

## بهینه‌سازی پارامترهای موثر بر فرآیند اسیدشویی ماسه سیلیسی با هدف مصرف در صنایع شیشه‌سازی

رحمان احمدی<sup>۱\*</sup>، بابک اجاوندی<sup>۲</sup>

۱- عضو هیات علمی، گروه مهندسی معدن، فرآوری مواد معدنی، دانشگاه بین‌المللی امام خمینی (ره)، قزوین  
۲- دانشجوی کارشناسی ارشد، گروه مهندسی معدن، فرآوری مواد معدنی، دانشگاه بین‌المللی امام خمینی (ره)، قزوین

(دریافت ۱۳۹۷/۰۳/۲۳، پذیرش ۱۳۹۷/۰۷/۱۱)

### چکیده

در این مقاله، کاهش اکسید آهن ( $Fe_2O_3$ ) از ماسه‌های سیلیسی نمونه معدن سیلیس چشین به‌وسیله فرآیند اسیدشویی با سولفوریک اسید، تحت شرایط مختلف پارامترها بررسی شده است. نمونه ماسه سیلیسی مورد استفاده برای لیچینگ اسیدی، دارای ۹۶/۲۳ درصد  $SiO_2$ ، ۰/۱۳ درصد  $Fe_2O_3$  و ۱/۶۷ درصد  $Al_2O_3$  است. برای بررسی پارامترهای موثر بر فرآیند، روش طراحی آزمایش تاگوچی در نرم‌افزار مینی تب انجام شد. پارامترهای مورد مطالعه شامل pH، درصد جامد پالپ و دمای پالپ بوده‌اند. مطالعات کانی‌شناسی نشان داد که ماسه سیلیسی حاوی کانی‌های پیریت و اکسید و هیدروکسیدهای آهن نظیر هماتیت، گوتیت و لیمونیت است. بر اساس نتایج لیچینگ اسیدی، با کاهش pH از ۲ به ۱، افزایش درصد جامد از ۵۰٪ به ۷۰٪ و افزایش دما از ۴۰ به ۸۰ درجه سانتی‌گراد، میزان آهن ماسه سیلیسی، کاهش می‌یابد. در شرایط بهینه pH=۱، دمای ۸۰ سانتی‌گراد و درصد جامد ۷۰٪، بالاترین میزان حذف آهن حاصل شد. در این شرایط، محصول نهایی حاوی ۹۸/۵ درصد سیلیس ( $SiO_2$ )، ۰/۳۱ درصد اکسید آهن ( $Fe_2O_3$ )، ۰/۷ درصد  $Al_2O_3$ ، ۰/۳۲ درصد CaO بوده است که مناسب شیشه‌های جام، ظروف شیشه‌ای و بلور بروسلیکات است.

### کلمات کلیدی

ماسه سیلیسی، اکسید آهن، اسیدشویی، صنایع شیشه، پارامترهای موثر.

## ۱- مقدمه

حذف ناخالصی آهن محتوی سیلیس به میزان ۳۹٪ حاصل شده است [۱۰]. در ادامه این تحقیق، با عبور دادن بخار داغ اسیدی در دمای  $120^{\circ}\text{C}$  به مدت ۲ ساعت کارآیی انحلال آهن معادل ۷۵/۶٪ افزایش یافت. این روش با مشکل مصرف انرژی بالا و ملاحظات زیست‌محیطی همراه بوده است [۱۰].

با توجه به مشکلات مربوط به اسیدهای معدنی نظیر آلودگی زیست محیطی و دفع پر هزینه پسماند و ایجاد برخی از رسوبات، برخی از تحقیقات و فعالیت های صنعتی به استفاده از اسیدهای آلی مانند اسید کربوکسیلیک، ایمینو دی استیک، ان هیدروکسی اتیل ایمینو استیک و اتیلن دیامینو تترا استیک پرداخته اند [۱۱]. مطالعات بسیاری نیز با هدف اسید شویی سیلیس با استفاده از اسید اگزالیک جهت حذف آهن [۱۲-۱۴] انجام شده است. انحلال آهن با کمک اسید اگزالیک وابسته به تشکیل یون های فرو است که سرعت کندی دارد و سینتیک واکنش اصلی را تحت تاثیر خود قرار می‌دهد؛ بنابراین اضافه کردن یون های  $\text{Fe}^{2+}$  می‌تواند به تسریع فرآیند کمک کند.

مطالعه‌ای [۱۵] در زمینه کاهش میزان آهن از ماسه سیلیسی توسط اسید اگزالیک انجام شده است. مطالعه مذکور بر روی محصول میانی جدایش مغناطیسی شدت بالای خشک (نمونه معدن شنین) انجام شده است. خوراک فرآیند اسیدشویی دارای ۹۷/۰۳٪ سیلیس و ۰/۱۲ درصد هماتیت بوده است. تحت شرایط بهینه، عیار هماتیت با اسید اگزالیک و اسید سولفوریک در محصول نهایی به ترتیب ۰/۴۸ درصد و ۰/۵۴ درصد کاهش یافت. عیار سیلیس در هر دو حالت ۹۸٪ بوده است.

استفاده از اسید اگزالیک بعنوان یک حلال آلی آهن دارای معایبی نظیر قیمت بسیار بالاتر از اسیدهای معدنی (حداقل ۶ برابر قیمت اسیدهای معدنی مانند اسید سولفوریک و کلریدریک)، سرعت واکنش پایین تر از اسیدهای معدنی بویژه در دماهای پایین تر از ۵۰ درجه سانتی‌گراد و نیاز به یون فرو محلول در دماهای پایین (۲۵ درجه سانتی‌گراد و کمتر) جهت افزایش سرعت واکنش می باشد [۱۶]. در تحقیقی دیگر [۱۴] با استفاده از محلول اسیدسولفوریک در دمای  $95^{\circ}\text{C}$  و مدت زمان ۴ ساعت به راندمان انحلال اکسید آهن به میزان ۹ درصد افزوده شد. این فرآیند با تشویه حرارتی سیلیس در دمای ۸۵۰ درجه

سیلیس یکی از اصلی‌ترین مواد مورد مصرف در تولید شیشه است. ماسه سیلیسی مورد استفاده ممکن است از خردایش ماسه‌سنگ و کوارتزیت‌هایی با درصد سیلیس ( $\text{SiO}_2$ ) بالا یا با انجام عملیات فرآوری از ماسه‌های کوارتزیتی تهیه شود. دانه‌بندی و خلوص سیلیس مصرفی، از مهم‌ترین پارامترها در خوراک کارخانه‌های صنایع شیشه‌سازی‌اند. با مراجعه به نتایج تجزیه شیمیایی نمونه‌های برداشت شده از هر یک از معادن سیلیس ایران، مشاهده می‌شود که مهم‌ترین ناخالصی‌های موجود در این ذخایر، اکسید آهن و کانی‌های رسی‌اند. اکسید آهن ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) سبب ایجاد رنگ سبز در شیشه تولیدی می‌شود و کاهش آن قبل از مصرف، ضروری است.

بر حسب نوع شیشه تولیدی، میزان مجاز اکسید آهن بین ۰/۰۷ درصد (برای تولید ظروف شیشه‌ای) و ۰/۰۱ درصد (برای تولید کریستال و شیشه‌های اپتیک) متغیر است [۱].

