

## 响应曲面法优化 $\text{Na}_2\text{S}$ – $\text{NaOH}$ 体系浸出硫酸烧渣中的砷

王永良<sup>1)</sup>, 肖力<sup>1 2)</sup>, 付国燕<sup>1 2)</sup>, 刘娅<sup>1 2)</sup>, 韩培伟<sup>1)</sup>, 钱鹏<sup>1)</sup>, 叶树峰<sup>1)</sup>✉, 陈运法<sup>1)</sup>

1) 中国科学院过程工程研究所多相复杂系统国家重点实验室, 北京 100190 2) 中国科学院大学化学与化工学院, 北京 100049  
✉通信作者, E-mail: sfye@ipe.ac.cn

**摘要** 硫酸烧渣作为重要的二次资源, 除砷有利于提高烧渣的价值. 针对某含砷硫酸烧渣预处理脱砷的问题, 采用  $\text{Na}_2\text{S}$ – $\text{NaOH}$  体系浸出烧渣中的砷. 首先采用单因素试验确定  $\text{Na}_2\text{S}$  和  $\text{NaOH}$  的药剂用量范围, 进而采用响应曲面法优化浸出工艺参数. 结果显示, 响应曲面法优化  $\text{Na}_2\text{S}$ – $\text{NaOH}$  体系中浸出砷的模型显著,  $\text{Na}_2\text{S}$ 、 $\text{NaOH}$  和温度均对砷的浸出有着重要影响, 且温度越高越有利于砷的浸出,  $\text{Na}_2\text{S}$  和  $\text{NaOH}$  之间存在明显的交互作用. 在  $80\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $\text{NaOH}$  浓度为  $0.34\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 、 $\text{Na}_2\text{S}$  浓度为  $0.12\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  时, 浸出后烧渣中的砷质量分数可以降低到  $0.08\%$ .

**关键词** 硫酸烧渣; 砷; 响应曲面; 浸出; 预处理

**分类号** TD98

## Arsenic removal from pyrite cinders in $\text{Na}_2\text{S}$ – $\text{NaOH}$ solution with parameters optimized using the response surface methodology

WANG Yong-liang<sup>1)</sup>, XIAO Li<sup>1 2)</sup>, FU Guo-yan<sup>1 2)</sup>, LIU Ya<sup>1 2)</sup>, HAN Pei-wei<sup>1)</sup>, QIAN Peng<sup>1)</sup>, YE Shu-feng<sup>1)</sup>✉, CHEN Yun-fa<sup>1)</sup>

1) State Key Laboratory of Multiphase Complex Systems, Institute of Process Engineering, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China

2) School of Chemistry and Chemical Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

✉ Corresponding author, E-mail: sfye@ipe.ac.cn

**ABSTRACT** Pyrite cinder is one of the important secondary resources; however, the arsenic typically contained in pyrite cinder is harmful to metallurgical process. The removal of arsenic can improve the value of pyrite cinders. Thus, a pretreatment method for removal of arsenic from pyrite cinders using a  $\text{Na}_2\text{S}$ – $\text{NaOH}$  solution was investigated in this paper. A single factor experiment was conducted to determine the appropriate concentration ranges of  $\text{NaOH}$  and  $\text{Na}_2\text{S}$ , and then the response surface methodology (RSM) was used to optimize the leaching parameters. The results indicate that the optimized RSM model is reliable. The temperature,  $\text{NaOH}$  concentration, and  $\text{Na}_2\text{S}$  concentration have significant effects on the arsenic removal. The higher temperature is found to be favorable to the leaching of arsenic, and a significant interaction is found between the concentrations of  $\text{NaOH}$  and  $\text{Na}_2\text{S}$ . The content of arsenic in the leaching slag can be reduced to  $0.08\%$  at  $80\text{ }^\circ\text{C}$  when the concentration of  $\text{NaOH}$  and  $\text{Na}_2\text{S}$  is  $0.34$  and  $0.12\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ , respectively.

**KEY WORDS** pyrite cinder; arsenic; response surface methodology; leaching; pretreatment

硫酸烧渣是硫铁矿生产硫酸过程中产生的废渣, 每生产  $1\text{ t}$  硫酸就要排出  $0.7\sim 1.0\text{ t}$  的烧渣. 在

中国, 至少有  $30\%$  的硫酸是通过焙烧硫铁矿生产的, 每年会产生超过  $1000\text{ 万 t}$  烧渣<sup>[1-2]</sup>. 其中, 大约

收稿日期: 2017-09-12

基金项目: 国家高技术研究发展计划资助项目(2011AA06A104); 十二五国家科技支撑计划资助项目(2012BAB08B04)

有 30% 的硫酸烧渣用于制造水泥、砖、红瓦等建筑材料,但大部分烧渣作为废弃物被堆存起来<sup>[3-4]</sup>。这不仅占用大量的土地,还可能对堆存地周围的土壤、水体和大气造成严重的环境污染,危害公共健康和安<sup>[5]</sup>。

