

ECOLE NATIONALE POLYTECHNIQUE
Département Génie Minier



Mémoire de fin d'étude
En vue de l'obtention du Diplôme
D'Ingénieur d'Etat en *Génie Minier*

THÈME

**ETUDE DE LA LIXIVIATION ALCALINE
D'UN LOT DE MINERAI D'URANIUM DE
TIMGAOUINE**

Encadré par :
M^r. A. SAADA
M^r. R. GHERBI

Réalisé par :
M^r. ZADI Fares Zine El Abidine

Proposé par :
CENTRE DE RECHERCHE NUCLEAIRE DE DRARIA
DÉPARTEMENT DE RECHERCHE EN GÉNIE DES PROCÉDÉS

Juin 2012

Remerciements

J'ai eu le plaisir de réaliser ce travail de recherche au Centre de Recherche Nucléaire de Draria. Je remercie Monsieur M. ATTOU directeur de la division DGPM, A. BOUCHARITE chercheur.

Ce travail de recherche n'aurait pu avoir lieu, sans l'aide de précieuses personnes. Je tiens à remercier sincèrement mes encadrateurs :

A. SAADA pour les judicieux conseils, les innombrables conversations « éclairantes », mais surtout d'avoir encadré et dirigé ce modeste travail.

R. GHERBI pour avoir donné un point d'équilibre à ce travail, soutenu et accompagné tout au long de ces 5 mois de stage.

Vivement, je remercie l'ensemble de l'administration de l'école nationale polytechnique en particulier le département GENIE MINIER.

J'associe à ces remerciements tous les membres du laboratoire de recherche en génie des procédés : les enseignants chercheurs, les techniciens, les doctorants, qui m'ont accueilli pendant toute la durée de ce travail.

Ces remerciements seraient bien évidemment incomplets sans l'immense reconnaissance que j'ai pour MES PARENTS, MON FRERE, MES SOEURS et MA GRAND MERE qui m'ont toujours soutenu et encouragé tendrement pendant toute la durée de mes études.

Enfin, je remercie chaleureusement tous mes amis dont l'affection et le soutien ont été déterminant pour la réussite de mon parcours universitaire.

ملخص

الهدف من هذا المشروع هو تحديد معايير الترشيح القلوية للحصول علي خام اليورانيوم من طبقة معدن تيمقاوين.

سيتم تنفيذ تصميم مناسب التجريبية ، تستخدم مفاعلات من نوع الأتوكلاف الذي تعمل تحت ضغط عال و درجة حرارة معينة .

قبل أن تتم المعالجة نقوم بتعيين الخصائص المتعلقة بالترسيب و تعيين المعطيات الأساسية. أثناء سير العمليات لابد من السيطرة علي العوامل الأكثر نفوذ.

كلمات مفتاحيه: مفاعل , يورانيوم , كربونات , تحلية,حرارة, ضغط.

Résumé

L'objectif de ce projet est la détermination des paramètres de lixiviation alcaline d'un lot de minerai d'uranium de Timgaouine. A cet effet, un plan d'expérience approprié sera mis en œuvre. Des réacteurs de type autoclaves permettant d'opérer sous pression et température élevées seront utilisés. Préalablement des opérations de prétraitement du lot de minerai et d'échantillons seront effectuées. Au cours de la conduite du projet, l'analyse des éléments les plus influents doit être maîtrisée

Mots clés : réacteur, uranium, carbonate, lixiviation, température, pression.

Abstract

This work aims to determine alkaline leaching parameters of Timgaouine's uranium ore batch. An appropriate experimental design plan has been proposed and implemented. Autoclave type reactor, allows operating under high temperature and high pressure, has been used. Beforehand, uranium ore batch has undergone pretreatment operations and then, sampling has been carried out. As this work has been underway, the most influential elements analysis has to be mastered

Keywords: reactor, uranium, carbonate, alkaline leaching, pressure, temperature.

SOMMAIRE

INTRODUCTION.....	01
Partie1 : Etude théorique	
Chapitre I : Synthèse Bibliographique	03
I.1. L'élément Uranium	
I.2. Propriétés de l'Uranium	
I.2.1. Les propriétés nucléaires.....	04
I.2.2. Les propriétés chimiques.....	04
I.2.3. L'Uranium Métal.....	05
I.2.4. L'Uranium Oxydes.....	05
I.3. Minerai et Minéraux d'Uranium.....	05
I.4. Obtention du concentré uranifère.....	08
I.5. La lixiviation uranifère	11
I.5.1. Lixiviation acide.....	12
I.5.2. Lixiviation alcaline.....	12
I.5.2.1. Les réactions de dissolution de l'uranium.....	14
I.5.2.2. Neutralisation des bicarbonates.....	15
I.5.2.3. dissolution des minéraux de la gangue ou réactions secondaires.....	15
I.6. Paramètres de lixiviation alcaline.....	16
I.6.1 Facteurs influençant la dissolution de l'uranium dans le réacteur.....	17
I.6.1.1 Effet de la pression	17
I.6.1.2 Vitesse d'agitation.....	17
I.6.1.3 Présence d'autres ions.....	17
I.7. Aspects économiques.....	18
Chapitre II : Description et localisation du gisement	
Introduction.....	21
II.1 DESCRIPTION DU GISEMENT DE TIMGAOUINE.....	22
II.1.1. Travaux réalisés.....	22
II.1.2. Cadre Géologique.....	24
II.1.3. Minéralisations.....	25
II.2. METHODES D'EXPLORATION DE L'URANIUM.....	28
II.2.1. RADIOMETRIE.....	28
II.2.1.1 RAYONNEMENT GAMMA.....	28
II.2.1.1.1 Scintillométrie.....	28
II.2.1.1.2. Prospection aéro spectrométrique.....	28
II.2.1.1.3 Prospection au sol.....	28
II.2.1.1.4 Prospection radiométrique en fond de trou.....	28
II.2.1.2 RAYONNEMENT ALPHA.....	29
II.2.2. GÉOCHIMIE.....	29
II.2.3. AUTRES MÉTHODES GÉOPHYSIQUES.....	30
Chapitre III : Méthodes et techniques de prétraitement	
INTRODUCTION.....	31
III.1. Équipement de protection	31
III.2. Registre d'échantillonnage	31
III.3. Préparation mécanique.....	31
III.4. Echantillonnage	32