روش‌های مختلفی برای آهن‌زدایی از سیلیس وجود دارند که معمول‌ترین آن‌ها شامل خردایش، دانه‌بندی، اسکرابینگ، شستشو و نرم‌گیری، جدایش ثقلی (میز لرزان و مارپیچ همفزی)، فلوتاسیون، جدایش مغناطیسی و اسید شویی‌اند [۲-۴]. برای تولید سیلیس با خلوص بالا، معمولاً از روش‌های اسیدشویی استفاده می‌شود [۵]. در برخی موارد با هدف کاهش مصرف حلال‌های اسیدی و کاهش هزینه‌های عملیاتی و مشکلات زیست‌محیطی، عملیات پیش‌فرآوری نظیر جدایش مغناطیسی [۶، ۷] و یا روش‌های نوین نظیر بیولیچینگ قبل از اسیدشویی نیز استفاده می‌شوند [۸].

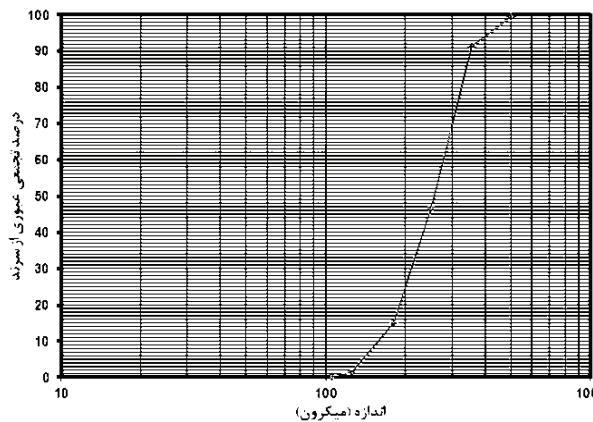
در روش‌های متداول شیمیایی از اسیدهای غیرآلی همچون فلئوئوریدریک اسید یا مخلوط چند اسید برای حذف آهن استفاده می‌شود. در پژوهشی مخلوطی از اسیدها شامل ۱۰٪ HF و ۹۰٪ مخلوط اسیدهای  $\text{HCl}$ ،  $\text{H}_2\text{SO}_4$  و  $\text{HNO}_3$  برای محلول‌سازی ناخالصی‌ها در بازه زمانی ۳-۱۲ ساعت استفاده شده است که منجر به حذف ۹۶/۳٪ از ناخالصی‌های سیلیس شده است [۹]. اسید HF به علت خوردگی و قیمت بالا، تبخیر در دماهای بالای ۷۵ درجه سانتی‌گراد و مشکلات زیست‌محیطی شدید، علی‌رغم نتایج مناسب، چندان مورد توجه قرار نگرفته است.

در تحقیقی با استفاده از محلول حاوی ۱۰٪ اسید با روش لیچینگ اسیدی و در دمای  $80^{\circ}\text{C}$  و زمان ۸ ساعت

## ۲-۲-۲- روش‌ها

### ۱-۲-۲- نمونه برداری و آماده‌سازی نمونه‌ها

برای انجام مطالعات شناسایی و آزمایش‌های اسید شویی، نمونه‌برداری از محل معدن، جبهه‌کارها و دپوهای موجود ماده معدنی انجام پذیرفت. روش نمونه‌برداری به صورت لپ‌پری<sup>۱</sup> و کل نمونه برداشت شده از جبهه‌کار و دپوها ۱۵۰ کیلوگرم با دانه‌بندی  $d_{80} = ۴۵/۳۰$  میلی‌متر بوده است. خردایش نمونه، طی دو مرحله سنگ‌شکنی فکی و مخروطی تا ابعاد  $d_{100} = ۲۷۱۰$  میکرون و یک مرحله آسیای میله‌ای تا ابعاد  $d_{80} = ۳۲۷$  میکرون انجام گرفت و سپس به کمک ریفل و مخروط متقارن، نمونه کاملاً یکنواخت و تقسیم شد. برای انجام آزمایش‌ها، نمونه به وسیله تجزیه‌سرندی به شش محدوده ابعادی  $+۵۰۰$ ،  $-۵۰۰$ ،  $+۳۵۵$ ،  $-۳۵۵$ ،  $+۲۵۰$ ،  $-۲۵۰$ ،  $+۱۸۰$ ،  $-۱۸۰$ ،  $+۱۲۵$  و  $-۱۲۵$ ،  $+۱۰۶$  میکرون تقسیم شد. ابعاد زیر ۱۰۰ میکرون از نمونه جدا شد. در شکل ۱، منحنی دانه‌بندی نمونه مورد استفاده در آزمایش‌های اسیدشویی آورده شده است.



شکل ۱: منحنی دانه‌بندی نمونه مورد آزمایش

### ۲-۲-۲- شناسایی نمونه

#### ۱-۲-۲-۲- مطالعات کانی‌شناسی

برای انجام مطالعات کانی‌شناسی، یک نمونه ۲ کیلوگرمی تهیه و پس از تجزیه‌سرندی و تقسیم به هشت محدوده ابعادی  $+۵۰۰$ ،  $+۳۰۰$ ،  $+۲۵۰$ ،  $+۱۸۰$ ،  $+۱۵۰$ ،  $+۱۲۵$ ،  $+۷۵$  و  $-۷۵$  میکرون برای انجام مطالعات کانی‌شناسی استفاده شد. درجه آزادی سیلیس از ناخالصی‌های همراه با مطالعه روی مقاطع صیقلی تهیه شده از محدوده‌های ابعادی  $+۳۰۰$  تا  $+۲۵۰$ ،

سانتی‌گراد و انحلال در دمای بالا (۲۵۰ درجه سانتی‌گراد)، منجر به افزایش راندمان حذف اکسید آهن تا ۹۶ درصد شده است. این روش بصورت یک روش ترکیبی در دماهای بالا، از مصرف انرژی بالایی برخوردار بوده و لذا غیر اقتصادی خواهد بود.

استفاده از اسید سولفوریک جهت حذف آهن از سیلیس دارای مزیت‌هایی نظیر قیمت پایین نسبت به سایر اسیدهای معدنی و بویژه اسیدهای آلی و تبخیر کمتر نسبت به اسیدهای کلریدریک و فلوریدریک می‌باشد. علی‌رغم تحقیقات مختلف انجام شده با اسیدهای معدنی و آلی در ارتباط با حذف آهن از ماسه‌های سیلیسی، تحقیقی که بطور اختصاصی و با در نظر گرفتن پارامترهای مختلف و اثرات متقابل آنها تنها با اسید سولفوریک انجام شده باشد، کمتر دیده شده است.

در این مقاله، کاهش اکسید آهن از ماسه‌های سیلیسی نمونه معدن سیلیس چشین زنجان جهت مصرف در صنایع شیشه‌سازی توسط فرآیند اسیدشویی با اسید سولفوریک مورد مطالعه و بررسی قرار گرفته است.

## ۲- مواد، تجهیزات و روش‌ها

### ۱-۲- مواد و تجهیزات

نمونه سیلیس استفاده شده در این تحقیق از معدن چشین، ۸۴ کیلومتری جنوب خاوری زنجان تهیه شد. این کانسنگ حاوی ۹۶/۲۳ درصد  $SiO_2$ ، ۰/۱۳ درصد  $Fe_2O_3$  و ۱/۶۷ درصد  $Al_2O_3$  است. اسید سولفوریک (۹۸٪) صنعتی ساخت شرکت اسیدسازان زنجان، برای تنظیم pH و فرآیند اسید شویی استفاده شد. برای آنالیز نمونه‌ها از دستگاه جذب اتمی مدل Sens AA ساخت شرکت GBC استرالیا، برای اسیدشویی سیلیس از دستگاه اسکرابر آزمایشگاهی و مکو مجهز به دور سنج با حجم مخزن ۲ لیتر، جهت تنظیم و کنترل pH از pH متر مدل SL-901 ساخت شرکت SANA ایران، برای تنظیم و کنترل دمای فرآیند از هیتر استیرر مدل RET basic ساخت شرکت IKA آلمان و برای فیلتراسیون و جداسازی پالپ، از قیف بوختر استفاده شد. جهت خردایش نمونه از سنگ شکن فکی آزمایشگاهی ساخت شرکت AEG آلمان، سنگ شکن مخروطی آزمایشگاهی و آسیای میله‌ای ساخت شرکت دانش‌فرآوران ایران استفاده گردید. آنالیز سرندی نمونه، با کمک سری سرندهای استاندارد ASTM، ساخت شرکت Endecotts انگلستان انجام شد.

$$Ff = Cc + Tt \quad (2)$$

که در آن:

F: وزن خوراک

C: وزن کیک جامد

T: حجم محلول

f: درصد اکسید آهن در خوراک

c: کیک جامد

t: غلظت آهن در محلول (میلی گرم در لیتر) است.