随着矿物资源的不断利用,以及环境保护的需要,从硫酸烧渣中回收有价金属受到越来越广泛的关注。硫酸烧渣中除了铁具有较大的回收利用价值外<sup>[6-8]</sup>,还含有少量的 Cu、Zn、Pb、Au、Ag 等重金属和贵金属元素,具有重要的回收价值<sup>[9-11]</sup>。但是,硫铁矿中通常会含有一定量的砷,砷的存在不仅是造成环境污染的重要原因,还会影响烧渣的二次资源利用。在对硫酸烧渣进行二次资源利用前,通常需要先去除其中的砷<sup>[12]</sup>。张广伟等<sup>[13]</sup>通过重选-化学酸洗工艺,除去某硫酸烧渣中大部分的砷,从而实现<sup>[14]</sup>对铁资源的利用。常耀超等<sup>[14]</sup>首先利用酸浸工艺脱除硫酸烧渣中的砷,并用硫化钠将浸出液中的砷沉淀下来,进而采用高温氯化工艺提取有色金属。韩远燕与戴惠新<sup>[15]</sup>采用磁选-酸浸联合流程去除硫酸烧渣中的砷,同时回收其中的铁。因此,目前酸浸工艺是去除烧渣中砷的主要方法。但酸浸会造成烧渣中铜、锌、铁等有价元素的大量损失。而在 Na<sub>2</sub>S-NaOH 体系中浸出砷可以大大减少有价金属的损失<sup>[16]</sup>。响应曲面分析是一种最优化的方法,它将体系的目标响应量作为一个或者多个因素的函数,通过合理的实验来设计分析多因素与响应值,通过较少的试验组数对影响实验的因子及交互作用进行综合评价以确定最佳水平范围<sup>[17]</sup>。

本研究拟采用响应曲面法对 Na<sub>2</sub>S-NaOH 体系浸出硫酸烧渣中砷的过程进行分析,探讨 Na<sub>2</sub>S 浓度、NaOH 浓度和反应温度 3 个主要影响因子对烧渣中砷浸出效率的影响,通过建立响应曲面模型确定各影响因子间的交互作用,优化浸出工艺。

## 1 实验原料与实验方法

### 1.1 实验原料及性质

本研究所用硫酸烧渣取自中国山东某企业生产硫酸所得到的尾渣。采用等离子体质谱仪(ICP-OES, optima 8000)和原子吸收光谱仪(AAS, WFX-130A)对烧渣中的主要有价化学成分进行分析,主要有价元素成分的分析结果如表 1 所示。X 射线衍射仪(XRD, X'Pert PRO MPD)分析结果如图 1 所示,烧渣的主要成分是 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>和 Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>,以及 SiO<sub>2</sub>。烧渣中总铁质量分数为 59.39%,其中 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>为

72.9%, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>为 17.3%,具有较大的回收利用价值。此外,渣中还含 Zn1.51%, Au 1.4 g·t<sup>-1</sup>,同样存在较大的利用价值。但是,由于烧渣中含有 0.45% 的砷,不利于烧渣的二次资源利用,在进行二次资源回收利用时应先除去其中的砷。

表 1 硫酸烧渣中主要有价元素含量(质量分数)

Table 1 Chemical composition of the pyrite cinders %

Cu	Zn	Pb	Fe	As	Au/(g·L <sup>-1</sup> )	Ag/(g·L <sup>-1</sup> )
0.79	1.51	0.92	59.39	0.45	1.40	4.92

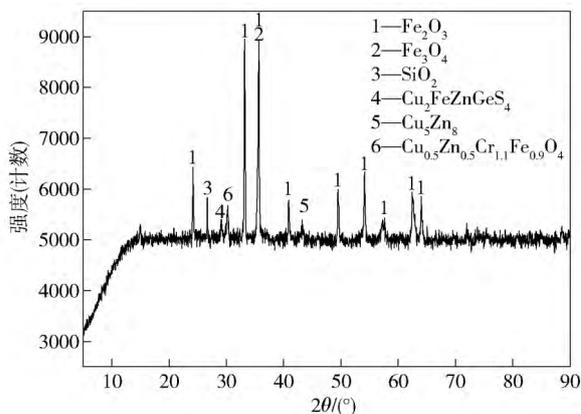


图 1 硫酸烧渣 X 射线衍射分析结果

Fig. 1 XRD result of the pyrite cinders

经过高温焙烧后的硫酸烧渣,在扫描电镜(SEM, JSM-7001F + INCA-MAX)下观察到烧渣的表面形貌如图 2 所示。图中 1 处的能谱结果可以看到 As 的质量分数为 0.83%,氧质量分数为 28.43%,As 可能存在氧化砷或者砷酸铁等形态。

