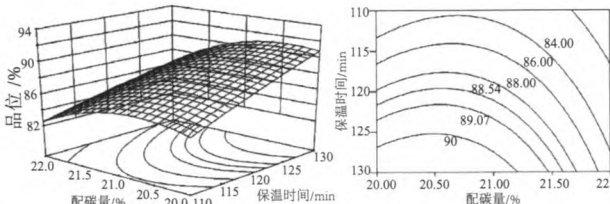


图 4 配碳量、保温时间及其交互作用对铁精矿品位的影响

Fig. 4 Response surface plot and counter plot of the effect of reducing time and carbon additive amount and their mutual interactions on the concentrate grade

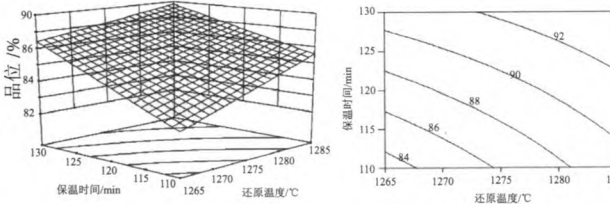


图 5 还原温度、保温时间及其交互作用对铁精矿品位的影响

Fig.5 Response surface plot and counter plot of the effect of reducing temperature and carbon additive amount and their mutual interactions on the concentrate grade

比较三组图可以看出, 配碳量与还原温度有一最佳相互作用范围, 当碳含量一定时, 精矿品

位均随着保温时间延长而升高但逐渐趋于平缓,在还原温度一定时,精矿品位为随保温时间的增加而增加。由等温曲线形状可以看出,三个主要影响因素之间的交互作用明显,表现为曲线响应面较陡峭,等高线变化较为显著。如能将三者协同优化则选择最终精矿品位有进一步提升的可能,为进一步确定最佳点,对模型中的各参数求一阶导数可得碳含量在碳含量 21.46%,碳酸钠含量 14.07%,焙烧温度 1278℃,保温时间 125 min, -0.037 mm 含量为 85.6%,磁场强度 260 mT 时,可获得铁精矿品位 91.7% 的理论值。为验证模型的可靠性,试验在上述优化条件的基础上进行时实验室试验,为简化操作条件,上述参数优化为:碳含量 21.5%,碳酸钠含量 14.1%,焙烧温度 1278℃,保温时间 125 min, -0.038 mm 86%,磁场强度 260 mT,在此条件下进行 4 次深度还原 - 磁选试验,4 次试验最终铁精矿品位平均值为 90.86%,与理论值相比,相对误差为 1.07%,此时精矿中铁回收率为 81.35%,说明基于 Box-Behnken 试验设计的响应面分析及模型拟合所得的最佳工艺参数可靠,具备实际应用价值。

3 结 论

(1) 基于 Box-Behnken 中心组合试验设计,通过二次回归得到了深度还原 - 磁选工艺最终铁精矿品位和各影响因素关系的回归模型,试验结果说明该模型合理可靠,能做出较好的预测,在一

定程度上弥补了常用单因素试验的不足,为有价资源回收试验方法的拓展和应用提供了良好借鉴。

(2) 响应面及等高线趋势表明主要影响因素间的交互作用明显,通过对二次回归模型求导可得优化工艺参数为:碳含量 21.46%,碳酸钠含量 14.07%,焙烧温度 1278℃,保温时间 125 min, -0.037 mm 含量为 85.6%,磁场强度 260 mT。在对参数进行适当简化后可获得品位为 90.86%,铁回收率为 81.35% 的最终铁精矿。因此,在单因素实验基础上对各因素采用 Box-Behnken 试验方法进行进一步的优化是可行的,各影响因素与目标值之间函数化也可大大减少试验的盲目性,与采用常规试验方法的研究相比,该试验方法可进一步提高柞水地区铁资源综合利用度。

参考文献:

- [1] 徐宝金,丁开振,常鲁平. 安徽某铁尾矿回收工艺研究[J]. 现代矿业, 2016,(5):65-67.
- [2] 朱敏聪,朱申红,李京芳. 从低品位铁尾矿中磁选回收铁的试验研究[J]. 矿冶, 2008, 17(2):27-30.
- [3] 鞠会霞,孙体昌,赵贵军. 鲁南矿业公司铁尾矿深度还原-磁选提铁试验[J]. 金属矿山, 2015, (8):169-172.
- [4] 袁致涛,马玉新,李庚辉,等. 某铁尾矿再回收铁矿物试验研究[J]. 矿冶工程, 2016,36 (4):37-44.
- [5] 范敦城,倪文,李瑾,等. 铁尾矿再选粗精矿深度还原含铁硅酸盐矿物的生成与还原[J]. 矿冶工程, 2016,36 (4):37-44.
- [6] 李云雁,胡传荣. 试验设计与数据处理[M]. 2 版. 北京: 化学工业出版社, 2008:199-201.

(下转 108 页)

欢迎投稿 欢迎订阅 欢迎刊登广告

Technology for Reducing the Flammability of High-sulfur Coal Gangue

Cheng Rong, Liao Xiangwen, Shu Rongbo, Xu Ming, Ji Chengqing

(Institute of Multipurpose Utilization of Mineral Resources, Chinese Academy of Geological Sciences, Research Center of Multipurpose Utilization of Metal Mineral Resources of China Geological Survey, Chengdu, Sichuan, China)

Abstract: As the serious environmental pollution problem caused by the flammability of high-sulfur coal gangue, the experiments were carried out to recover pyrite with biological flotation agent (*Mycobacterium phlei*). And the biological flotation effect was evaluated by response surface method (RSM). The research results showed when the biological process of one roughing and two cleanings for the separating flotation of pyrite, the qualified concentrate with the productivity of 8.4%, the recovery of 84.1% and the grade of 33.64% was obtained. The grade of flotation tailings was 0.58% under the standard of 1%, which could be direct dumped or recycled. This environmental friendly method was showed that high-sulfur coal gangue resource utilization was feasible.

Keywords: High-sulfur coal gangue; *Mycobacterium phlei*; Biological flotation; Pyrite

////////////////////////////////////
(上接 156 页)

The Optimum Recovery Process Parameters of Siderite Tailings in Zhashui Based on the Box-Behnken Center-united Experimental Method

Liu Mingbao^{1,2}, Yang chaopu^{1,2}, Yan zan^{1,2}, Yin Wanzhong³

(1. Shaanxi Key Laboratory of Comprehensive Utilization of Tailings Resources, Shangluo, Shaanxi, China;

2. College of Chemical Engineering and Modern Material, Shangluo University, Shangluo, Shaanxi, China;

3. College of Resources and Civil Engineering, Northeastern University, Shenyang, Liaoning, China)

Abstract: the parameters of deep reduction-magnetic separation process were researched in this paper. Based on one-factor tests, the Box-Behnken center-united experimental method with 6 factors and 3 levels was adopted. A second order quadratic equation for deep reduction-magnetic separation process of siderite tailings in Zhashui was established and the iron grade of the magnetic concentrate was used as the response value for contour and response surface. The effect of dosage of coal and Na_2CO_3 , reducing temperature and time, grinding time and magnetic field strength was explored on the basis of the analysis of the response surface plots and their corresponding contour plots. The results indicated that the analysis of the model was credible and the optimum process condition was obtained as follows: coal dosage: 21.5%, Na_2CO_3 dosage: 14.1%, reducing temperature: 1278℃, reducing time: 125 min, -0.037 mm fraction: 86%, magnetic field strength: 260 mT. Under the optimized condition, a concentrate with iron grade of 90.36% and recovery of 81.35% was obtained.

Keywords: Box-Behnken experimental design; Iron ore tailings; Comprehensive utilization of resources