در مواردی که اختلاف مقدار فلز موجود در خوراک و مجموع مقدار فلز موجود در کیک و محلول بیش از ۱۰ درصد بوده، آزمایش تکرار شد. اگر میزان این اختلاف کمتر از ۱۰ درصد بود، با استفاده از معادله لاگرانژ، عبارات تصحیح شدند (روابط ۳ تا ۶) تا خطای مربوط به موازنه جرم هر آزمایش اصلاح شود [۱۷].

$$\lambda/2 = -\frac{Ff - Cc - Tt}{F^2 + C^2 + T^2} \quad (3)$$

با محاسبه مقدار  $\lambda/2$  در هر آزمایش، مقادیر جدید عبارات به صورت رابطه ۴ محاسبه شد:

$$f' = \lambda F/2 + f \quad (4)$$

$$c' = -\lambda C/2 + c \quad (5)$$

$$t' = -\lambda T/2 + t \quad (6)$$

که در روابط ۳ تا ۶:

f': عبارات تصحیح شده خوراک

c': عبارات تصحیح شده کیک

t': عبارات تصحیح شده محلول است.

#### ۲-۲-۴- طراحی آزمایشی‌ها با روش تاگوچی در نرم‌افزار Minitab 17.0

در این تحقیق، از طراحی آزمایشی‌ها با روش تاگوچی در نرم‌افزار Minitab 17.0 با هدف تجزیه و تحلیل آماری اثر متغیرهای اصلی و اثر متقابل دمای پالپ، pH پالپ و درصد جامد پالپ در سطح بالا (+)، پایین (-) و مرکزی (۰) بر میزان حذف آهن (پاسخ) استفاده شد. بر اساس اطلاعات

۱۸۰+۲۵۰، ۱۸۰+۱۲۵- و ۱۲۵- میکرون با تعیین نسبت کانی با ارزش کاملاً آزاد به کل کانی با ارزش موجود در کانسنگ که هم شامل کانی آزاد و هم درگیر است، با استفاده از رابطه ۱ زیر به دست آمد:

$$d_f = \frac{n_1}{n_1+n_2} \times 100 \quad (1)$$

که در آن:

d<sub>f</sub>: درجه آزادی کانی با ارزش (درصد)

n<sub>1</sub>: تعداد دانه های آزاد کانی با ارزش

n<sub>2</sub>: نصف تعداد دانه های درگیر است.

#### ۲-۲-۲-۲- آنالیز شیمیایی نمونه

برای اطلاع از عناصر موجود و درصد آن‌ها، یک نمونه معرف از ماسه سیلیسی آنالیز شد. آنالیز با روش جذب اتمی انجام گرفت. با توجه به دقت مورد نیاز برای درصد سیلیس، میزان آن با روش انحلال در اسید فلوریدریک تعیین شد.

#### ۲-۲-۳- آزمایش‌های اسیدشویی

برای انجام آزمایش‌های اسیدشویی مقدار معینی از نمونه با توجه به درصد جامد مورد نظر در داخل مخزن ۲ لیتری محتوی آب مقطر ریخته شد. برای جلوگیری از لرزش احتمالی، بشر با کمک یک گیره پلاستیکی به یک پایه متصل و ثابت شد. پس از همزنی و تنظیم دما با کمک یک همزن مغناطیسی مجهز به کنترل دما (هات پلیت)، به تدریج سولفوریک اسید غلیظ ۹۵٪ برای تنظیم pH به پالپ اضافه شد. آزمایش‌های لیچینگ اسیدی در مدت زمان ۳۰ دقیقه و سرعت همزنی ۸۰۰ دور در دقیقه تحت شرایط مختلف پارامترهای دما، درصد جامد و pH پالپ انجام شدند. برای ثابت نگه داشتن درصد جامد، از یک درپوش پلاستیکی بر روی بشر (جهت کاهش میزان تبخیر) و یک آبفشان پلاستیکی برای تزریق آب مقطر به داخل بشر برای جبران کاهش سطح پالپ استفاده شد. پس از هر آزمایش، پالپ لیچینگ فیلتر شد. کیک به دست آمده از فیلتراسیون پس از خشک شدن و توزین به همراه محلول، آنالیز شد. در موارد مورد نیاز، در صورت وجود خطای معنی دار، نتایج آنالیزهای آهن با استفاده از روابط موازنه جرم تصحیح شدند. مطابق رابطه ۲ میزان اکسید آهن موجود در خوراک (F) باید با مجموع میزان اکسید آهن موجود در محلول (T) و کیک جامد (C) برابر باشد.

۲، آورده شده است. آنالیز سیلیس با توجه به دقت مورد نیاز با روش انحلال در فلوریدریک اسید انجام شد. مطابق ترکیب شیمیایی استاندارد سیلیس مورد نیاز برای محصولات یاد شده در جدول ۳، میزان اکسید آهن محصول نهایی باید حداقل بین ۰٫۰۳ تا ۰٫۰۷ درصد باشد. دانه‌بندی مورد نیاز معمولاً بین ۱۵۰ تا ۸۰۰ میکرون یا ۱۰۰ تا ۶۰۰ میکرون است.

### ۳-۲- مطالعات کانی‌شناسی و درجه آزادی

بر مبنای نتایج به دست آمده از مطالعه کانی‌شناسی مقاطع سیقلی و تیغه‌های نازک، کانی‌های آهن‌دار در سیلیس عمدتاً از نوع پیریت، اکسیدها و هیدروکسیدهای آهن شامل هماتیت و به صورت جزئی گوتیت و لیمونیت‌اند. بخشی از ناخالصی‌ها به صورت پوشش غشایی بر روی جداره ذرات سیلیس قرار گرفته است. این بخش از ناخالصی‌ها صرفاً به کمک اسیدشویی قابل حذف‌اند. برخی از ناخالصی‌ها به صورت برشی درون درزه‌ها و شکستگی‌های میکرونی ذرات سیلیس قرار گرفته‌اند. اسیدشویی این ذرات در ابعاد ۲۰۰ میکرون به آسانی انجام نمی‌گیرد. در جدول ۴، درجه آزادی سیلیس از ناخالصی‌های همراه آمده است. مطابق این جدول، با کاهش ابعاد تا ۱۲۵- میکرون، درجه آزادی سیلیس به حد مطلوب ۸۰ درصد رسیده است. شکل ۲ نیز میزان آزاد شدن سیلیس از ناخالصی‌هایی نظیر هماتیت و پیریت را در محدوده‌های ابعادی مختلف نشان می‌دهد. مطابق شکل ۲ (د)، سیلیس در ابعاد زیر ۱۲۵ میکرون

به دست آمده از آزمایش‌های اولیه، پارامترهای موثر بر فرآیند اسیدشویی سیلیس شناسایی و سطوح تغییرات پارامترها مشخص شدند. در جدول ۱، پارامترها و سطوح آن‌ها برای طراحی آزمایش آمده است. متغیرهای مورد بررسی در این مقاله، pH (A) (۲، ۱٫۵، ۱)، دما (B) (۸۰، ۶۰، ۴۰) °C و درصد جامد پالپ (C) (۷۰، ۶۰، ۵۰) است. پس از مشخص کردن سطوح بالا و پایین پارامترها، ۲۷ آزمایش اسیدشویی به‌وسیله نرم‌افزار پیشنهاد شد.