### 1.2 实验与测试

将一定量烧渣细磨后,加入到 250 mL 锥形瓶中,倒入一定浓度的碱液,置于水浴锅中搅拌(DF-101S 集热式恒温加热磁力搅拌器)。打开加热器,水浴升温至指定温度,开始计时为 0 h。反应完毕后,过滤矿浆液固分离(SHZ-D(III)循环水式真空泵)。浸出渣烘干后采用 X 射线衍射仪(X'Pert PRO MPD)、电感耦合等离子体发射光谱仪(Optima 8000)和原子吸收光谱仪(WFX-130A)测试其中物质及含量,扫描电子显微镜对其形貌进行分析。浸出液采用电感耦合等离子体发射光谱仪和原子吸收光谱仪对其中的 As 及其他元素进行分析。

## 2 结果与讨论

### 2.1 单因素试验

#### 2.1.1 Na<sub>2</sub>S 浓度的影响

碱性体系下 Na<sub>2</sub>S 可以同氧化砷发生下列反应,

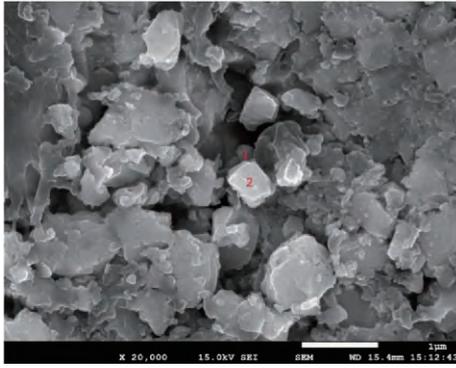
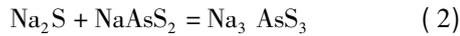
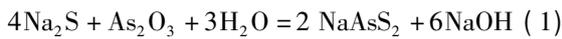


图 2 硫酸烧渣表面形貌扫描分析结果  
Fig.2 SEM/EDS result of the pyrite cinders

元素	质量分数/%	
	1	2
O K	28.43	31.97
Al K	0.52	—
Si K	0.87	—
Fe K	69.35	68.03
As L	0.83	—
总计	100.00	100.00

使砷以  $AsS_3^{3-}$  的形式进入浸出液而实现砷的分离, 铜、铅、锌在此过程中基本不反应而留在渣中:



因此, 反应过程中硫化钠用量对砷的浸出有着重要影响. 本研究首先保持 NaOH 用量恒定在  $0.5 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 在  $80^\circ\text{C}$ 、固液质量比为 1:5 的条件下浸出 5 h, 得到浸出后硫酸烧渣中砷质量分数如图 3 所示.

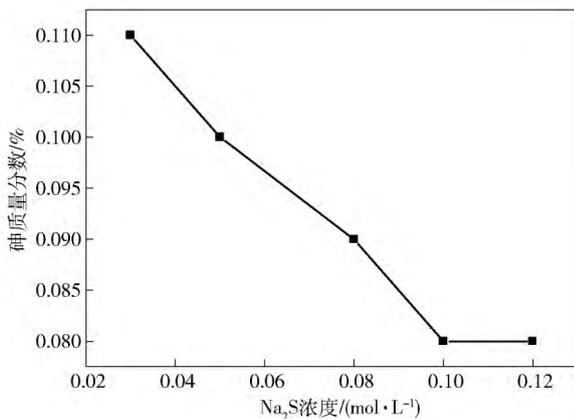


图 3  $Na_2S$ -NaOH 体系中  $Na_2S$  浓度变化对硫酸烧渣中砷浸出的影响

Fig.3 Effect of  $Na_2S$  concentration on the arsenic content in leaching residue

图 3 中显示, 随着硫化钠用量的增大, 浸出后渣中砷的含量逐渐降低, 当硫化钠浓度增加到  $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  时, 浸出后硫酸烧渣中砷的含量几乎不再降低. 因此, 本研究选取  $0.03 \sim 0.12 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  作为  $Na_2S$  用量的研究范围.

### 2.1.2 NaOH 浓度的影响

NaOH 浓度也是影响砷浸出的重要因素, 氧化砷同样也会和 NaOH 发生反应:



保持  $Na_2S$  浓度为  $0.08 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ , 反应温度为  $80^\circ\text{C}$ ,

固液质量比 1:5, 浸出 5 h 后, 过滤得到的浸出渣中砷质量分数如图 4 所示.

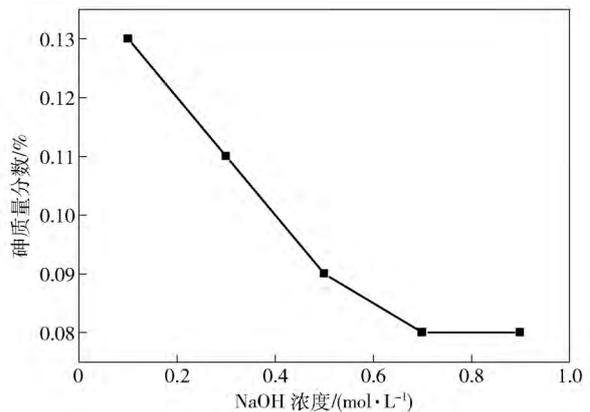


图 4  $Na_2S$ -NaOH 体系中 NaOH 浓度变化对硫酸烧渣中砷浸出的影响

Fig.4 Effect of NaOH concentration on the arsenic content in leaching residue

图 4 结果显示, 随着 NaOH 浓度的增加, 浸出渣中砷含量逐渐降低, 当 NaOH 浓度达到  $0.7 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  时, 渣中砷含量不再降低. 考虑到  $Na_2S$  和 NaOH 的交互作用, 选取 NaOH 浓度为  $0.1 \sim 0.9 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  做为考察范围.

## 2.2 响应曲面法优化过程

### 2.2.1 分析方案及试验结果

在  $Na_2S$ -NaOH 浸出体系中,  $Na_2S$  和 NaOH 用量是影响砷浸出的主要因素, 决定了砷的浸出效率. 根据前面单因素试验结果, 将  $Na_2S$  和 NaOH 的浓度考察范围分别设定为  $0.03 \sim 0.12$  和  $0.1 \sim 0.9 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ . 此外, 反应温度对砷的浸出也会产生重要影响, 通常温度越高, 反应效率也越高. 但是, 当温度过高时, 不仅会造成溶液的大量挥发, 也会导致  $Na_2S$  的加速分解, 造成药剂的大量消耗, 甚至产生硫化氢有害气体. 因此, 本研究希望将反应温度控制在水的沸点以下, 考虑到实际情况选择  $25 \sim 90^\circ\text{C}$  作为

考察范围. 本研究主要考察 NaOH 浓度  $W_1$ 、Na<sub>2</sub>S 浓度  $W_2$ 和温度  $T$  3 个影响因素. 将浸出后硫酸烧渣中砷的质量分数作为响应因子. 通过中心组合设计方法得到的试验设计及试验结果如表 2 所示.

### 2.2.2 模型可信度分析

响应曲面分析模型的方差分析结果如表 3 所示. 该模型  $P=0.0001$  ( $P$  为不拒绝原假设的性质), 说明只有 0.01% 的机会模型  $F$  值 ( $F$  为整个拟合过程的显著性) 会出现大的抗噪能力. 表 3 中一次项  $W_1$ 、 $W_2$ 、 $T$  和  $W_1 \cdot W_2$  的  $P$  值分别为 0.0049、0.0014、0.0446 和 0.0023, 都小于 0.05, 说明  $W_1$ 、 $W_2$ 、 $T$  和  $W_1 \cdot W_2$  对响应值的影响是显著的. 同时, 可以看出  $W_2$  的  $P$  值小于  $W_1$  的  $P$  值, 说明因子  $W_2$  对响应值的影响较  $W_1$  更大, 并且二者之间存在交互作用, 各因素对砷去除率的影响大小关系顺序为:  $W_2 > W_1 > T$ . 图 5 模型的预测值和实际值的对比曲线也可以发现, 各个点都在直线的两侧, 接近一条直线, 说明模型是可信的.

### 2.2.3 试验因素的影响分析

利用 Design-Exert 软件对各因素之间的交互作用进行响应曲面分析, 得到不同温度下等高线图和响应曲面图如图 6 所示.

表 2 响应曲面试验设计编码及试验结果

**Table 2** Code results of response surface methodology

序号	$W_1$	$W_2$	$T$	As 质量分数 / %
1	1.000	1.000	-1.000	0.14
2	0	0	0	0.13
3	0	1.000	0	0.12
4	0	0	0	0.13
5	0	0	0	0.13
6	1.000	-1.000	-1.000	0.19
7	-1.000	1.000	-1.000	0.16
8	1.000	1.000	1.000	0.10
9	1.000	-1.000	1.000	0.13
10	0	0	0	0.13
11	0	0	1.000	0.10
12	-1.000	0	0	0.14
13	0	0	-1.000	0.15
14	-1.000	-1.000	-1.000	0.36
15	-1.000	1.000	1.000	0.09
16	1.000	0	0	0.12
17	-1.000	-1.000	1.000	0.21
18	0	0	0	0.13
19	0	0	0	0.13
20	0	-1.000	0	0.15