جدول ۱: پارامترها و سطوح مختلف آن‌ها در آزمایش‌ها

پارامتر	واحد	سطح پایین (-۱)	سطح مرکزی (۰)	سطح بالا (+۱)
pH	-	۱	۱٫۵	۲
دما	°C	۴۰	۶۰	۸۰
درصد جامد	درصد	۵۰	۶۰	۷۰

### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- آنالیز شیمیایی با روش AAS

بر اساس آنالیز انجام شده به‌وسیله دستگاه جذب اتمی، میزان اکسید آهن موجود در نمونه ۰٫۱۳٪ تعیین شد. نتایج آنالیز ۶ عنصری نمونه به وسیله دستگاه جذب اتمی در جدول

جدول ۳. ترکیب شیمیایی سیلیس استاندارد مورد مصرف در صنایع شیشه ایران

حداکثر					حداقل	محصول
Loss	TiO <sub>2</sub>	CaO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	
۰٫۲	۰٫۰۲	...	۰٫۸	۰٫۰۳	۹۹٫۸	بلور بروسیلیکات
۰٫۵	...	۰٫۵	۱٫۸	۰٫۰۷	۹۷	ظروف شیشه‌ای
۰٫۵	...	۰٫۵	۱٫۸	۰٫۰۷	۹۷٫۵	شیشه جام

جدول ۲: آنالیز عنصری نمونه

SiO <sub>2</sub>	٪ ۹۶٫۲۳
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	٪ ۰٫۱۳
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	٪ ۱٫۶۷
CaO	٪ ۰٫۹۱
MgO	٪ ۰٫۰۱
Na <sub>2</sub> O	٪ ۰٫۱۸
K <sub>2</sub> O	٪ ۰٫۷۹

جدول ۴: درجه آزادی سیلیس - محدوده‌های ابعادی مختلف

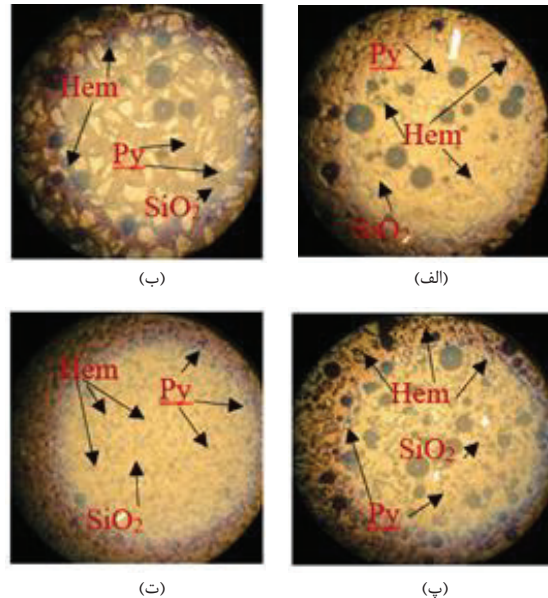
محدوده ابعادی (میکرون)	درجه آزادی سیلیس (درصد)
+۲۵۰-۳۰۰	۵۰
+۱۸۰-۲۵۰	۶۵
+۱۲۵-۱۸۰	۷۰
+۱۲۵	۸۰

جدول ۵: مقادیر تجربی و پیش‌بینی شده درصد اکسید آهن

اکسید آهن مدل (%)	اکسید آهن تجربی (%)	درصد جامد	دما °C	pH	آزمایش
۰٫۰۹۸	۰٫۰۹۵	70	40	2	۱
۰٫۰۹۸	۰٫۰۹۶	70	40	2	۲
۰٫۰۹۸	۰٫۰۹۸	70	40	2	۳
۰٫۰۸۹	۰٫۰۹۱	60	60	2	۴
۰٫۰۸۹	۰٫۰۹۳	60	60	2	۵
۰٫۰۸۹	۰٫۰۹۰	60	60	2	۶
۰٫۰۹۰	۰٫۰۸۸	50	80	2	۷
۰٫۰۹۰	۰٫۰۹۰	50	80	2	۸
۰٫۰۹۰	۰٫۰۸۹	50	80	2	۹
۰٫۰۸۲	۰٫۰۸۰	60	40	۱٫۵	۱۰
۰٫۰۸۲	۰٫۰۸۲	60	40	۱٫۵	۱۱
۰٫۰۸۲	۰٫۰۸۰	60	40	۱٫۵	۱۲
۰٫۰۷۸	۰٫۰۷۷	50	60	۱٫۵	۱۳
۰٫۰۷۸	۰٫۰۷۶	50	60	۱٫۵	۱۴
۰٫۰۷۸	۰٫۰۷۷	50	60	۱٫۵	۱۵
۰٫۰۶۵	۰٫۰۶۸	70	80	۱٫۵	۱۶
۰٫۰۶۵	۰٫۰۶۹	70	80	۱٫۵	۱۷
۰٫۰۶۵	۰٫۰۶۶	70	80	۱٫۵	۱۸
۰٫۰۵۴	۰٫۰۵۷	50	40	1	۱۹
۰٫۰۵۴	۰٫۰۵۶	50	40	1	۲۰
۰٫۰۵۴	۰٫۰۵۷	50	40	1	۲۱
۰٫۰۳۷	۰٫۰۳۵	70	60	1	۲۲
۰٫۰۳۷	۰٫۰۳۷	70	60	1	۲۳
۰٫۰۳۷	۰٫۰۳۴	70	60	1	۲۴
۰٫۰۳۳	۰٫۰۳۱	60	80	1	۲۵
۰٫۰۳۳	۰٫۰۳۳	60	80	1	۲۶
۰٫۰۳۳	۰٫۰۳۲	60	80	1	۲۷

را به طور کلی ملاحظه کرد. در سطح اعتماد ۹۵ درصد، مدل معنی‌دار است. مطابق جدول ۶، تمامی عوامل و همچنین اثرات متقابل AB و AC در فرآیند اسیدشویی در سطح اعتماد ۹۵ درصد معنی‌دارند. بر مبنای میانگین مربعات، اثر pH بر کاهش اکسید آهن نسبت به فاکتورهای دیگر بیشتر است. مدل پیشنهادی نرم‌افزار به صورت چند جمله‌ای با ضریب همبستگی ۹۵ درصد برای پاسخ که درصد اکسید آهن ماسه سیلیسی است، به صورت رابطه ۷ است:

درجه آزادی بالایی دارد. در برخی از ذرات، سیلیس از جداره‌ها آلتزه شده است و آغستگی‌هایی از اکسیدهای آهن دارد.