表 3 响应曲面方差分析表

**Table 3** Response surface analysis of variance

方差来源	平方和	自由度	均方	$F$ 值	$P$ 值	显著性
模型	0.058	9	$6.472 \times 10^{-3}$	14.82	0.0001	***
$W_1$	5.630E-003	1	$5.630 \times 10^{-3}$	12.89	0.0049	*
$W_2$	8.384E-003	1	$8.384 \times 10^{-3}$	19.19	0.0014	**
$T$	2.301E-003	1	$2.301 \times 10^{-3}$	5.27	0.0446	*
$W_1 \cdot W_2$	7.200E-003	1	$7.200 \times 10^{-3}$	16.48	0.0023	*
$W_1 \cdot T$	1.800E-003	1	$1.800 \times 10^{-3}$	4.12	0.0698	
$W_2 \cdot T$	1.250E-003	1	$1.250 \times 10^{-3}$	2.86	0.1216	
$W_1^2$	6.568E-004	1	$6.568 \times 10^{-4}$	1.50	0.2482	
$W_2^2$	1.151E-003	1	$1.151 \times 10^{-3}$	2.63	0.1357	
$T^2$	3.006E-004	1	$3.006 \times 10^{-4}$	0.69	0.4262	
残差	4.368E-003	10	$4.368 \times 10^{-4}$			
失拟误差	4.368E-003	5	$8.736 \times 10^{-4}$			
纯误差	0	5	0			
总和	0.063	19				

注:  $P < 0.05$  说明该因素对响应值的影响显著, \* 表示显著.

从图 6 结果看, 不同温度下进行浸出反应, 硫酸烧渣中砷含量是随着 Na<sub>2</sub>S 浓度的增加而逐渐减小; 随着 NaOH 浓度的增大, 烧渣中砷含量是先减小后增大, 在  $0.5 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  附近浸出效果较好. 这可能是

由于在较低的碱浓度条件下, 主要发生的是 Na<sub>2</sub>S 同砷之间的反应, 当碱浓度逐渐增大后, NaOH 和砷之间的反应成为主要反应. 同时, 可以看出 Na<sub>2</sub>S 和 NaOH 之间存在明显的交互效应. 图 6(c) 80 °C 时

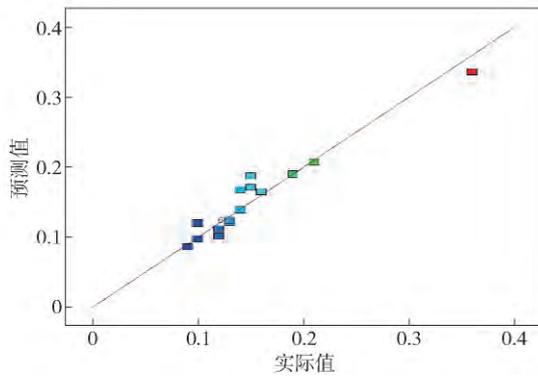


图5 模型预测值同实际值对比曲线

Fig. 5 Comparison of model predictions with actual values

当  $\text{Na}_2\text{S}$  浓度为  $0.08 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  ,随着  $\text{NaOH}$  浓度的增大,响应值砷的质量分数逐渐变小,进入等高线 0.1 包围的区域;当  $\text{NaOH}$  浓度增大到接近  $0.9 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$  时,该响应值砷的质量分数进入等高线 0.1 和 0.12 之间的区域,所以这一结论也验证了单因素实验结果,随着氢氧化钠用量的增大,浸渣中砷含量逐渐降低。

此外,图中结果显示温度对砷的浸出是有利的。在  $60\text{ }^\circ\text{C}$  时,等高线 0.1 包围的区域(即砷的质量分数小于 0.1%) 只有很小的一个区域,随着反应温度的提高,等高线 0.1 包围的区域逐渐增大。这说明提高反应温度,最佳的  $\text{Na}_2\text{S}$  和  $\text{NaOH}$  反应浓度范围也会逐渐扩大;温度越低就需要更加精确的控制  $\text{Na}_2\text{S}$  和  $\text{NaOH}$  反应浓度。

2.2.4 优化条件

利用 Design-Exert 软件对仿真结果进一步优化参数,当设置不同的反应温度区间时,得到的最优反应条件,如表 4 仅以  $80\text{ }^\circ\text{C}$  时的优化值做说明。

从优化结果看,反应温度越大越利于药剂用量的降低。在不影响浸出效率的情况下,希望温度越低越好、硫化钠的用量越少越好。因此,分别选取  $60\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $70\text{ }^\circ\text{C}$  和  $80\text{ }^\circ\text{C}$  条件下的最优值进行试验,以验证优化条件的可靠性,结果如表 5 所示。表 5 中的验证结果看,实验结果同预测值比较接近,在  $60\text{ }^\circ\text{C}$  的条件下,预测值砷质量分数为 0.0993%,经过试验得到的结果为 0.11%;  $80\text{ }^\circ\text{C}$  的条件下,第一组预测值砷质量分数为 0.0868%,而试验得到的结果为 0.08%,所以实际试验结果同预测结果是非常接近的,说明优化模型是可靠的。

2.3 浸出后渣的分析及表征

将表 5 中最优条件 4 浸出得到的渣进行化学分析,主要成分如表 6 所示。对比表 1 中的结果可以发现,浸出前后烧渣中的  $\text{Cu}$ 、 $\text{Pb}$ 、 $\text{Fe}$  和  $\text{Au}$  的含量变