شکل ۲: مقطع صیقلی نمونه سیلیس؛ الف) محدوده ابعادی ۲۵۰+ میکرون، ب) ۱۸۰+ میکرون، پ) محدوده ابعادی ۱۲۵+ میکرون، ت) محدوده ابعادی ۱۲۵- میکرون (Py: Pyrite, He: Hematite)

### ۳-۲- نتایج آزمایش‌های اسیدشویی

در جدول ۵، مقادیر اکسید آهن تجربی (به دست آمده از آزمایش‌های انجام شده) و پیش‌بینی شده به وسیله نرم‌افزار، در هر یک از آزمایش‌ها آمده است. با توجه به این‌که پارامترها بیش از دو سطح دارند، برای شناسایی اثرهای معنی‌دار نمی‌توان از نمودارهای نیمه نرمال و پارتو استفاده کرد؛ بنابراین برای مقایسه میانگین اثرات یک یا چند متغیر مستقل (فاکتورها) بر روی متغیر وابسته، از آزمون تحلیل واریانس تک متغیری ANOVA استفاده شد. برای تعیین پارامترهای موثر بر میزان حذف اکسید آهن باید به مقدار P-Value مربوط به هر پارامتر در نتایج حاصل از رگرسیون توجه کرد.

اگر مقدار P-Value مربوط به هر پارامتر، کمتر از ۰٫۰۵ باشد، اثر آن پارامتر معنی‌دار است و با استفاده از ضریب تعیین شده برای آن، در معادله رگرسیون مربوطه، اثر آن اعمال می‌شود [۱۹، ۱۸]. نتایج تحلیل واریانس ANOVA مربوط به آزمایش‌ها در جدول ۶، آورده شده است. با استفاده از اطلاعات این جدول می‌توان تاثیر پارامترهای موثر بر پاسخ

پاسخ پیش‌بینی شده به‌وسیله مدل و مقادیر به دست آمده از آزمایش‌ها است. برای بررسی میزان انطباق نتایج اکسید آهن به دست آمده از آزمایش‌ها با مقادیر پیش‌بینی شده، نمودار پراکندگی ارایه شده به‌وسیله نرم‌افزار در شکل ۴، نشان داده شده است. مطابق شکل ۴، بین نتایج تجربی و پیش‌بینی شده انطباق قابل قبولی وجود دارد.

### ۳-۳-۱- اثر پارامترهای تک عاملی بر حذف اکسید آهن

با استفاده از نرم‌افزار مینی‌تب، تحلیل‌های آماری لازم انجام گرفت. برای تحلیل نتایج، از درصد اکسید آهن به عنوان متغیر پاسخ استفاده شد. میانگین درصد اکسید آهن در هر سطح از سطوح سه‌گانه محاسبه شد. با توجه به نتایج به دست آمده و محاسبات نرم‌افزار تاگوچی، رفتار حذف آهن در شرایط pH، دما و درصد جامد متفاوت به‌وسیله نمودارهای شکل ۵، قابل پیش‌بینی است. نمودارهای شکل ۵، نتایج حاصل از آنالیز واریانس را تایید می‌کنند. چنانچه از نمودارها نیز واضح است،

$$\%Fe_2O_3 = 0.0748 + 0.0856 A - 0.001069 B - 0.001872 C - 0.03289 A^2 + 0.000356 AB + 0.000711 AC \quad (7)$$

که در آن:

A: پارامتر pH جامد پالپ

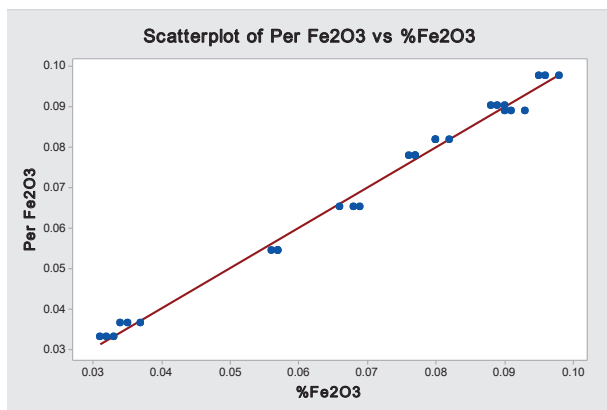
B: پارامتر دمای جامد پالپ

C: پارامتر درصد وزنی جامد پالپ است.

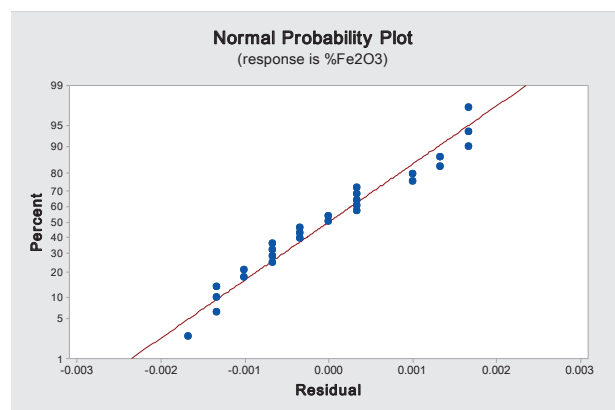
بر اساس مقادیر اکسید آهن تجربی (به دست آمده از آزمایش‌های انجام شده) و مقادیر باقی‌مانده پاسخ‌ها (تفاضل مقادیر پیش‌بینی شده اکسید آهن و مقادیر به دست آمده از آزمایش‌ها)، نمودار احتمال نرمال باقی‌مانده‌ها در شکل ۳، آورده شده است. مطابق شکل، مقادیر باقی‌مانده‌ها عمدتاً روی خط نرمال یا نزدیک به آن قرار گرفته‌اند و دامنه تغییرات پایینی دارند، که نشان دهنده ضریب همبستگی بالای مقدار

جدول ۶. نتایج آنالیز واریانس (ANOVA)

Source	Sum of Squares	DF	Mean Square	F Value	Prob > F
Model	۰٫۰۱۳۴۸۴	۸	۰٫۰۰۱۶۸۶	۱۱۳۷٫۷۲	۰٫۰۰۱
A-pH	۰٫۰۰۰۰۹۱	۱	۰٫۰۰۰۰۹۱	۶۱٫۵۹	۰٫۰۰۳
B-Temp	۰٫۰۰۰۰۵۴	۱	۰٫۰۰۰۰۵۴	۳۶٫۵۷	۰٫۰۰۵
C-Solid	۰٫۰۰۰۰۱۱	۱	۰٫۰۰۰۰۱۱	۷٫۶۱	۰٫۰۱۳
AB	۰٫۰۰۰۰۵۷	۱	۰٫۰۰۰۰۵۷	۳۸٫۴۰	۰٫۰۰۶
AC	۰٫۰۰۰۰۵۷	۱	۰٫۰۰۰۰۵۷	۳۸٫۴۵	۰٫۰۰۶
Error	۰٫۰۰۰۰۲۷	۱۸	۰٫۰۰۰۰۰۱		
Cor Total	۰٫۰۱۳۵۱۱	۲۶	۰٫۰۱۳۵۱۱		



شکل ۴: نمودار پراکندگی مقادیر اکسید آهن پیش‌بینی شده نسبت به نتایج تجربی



شکل ۳: نمودار احتمال نرمال مقادیر باقی‌مانده‌ها (تفاضل مقدار اکسید آهن پیش‌بینی شده و اکسید آهن به دست آمده از آزمایش)

حرکت سریع تر مولکولها در اثر افزایش دما موجب افزایش تعداد برخوردهای مولکولی در واحد زمان و برخوردهای موثر می‌شود، که این امر باعث افزایش سرعت واکنش شیمیایی و انحلال آهن می‌شود. مطابق شکل، در دمای ۸۰ درجه سانتی گراد، بیشترین مقدار حذف اکسید آهن انجام گرفته است.