表 4 最大设定温度为  $80\text{ }^\circ\text{C}$  时的响应曲面优化值

Table 4 Response surface optimization values at maximum temperature of  $80\text{ }^\circ\text{C}$

序号	$\text{NaOH}$ 浓度/ ( $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ )	$\text{Na}_2\text{S}$ 浓度/ ( $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ )	$T/^\circ\text{C}$	砷质量 分数/%
1	0.34	0.12	80.00	0.0868411
2	0.34	0.12	80.00	0.0868427
3	0.35	0.12	80.00	0.0868446
4	0.33	0.12	80.00	0.0868493
5	0.36	0.12	80.00	0.0868641
6	0.34	0.12	80.00	0.0868916
7	0.35	0.12	80.00	0.0871198
8	0.37	0.12	80.00	0.0872291
9	0.39	0.12	80.00	0.0872563
10	0.41	0.11	80.00	0.0875844
11	0.43	0.11	80.00	0.0882573
12	0.15	0.12	80.00	0.0902324
13	0.55	0.12	80.00	0.0911422
14	0.69	0.09	80.00	0.0935241
15	0.70	0.08	80.00	0.0940302

表 5 优化验证试验结果

Table 5 Optimization verification test results

序号	温度/ $^\circ\text{C}$	$\text{NaOH}$ 浓度/ ( $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ )	$\text{Na}_2\text{S}$ 浓度/ ( $\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ )	As 质量分数/%	
				预测值	实验值
1	60	0.46	0.12	0.0993	0.11
2	70	0.56	0.10	0.0924	0.1
3	80	0.34	0.12	0.0868	0.08
4	80	0.70	0.08	0.0940	0.09

化较小,甚至略有增大; $\text{Zn}$  的质量分数有所降低,从最初的 1.51% 下降到了 1.38%;其中  $\text{As}$  的质量分数变化最为明显,从最初的 0.45% 下降到了 0.09%,说明绝大部分的砷都被浸出。

表 6 浸出后硫酸渣中主要有价元素质量分数

Table 6 Chemical composition of the pyrite cinders after leaching

%					
$\text{Cu}$	$\text{Zn}$	$\text{Pb}$	$\text{Fe}$	$\text{As}$	$\text{Au}/(\text{g}\cdot\text{L}^{-1})$
0.78	1.38	0.94	61.01	0.09	1.52

图 7 是表 5 中最优条件 4 浸出得到渣的表面形貌。通过对图 7 中 1、2、3 处进行点扫,结果显示三处的物质成分大体一致,都包含  $\text{O}$ 、 $\text{Al}$ 、 $\text{Si}$ 、 $\text{Fe}$ 、 $\text{Zn}$  几种元素。如图 7 中的二次电子扫描结果所示,其中  $\text{Fe}$  质量分数高达 57.98%,所以可以推断浸出渣中的主要成分是氧化铁。从矿粒的表面形貌看,相比浸出前(图 2),浸出后的矿相颗粒变得模糊,矿粒表面好像被腐蚀。可能是由于渣中含有氧化硅和氧化铝,均可同  $\text{NaOH}$  发生化学反应,生成的产物覆盖在