با توجه به شکل ۵، با افزایش درصد جامد پالپ از ۵۰ به ۷۰ درصد، آهن ماسه سیلیسی از حدود ۰٫۰۷۵ به ۰٫۰۶۷ درصد کاهش یافته است. افزایش درصد جامد، مشابه دما، منجر به کاهش درصد اکسید آهن ماسه سیلیسی می‌شود. نمودار دو شیب متفاوت در درصد جامد پایین تر و بالاتر از ۶۰ درصد دارد. شیب نمودار در محدوده درصد جامد ۵۰ تا ۶۰ درصد بیشتر است. بنابراین، اثر درصد جامد بر حذف اکسید آهن در این بازه، بیشتر است.

به علت بالا بودن رقت پالپ در درصد جامد ۶۰، اجازه حرکت ذرات به صورت آزاد و جدا از هم داده می‌شود. در نتیجه، تماس ذره/ذره مورد نیاز برای سایش ناخالصی‌ها از سطح دانه‌های سیلیس انجام نمی‌شود. با توجه به شکل، در سطح بالای پارامتر درصد جامد، یعنی ۷۰٪، بیشترین میزان حذف اکسید آهن حاصل شده است.

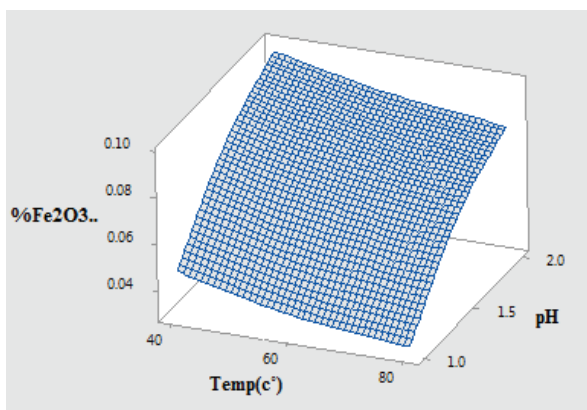
### ۳-۳-۲- بررسی تاثیر متقابل عوامل pH و دما

شکل ۶، اثر هم‌زمان دو پارامتر pH و دمای پالپ را در مقدار ثابت درصد جامد (۷۰٪) به صورت یک منحنی سه بعدی نشان می‌دهد. مطابق شکل، در  $pH=1$  و دمای ۸۰ درجه سانتی‌گراد، درصد اکسید آهن به کمترین مقدار خود معادل ۰٫۰۳۱ درصد رسیده است. این میزان اکسید آهن در دمای ۶۰

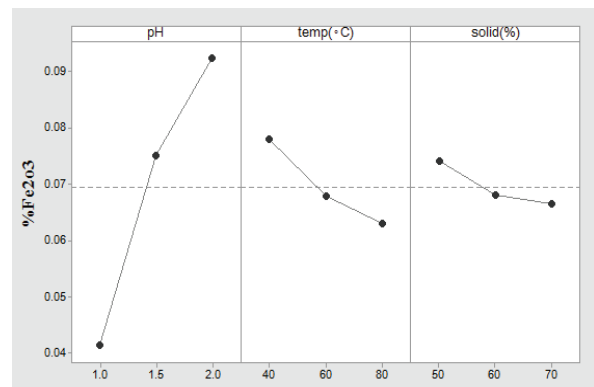
پارامتر pH موثرترین عامل در حذف آهن است. این در حالی است که درصد جامد به تنهایی دارای کمترین تاثیر است. اثر پارامترهای pH، دمای پالپ و درصد جامد به صورت تک عاملی بر پاسخ فرآیند اسید شویی (درصد اکسید آهن) در شکل ۵ آمده است.

مطابق شکل ۵، با کاهش pH از ۲ به ۱، درصد آهن ماسه سیلیسی کاهش یافته است. شیب نمودار در بازه  $pH \leq 1.5$  نسبت به مقادیر  $pH \geq 1.5$  بیشتر است. بنابراین اثر pH بر حذف اکسید آهن در محدوده سطوح دوم و سوم پارامتر pH پالپ ( $pH=2-1.5$ ) از محدوده سطوح اول و دوم این پارامتر ( $pH=1-1.5$ ) کمتر است. با کاهش pH، غلظت مولی یون‌های هیدروژن فعال در محلول به صورت لگاریتمی و به دنبال آن قدرت یونی الکترولیت (محلول اسیدی) افزایش یافته و بنابراین انحلال پذیری ترکیبات آهن در محلول نیز افزایش می‌یابد. با توجه به شکل، در pH برابر با ۱، بیشترین میزان حذف آهن حاصل شده است. تحت شرایط دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد و درصد جامد ۶۰ درصد، میزان اکسید آهن به حدود ۰٫۰۴ درصد رسیده است.

مطابق شکل ۵، نمودار اثر دما بر حذف آهن نیز مشابه اثر pH پالپ دو شیب متفاوت دارد. مطابق شکل، با افزایش دمای پالپ از سطح پایین ۴۰ درجه سانتی‌گراد تا سطح بالای دما معادل ۸۰ درجه سانتی‌گراد، میزان اکسید آهن از حدود ۰٫۰۸ درصد به حدود ۰٫۰۶ درصد کاهش یافته است. شیب نمودار در بازه دمایی بین ۴۰ تا ۶۰ سانتی‌گراد نسبت به شیب نمودار در بازه ۶۰ تا ۸۰ سانتی‌گراد بیشتر است. بنابراین، بر اساس نتایج به دست آمده، اثر دما در سطوح پایین تر بیشتر است.



شکل ۶: منحنی سه بعدی اثرات متقابل پارامترهای pH و دما بر میزان اکسید آهن ماسه سیلیسی



شکل ۵: اثر پارامترها بصورت تک عاملی بر درصد اکسید آهن محتوی ماسه سیلیسی



با افزایش درصد جامد از ۵۰٪ به ۷۰٪ درصد اکسید آهن از ۰٫۴۴ درصد به ۰٫۳۷ درصد در دمای ثابت ۶۰ درجه سانتی‌گراد کاهش یافته است.

#### ۴- نتیجه‌گیری

در این تحقیق، امکان‌سنجی حذف آهن از نمونه ماسه‌های سیلیسی معدن چشین زنگان برای مصرف در صنایع شیشه‌سازی با روش اسیدشویی بررسی شد. مهم‌ترین نتایج این تحقیق عبارت از موارد زیر است:

۱- مطالعات کانی‌شناسی نمونه نشان داد که مهم‌ترین فاز موجود در نمونه، سیلیس با فرم متراکم و دانه‌ای است و پیریت و اکسید و هیدروکسیدهای آهن مانند هماتیت، گوتیت و لیمونیت تشکیل دهنده ناخالصی‌ها است.

۲- آزمایش‌های لیچینگ اسیدی با روش طراحی آزمایش تاگوچی با در نظر گرفتن ۳ پارامتر شامل pH، دما و درصد جامد پالپ انجام شدند. تعداد ۲۷ آزمایش به‌وسیله نرم‌افزار پیشنهاد شد. بر اساس نتایج به دست آمده از آنالیز واریانس، پارامتر pH در سطح اطمینان ۹۵٪ تاثیرگذارترین عامل در حذف آهن ماسه سیلیسی بوده است.

۳- دما، تاثیر قابل توجهی بر راندمان حذف آهن داشته است. با افزایش دما از ۴۰°C به ۸۰°C در pH=۱ و درصد جامد پالپ ۶۰٪، میزان اکسید آهن از حدود ۰٫۴۹ درصد به کمتر از ۰٫۳۴ درصد کاهش یافت. با افزایش دما، کارایی حذف آهن نیز افزایش یافت و میزان دمای بهینه برای کاهش آهن در فرآیند اسیدشویی، ۸۰ درجه سانتی‌گراد به دست آمد.

۴- با افزایش درصد جامد پالپ، کارایی حذف آهن نیز افزایش یافت. کمترین میزان اکسید آهن با درصد وزنی جامد ۷۰٪ به دست آمد. نتایج نشان داد که با افزایش درصد جامد از ۵۰٪ به ۷۰٪ در pH=۱ و دمای ۶۰°C، عیار اکسید آهن از حدود ۰٫۴۴ درصد به کمتر از ۰٫۳۷ درصد کاهش یافته است.

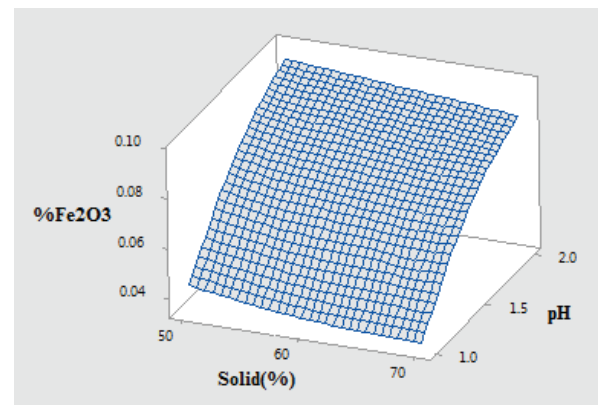
۵- عامل pH تاثیر بسیار زیادی در کارایی انحلال آهن دارد. بررسی نتایج حاکی از آن است که با کاهش pH از ۲ به ۱ در دمای ۶۰ درجه سانتی‌گراد و درصد جامد پالپ ۶۰٪، عیار اکسید آهن از حدود ۰٫۰۹٪ به حدود ۰٫۰۴ درصد کاهش یافته است. با کاهش pH، راندمان حذف آهن افزایش می‌یابد و pH بهینه برای کاهش عیار آهن در فرآیند اسیدشویی pH=۱ به دست آمد.

درجه تحت شرایط یاد شده ۰٫۳۸ درصد اندازه‌گیری شد. در سطح پایین pH، افزایش دما منجر به کاهش بیشتر اکسید آهن شده است. این در حالی است که در pHهای بالاتر، اثر افزایش دما بر کاهش اکسید آهن کمتر است. با توجه به نتایج جدول Anova و غالب بودن اثر pH، این نتیجه منطقی است.

#### ۳-۳-۳- بررسی تاثیر متقابل عوامل pH و درصد جامد

شکل ۷، اثر هم‌زمان دو پارامتر pH و درصد جامد پالپ را بر میزان حذف اکسید آهن ماسه سیلیسی در سطح مرکزی دما (۶۰ درجه سانتی‌گراد) نشان می‌دهد.

مطابق شکل، در pH=۱ و درصد وزنی جامد ۷۰٪، میزان اکسید آهن به کمترین مقدار خود رسیده است. در pHهای بالاتر، اثر متقابل به صورت خطی است و تاثیر فاکتورها نسبت به هم در مقایسه با pHهای پایین‌تر که منحنی شیب بیشتری دارد، کمتر است. مشاهده می‌شود که اثر متقابل پارامترهای pH و درصد وزنی جامد بر روی درصد اکسید آهن، اثری کاهنده است، یعنی با کاهش pH و افزایش هم‌زمان درصد وزنی جامد، اکسید آهن کاهش می‌یابد.



شکل ۷: منحنی سه بعدی اثرات متقابل pH و درصد جامد بر میزان اکسید آهن ماسه سیلیسی

با توجه به جدول ۶، اثر pH عامل قوی‌تری نسبت به اثر متقابل این دو فاکتور بر روی حذف اکسید آهن است. منحنی‌های pH پایین دارای شیب بیشتری‌اند و با افزایش درصد وزنی جامد به‌سوی کاهش بیشتر آهن پیش می‌رود. در pHهای پایین، اثر درصد جامد بر پاسخ (درصد آهن) بیشتر از اثر آن در pHهای بالاست. در سطح پایین pH=۱،

for purifying silica sand". US Patent, No.4401638.

- [10] Zhang, Zh., Li, J., Li, X., Huang, H., Zhou, L., and Xiong, T. (2012). "High efficiency iron removal from quartz sand using phosphoric acid". International Journal of Mineral Processing, 114: 30-34.
- [11] Panias, D., Taxiarchou, M., Papaliaris, L., and Konatopoulos, A. (1996). "Mechanisms of dissolution of iron oxides in aqueous oxalic acid solutions". Journal of Hydrometallurgy, 42: 257-265.
- [12] Chiarzia, R., and Horwitz, E. P. (1991). "New foundations for iron oxide dissolution". Journal of Hydrometallurgy, 27: 339-360.
- [13] Bonney, C. F. (1994). "Removal of iron from kaolin and quartz: dissolution in organic acids". Proceeding of Hydrometallurgy, 94: 313-324.
- [14] Veglio, F., Passariello, P., Barbaro, M., and Marabini, A. M. (1998). "Drum leaching tests in iron removal from quartz using oxalic and sulfuric acid". International Journal of Mineral Processing, 54: 183-200.
- [۱۵] حقی، ح؛ نوع پرست، م؛ ۱۳۸۶؛ "استفاده از اسید اگزالیک به منظور کاهش آهن زدایی از سیلیس مورد مصرف در صنایع شیشه". کنفرانس HSC، ص ۳۵۰-۳۳۰.
- [16] Tarasova, I. I., Dudeney, A. W. L., and Pilurzu, S. (2001). "Glass Sand processing by oxalic acid leaching and photocatalytic effluent treatment". Minerals Engineering Journal, 14: 639-646.
- [17] Kelly, E.G., and Spottiswood, D. J. (1982). "Introduction to mineral processing". Wiley New York, ISBN: 0471033790.
- [18] Montgomery, D. C. (1991). "Design and analysis of experiments". Third edition, John Wiley & Sons Inc. Somerset, New jersey, U.S.A.
- [19] Anderson, M. J., and Witcomb, P. J. (2000). "Practical tools for effective experimentation2". 2nd Edition, Productivity Inc. Portland, Oregon, ISBN 1-56327-225-3.

۶- تحت شرایط بهینه  $pH=1$ ، دمای ۸۰ سانتی‌گراد و درصد جامد ۷۰٪، بالاترین میزان حذف آهن حاصل شد. در این شرایط ماسه سیلیسی حاوی ۰٫۳۱ درصد اکسید آهن بوده است که مناسب برای شیشه‌های جام، ظروف شیشه‌ای و بلور بروسیلیکات است.

۷- برای اثبات اینکه شرایط بهینه، با کمترین خطای عملیاتی و خطای ناشی از آزمایشگر انجام شده است، آزمایش بند ۶ مجدداً تحت شرایط مشابه تکرار شد. میزان اکسید آهن معادل ۰٫۳۱۵ درصد حاصل شد که موید صحت نتایج است.