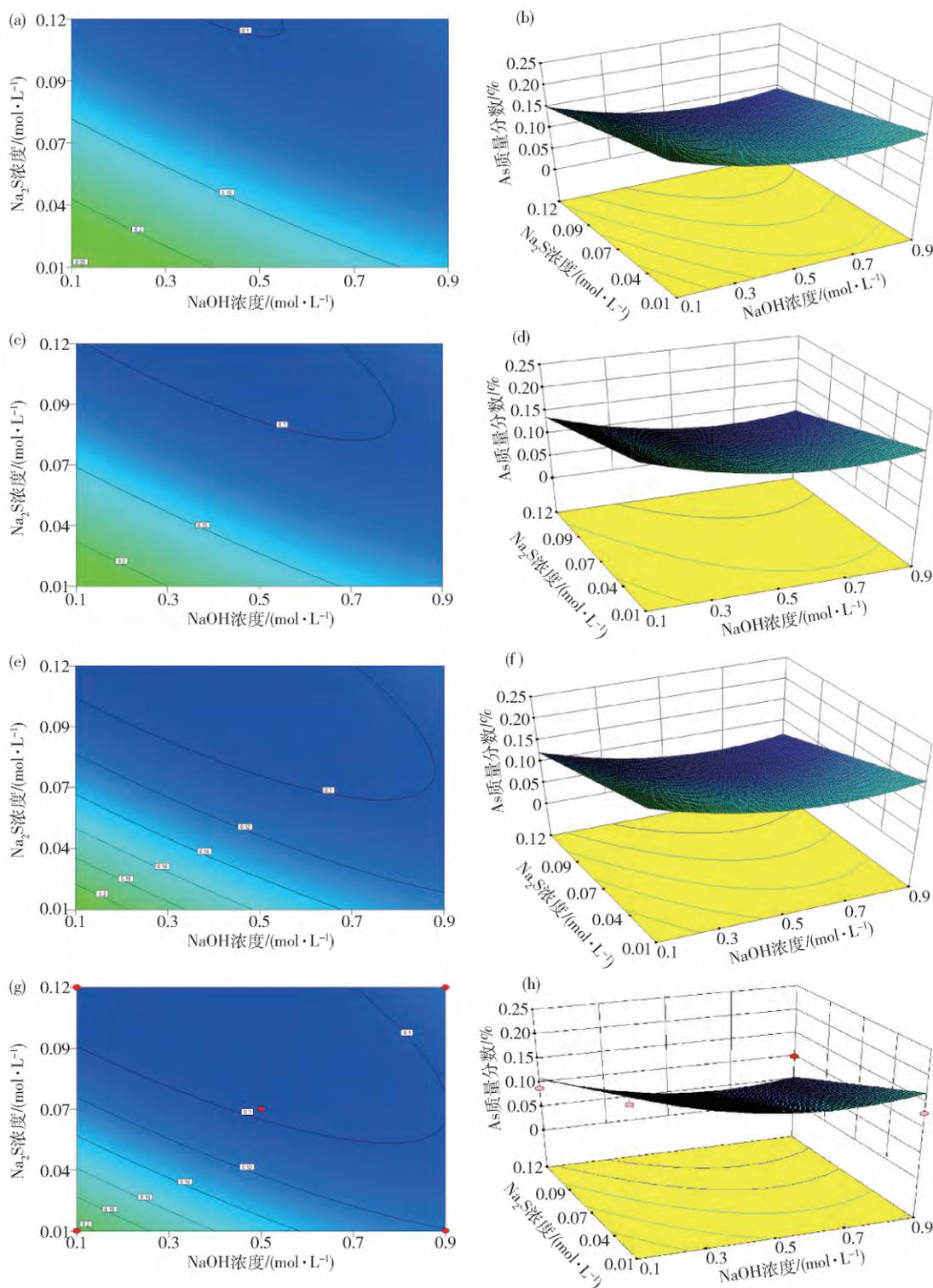


图6 不同温度下 Na<sub>2</sub>S 和 NaOH 浓度的交互影响的等高线和响应曲面图。(a, b) 60 °C; (c, d) 70 °C; (e, f) 80 °C; (g, h) 90 °C

Fig.6 Interaction contour and response surface plots of Na<sub>2</sub>S and NaOH at different temperatures: (a, b) 60 °C; (c, d) 70 °C; (e, f) 80 °C; (g, h) 90 °C

氧化铁表面所致。

### 3 结论

(1) 通过中心复合设计建立的响应曲面模型  $P=0.0001$  ,远远小于 0.05 ,表明模型可靠 ,试验设

计合理。

(2) Na<sub>2</sub>S 浓度、NaOH 浓度和温度均对砷的浸出影响显著 ,其中 Na<sub>2</sub>S 和 NaOH 浓度是影响砷浸出的主要因素 ,二者之间存在明显的交互作用 ,温度越高越有利于砷的浸出。

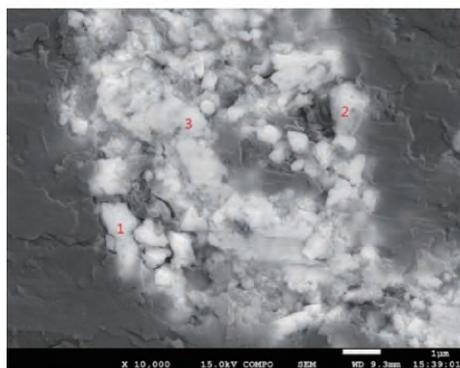


图 7 浸出后硫酸渣的表面形貌扫描分析结果

Fig. 7 SEM/EDS result of the pyrite cinders after leaching

元素	质量分数/%	原子分数/%
O K	35.22	64.98
Al K	1.13	1.24
Si K	0.92	0.97
Fe K	57.98	30.66
Zn L	4.75	2.15
总计	100.00	100.00

(3) 根据响应曲面模拟结果,在 80 °C 时 NaOH 浓度为 0.34 mol·L<sup>-1</sup>,Na<sub>2</sub>S 浓度为 0.12 mol·L<sup>-1</sup>时,模型预测结果为 0.0868%,浸出试验结果为 0.08%,试验结果与预测结果基本一致。

参 考 文 献

[1] Liu Z C, Zheng Y J. Effect of Fe ( II ) on the formation of iron oxide synthesized from pyrite cinders by hydrothermal process. *Power Technol*, 2011, 209( 1-3 ): 119