## ۵- مراجع

- [1] Outokumpu, Co. (2007). "Processing of silica sand". <http://www.outotec.com/14581.epibrw>, 1-19.
- [2] Carr, D. D. (1994). "Industrial Minerals and Rock". Society for Mining, Metallurgy and Exploration, Inc. Littleton, Co. ISBN 10: 0873351037, 6 th Edition.
- [3] Caballero, A. J., and Holcombe, R. I. (1983). "Process for purifying silica sand". US Patent, Patent number: 4401638.
- [4] Tsugeno, M., and Tainmoto, K. (1995). "Process for producing high purity silica by reacting crude silica with ammonium fluoride". US Patent, Patent Number.5458864. 5.
- [5] Tuncuk, A., and Akcil, A. (2014). "Removal of iron from quartz ore using different acids: A laboratory – scale reactor study". International journal of Mineral Processing Extractive Metallurgy, 35: 217-228.
- [۶] اجاوندی، ب؛ احمدی، ر؛ ۱۳۹۵؛ "امکانسنجی کاهش آهن از ماسه‌های سیلیسی جهت کاربرد در صنعت شیشه". پایان نامه کارشناسی ارشد، دانشگاه بین المللی امام خمینی (ره).
- [7] Fawell, S. (2011). "Magnetic Separation in sand processing". Magnetic Separation Techniques Journal, 5: 1-13.
- [8] Jaroslava S., and Darina S. (2015). "Iron Minerals Removal from Different Quartz Sand". Procedia Earth and Planetary Science, 15: 849-854.
- [9] Caballero, A. J., and Holcombe, R. I. (1983). "Process

<sup>1</sup> Chip sampling



## Optimization Of Effectives Of Parameters On Acid Leaching Of Silica Sand For Use In Glass Industry

Ahmadi R.<sup>1\*</sup>, Ojavandi B.<sup>2</sup>

1- Assistant Professor, Dept. of Mineral Processing, Imam Khomeini International University (IKIU), Qazvin  
r.ahmadi32@gmail.com

2- M.Sc, Dept. of Mineral Processing, Imam Khomeini International University (IKIU), Qazvin  
babakojavandi@yahoo.com

(Received: 13 Jun. 2018, Accepted: 03 Oct. 2018)

**Abstract:** In this paper, the removal of iron oxide (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) from silica sand samples of Cheshin mine with acid leaching (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) has been investigated under various experimental conditions. The silica sample used for leaching process contains 96.23% SiO<sub>2</sub>, 0.13% Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, and 1.67% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. The parameters affecting the process were investigated through designing experiments by Taguchi method in Minitab software. The parameters studied were: pH value, solid content, and pulp temperature. Mineralogical studies indicated that the silica sand sample contains pyrite, and iron oxide and iron hydroxide minerals such as hematite, goethite, and limonite. The results of acid leaching process indicated that the iron removal would increase by decreasing pH from 2 to 1. Also, the amount of iron in silica sand would decrease as the solid content and the temperature were increased from 50% to 70% and 40 °C to 80 °C, respectively. The highest iron removal rate was obtained under the optimum conditions including pH=1, temperature degree =80 °C, and the solid content of 70%. Therefore, the final processed sample contained 98.50% SiO<sub>2</sub>, 0.031% iron oxide (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), 0.70% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, and 0.32% CaO, which is suitable for producing cup glass, glassware, and borosilicate crystal.

**Keywords:** Silica sand, Iron Oxide, Acid leaching, Glass industry, Effective parameters.

### INTRODUCTION

Silica is one of the main materials, which are used in glass production. Iron oxide (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) causes the green color to be produced in the glass, and so, it's necessary to be reduced before using. According to the type of produced glass, the iron oxide content varies from 0.07% (to produce glass containers) and 0.01% (to produce crystals and optical glasses) [1]. There are various methods to remove silicon iron, of which the more common are crushing, aggregation, scrubbing, washing and grinding, gravity separation (shaking and spiral stacking), flotation, magnetic separation, and acid leaching [2,3]. In some cases, to reduce the consumption of acidic solvents and to devaluate the operating costs and decreasing environmental problems, preprocessing operations such as magnetic separation [4,5] or new methods, such as bioacid

leaching before acidification are also used [6]. In this paper, removal of iron oxide from silica sand samples of Cheshin mine in Zanjan by acid leaching with sulfuric acid in glass industries is investigated.

## MATERIAL AND METHODS

### MATERIALS

Silica samples are prepared from Cheshin Mine, Zanjan. The Sulfuric acid (98%) of Zanjan Acid Sazan Co. is used to adjust pH and for the process of acid leaching.

### METHODS

#### SAMPLING AND PREPARATION

In order to conduct identification studies and acid leaching tests, samples were taken from the mine site, fronts and depots. The grinding of the sample was done in two stages of jaw and cone crushing up to dimensions of  $d_{100} = 2710$  microns and a bar mill with a diameter  $d_{80} = 327$  microns in one stage, and then, with the help of a rifle and cone, the sample was uniformly divided.

#### MINERALOGY STUDIES

To study mineralogy, a 2 – kilogram sample is prepared and is divided to 8 dimension zones, which are +500, +300, +250, +180, +150, +125, +75 and – 75 microns. According to thin and polish sections, the iron minerals in silica are as pyrite, iron oxides and iron hydroxides that are represented as Hematite, Goethite and limonite. Due to mineralogy and liberation degree, the silica is 80% free under the size of 125 microns.

#### ACID LEACHING TESTS

To test acid leaching, a specific amount of sample is solved into 2-liter container of distilled water. By using a stirrer and a hot plate, the temperature is fixed and the sulfuric acid (95%) is added to pulp to control Ph. Acid leaching tests are conducted in different temperatures, solid percentage and pH of pulp during 30 minutes and 800 rpm. The acid leaching pulp is filtered after each test. The filtration cake is analyzed after drying out and weighting.

In this paper, the designing of test with the Taguchi method in Minitab 17 software is used to analyze the different variable and the interaction of pulp temperature, pulp pH and pulp solid percentage, in high, low and center level on iron removal rate (as a response).

## FINDING and ARGUMETS

### THE CHEMICAL ANALYSIS (AAS)

Based on the analysis carried out by the atomic absorption device, the iron oxide content of the sample was determined to be 0.13%. This ore contains 96.2%  $\text{SiO}_2$  and 1.67%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

### ACID LEACHING TESTS

Based on the results obtained from the initial experiments and the design of the experiments, the pH and the solid percentage are, respectively the most and the least effective factors in the removal of iron. At pH 1, the highest amount of iron removal is achieved. The amount of iron oxide is reduced from about 0.095 to about 0.04% when pH is decreased from 2 to 1, by increasing pulp temperature from 40 to 80 °C, the amount of iron oxide is reduced from about 0.08% to about 0.66% and by increasing the percentage of Solid pulp from 50 to 70 percent, it has dropped from about 0.75-0.67 percent.

## CONCLUSIONS

Temperature has a significant influence on iron removal efficiency. As the temperature increased, the iron removal efficiency was increased and the optimum temperature for reducing iron in acid leaching process was obtained at 80 °C. The amount of iron removal increased with increasing pulp solids content. However, the effect of pH on iron removal was higher than solids and temperature. Under optimal conditions, the highest iron removal rate was obtained when if pH=1, temperature= 80 °C and solids content of pulp =70%. In this condition, silica sand contains 0.031% iron oxide, which is suitable for glass jars, glassware and

borosilicate crystals.

## REFERENCES

- [1] Outokumpu, Co. (2007). "*Processing of silica sand*". <http://www.outotec.com/14581.epibrw>, 1-19.
- [2] Carr, D. D. (1994). "*Industrial Minerals & Rock*". Society for Mining, Metallurgy and Exploration (SME), Inc. Littleton, Co. ISBN 10: 0873351037, 6th Edition.
- [3] Tsugeno, M., and Tainmoto, K. (1995). "*Process for producing high purity silica by reacting crude silica with ammonium fluoride*". US Patent, No.5458864. 5.
- [4] Ojavandi, B., Ahmadi, R. (2017). "*A feasibility study of iron removal from silica sand for use in the glass industry*". a MSc thesis in Mining Engineering, Qazvin, Iran.
- [5] Fawell, S. (2011). "*Magnetic Separation in sand processing*". Magnetic Separation Techniques Journal, 5: 1-13.
- [6] Jaroslava, S., and Darina, S. (2015). "*Iron Minerals Removal from Different Quartz Sands*". Procedia Earth and Planetary Science, 15: 849-854.