[2] Jin C, Li D X. Research progress on the comprehensive utilization of iron from pyrite cinder. *Met Mine*, 2011( 10 ): 162  
( 金程, 李登新. 硫酸烧渣中铁的综合利用研究进展. 金属矿山, 2011( 10 ): 162)

[3] Abdrakhimov A V, Abdrakhimova E S, Abdrakhimov V Z. Technical properties of roof tiles made of technogenic material with pyrite cinder. *Glass Ceram*, 2006, 63( 3-4 ): 130

[4] Alp I, Deveci H, Yazıcı E Y, et al. Potential use of pyrite cinders as raw material in cement production: results of industrial scale trial operations. *J Hazard Mater*, 2009, 166( 1 ): 144

[5] Fellet G, Marchiol L, Perosa D, et al. The application of phytoremediation technology in a soil contaminated by pyrite cinders. *Ecol Eng*, 2007, 31( 3 ): 207

[6] Zheng Y J, Liu Z C. Preparation of monodispersed micaceous iron oxide pigment from pyrite cinders. *Powder Technol*, 2011, 207( 1-3 ): 335

[7] Liu Z N, Ren J, Fang H, et al. Technology of obtaining high-grade iron concentrate from pyrite cinder. *Min Metall*, 2015, 24( 6 ): 83  
( 刘之能, 任佳, 方昊, 等. 从硫酸烧渣中获取高品位铁精矿的技术. 矿冶, 2015, 24( 6 ): 83)

[8] Xu J H, Zhang L J, Chen J F, et al. Study on recovering red iron oxide from the burned slag of sulphuric acid production and its sedimentation property. *Chem Bioeng*, 2005( 7 ): 19  
( 徐俊辉, 张良均, 陈金芳, 等. 硫酸烧渣制备氧化铁红及其沉降性质的研究. 化学与生物工程, 2005( 7 ): 19)

[9] Ma Y, Lu D K, Jin Z N, et al. Research on the comprehensive utilization of pyrite calcine. *Nonferrous Min Metall*, 2010, 26( 1 ): 24

( 马涌, 路殿坤, 金哲男, 等. 硫酸烧渣的综合利用研究. 有色矿冶, 2010, 26( 1 ): 24)

[10] Yang S H. Experimental research on leaching of gold and silver from pyrite cinders by thiocyanate process. *Hydrometall China*, 2017, 36( 1 ): 16  
( 杨书怀. 用硫氰酸盐从硫酸烧渣中浸出金银试验研究. 湿法冶金, 2017, 36( 1 ): 16)

[11] Ding J, Sun J W, Qian P, et al. Experimental study on recovering valuable metals from pyrite cinder by chloridizing roast. *Comput Appl Chem*, 2012, 29( 3 ): 255  
( 丁剑, 孙建伟, 钱鹏, 等. 氯化焙烧回收高铁硫酸烧渣中有价金属的实验研究. 计算机与应用化学, 2012, 29( 3 ): 255)

[12] Li G B, Li Y J, Su Y. Experimental study of using pyrite slag as resource. *Appl Chem Ind*, 2013, 42( 11 ): 2027  
( 李国斌, 李亚军, 苏毅. 硫铁矿焙烧渣资源化实验研究. 应用化工, 2013, 42( 11 ): 2027)

[13] Zhang G W, Xu Z, Li Y. Experimental study on the production of iron concentrate from arsenic bearing pyrite cinder. *Min Res Dev*, 2013( 1 ): 34  
( 张广伟, 徐政, 李岩. 利用含砷硫酸渣生产铁精矿的实验研究. 矿业研究与开发, 2013( 1 ): 34)

[14] Chang Y C, Xu X H, Wang Y. Arsenic removal and recovery of gold and silver by chloridizing roasting from high arsenic bearing pyrite cinder. *Nonferrous Met Extr Metall*, 2015( 6 ): 46  
( 常耀超, 徐晓辉, 王云. 高砷硫酸烧渣脱砷及高温氯化回收金银. 有色金属( 冶炼部分), 2015( 6 ): 46)

[15] Han Y Y, Dai H X. Study on recovering iron concentrate from high arsenic pyrite cinder. *Conserv Utiliz Min Resour*, 2010( 3 ): 55  
( 韩远燕, 戴惠新. 某高砷硫酸渣选铁试验研究. 矿产保护与利用, 2010( 3 ): 55)

[16] Li Y H, Liu Z H, Li Q H, et al. Removal of arsenic from Waelz zinc oxide using a mixed NaOH-Na<sub>2</sub>S leach. *Hydrometallurgy*, 2011, 108( 3-4 ): 165

[17] Zhao M J, Fang J J, Zhang T M, et al. Optimization of copper oxide by sulphidizing flotation based on response surface methodology. *Chin J Process Eng*, 2017, 17( 3 ): 532  
( 赵敏捷, 方建军, 张铁民, 等. 响应曲面法优化某氧化铜矿硫化浮选. 过程工程学报, 2017, 17( 3 ): 532)