III.5. Quartage.....	32
III.5.1. Quartage par la méthode du cône.....	32
III.5.2. Quartage par un diviseur.....	33
III.5.3. Limites du quartage mécanique.....	33
III.6. Analyse granulométrique.....	33
III.7. Tamisage.....	34
III.7.1. But de l'essai.....	34
III.7.2. Principe de l'essai.....	34
III.7.3. Description de l'essai.....	34
Chapitre IV : Plans d'expériences	
INTRODUCTION.....	35
IV.2. Espace expérimental.....	36
IV.3. Modélisation mathématique.....	36
IV.4. Modélisation expérimentale.....	37
IV.4.1. Système d'équations.....	37
IV.5. Notions de statistiques appliquées aux plans d'expériences.....	38
IV.5.1. Erreur expérimentale.....	38
IV.5.2. Moyenne.....	39
IV.5.3. Écart-type.....	39
IV.5.4. Population.....	39
IV.5.5. Échantillon.....	39
IV.5.6. De l'échantillon à la population.....	40
IV.5.7. La variance.....	40
IV.6. Facteurs et interactions influents.....	40
IV.7. Test de Cochran d'homogénéité des variances.....	41
IV.8. Calcul des coefficients du modèle de la régression linéaire multiple.....	41
IV.9. Présentation du modèle choisis.....	42
Partie2 : Etude expérimentale	
Chapitre V : Mise en œuvre des techniques expérimentales	
V.1. La fragmentation du minerai.....	44
V.1. 1. Concassage.....	44
V.1. 2. Broyage.....	45
V.1. 3. Broyage poussé.....	45
V.2. Echantillonnage.....	46
V.2.1. Matériel requis.....	46
V.2.2. Méthode d'échantillonnage.....	46
V.3. Quartage.....	47
V.3.1. Aspects pratiques.....	47
V.3.2. Matériel nécessaire pour le quartage.....	47
V.4. Tamisage.....	47
V.4.1. Appareillage.....	48
V.4.2. Mode opératoire.....	48
V.4.2.1. Choix de l'échantillon.....	49
V.4.2.2. Classification des tamis.....	49
V.4.2.3. Introduction de l'échantillon dans la colonne.....	49
V.4.2.4. Tamisage.....	49
V.4.2.5. Peser les refus.....	49
V.5. Séchage.....	49

V.6. Essais de lixiviation alcaline	
V.6.1. Choix du plan d'expérience.....	50
V.6.2. Dispositif expérimental.....	51
V.7. Dispositif de filtration.....	52
V.8. Analyse des échantillons	52
Chapitre VI : Résultats et interprétation	
Introduction.....	53
VI.2. Chimie analytique	54
Analyse chimique des minerais d'uranium de Timgaouine.....	54
Analyse par fluorescence aux rayons-X	54
VI.2.1. Détermination de la teneur en uranium des minerais issus du fût N°1.....	54
VI.3. Analyse granulométrique.....	55
VI.3.1. Analyse du contenu d'uranium de chaque classe.....	56
VI.4. Tests de lixiviation alcaline.....	57
VI.4.1. Test préliminaire de lixiviation alcaline	58
VI.4.2. Test de lixiviation alcaline du minerai en vrac	58
VI.5. Etude de la lixiviation alcaline suivant un plan d'expérience.....	60
VI.5.1. Choix des niveaux de facteurs et du plan d'expérience.....	60
VI.5.2. Evaluation des effets.....	60
VI.5.3. Modélisation des résultats	64
VI.5.3.1. Modèle mathématique.....	64
VI.5.3.2. Profileur de prévision	65
VI.5.3.3. Profils d'interactions.....	66
VI.5.3.4. Profileur d'isoréponse.....	67
VI.6. Conclusion.....	68
CONCLUSION.....	69
Annexes	

Liste des figures

- Fig I.1.** Schéma explicatif des principaux procédés de concentration de l'uranium.
- Fig. II.1.** Carte de situation.
- Fig. II.2.** Carte Géologique de la Feuille de Timgaouine.
- Fig. II.3.** Différentes minéralisations uranifères du gisement de Timgaouine.
- Fig. II.4.** Coupe géologique du gisement de Timgaouine.
- Fig III.1.** Méthode manuelle de quartage (méthode du cône).
- Fig V.1.** Concasseur à mâchoires utilisé.
- Fig V.2.** Broyeur à disque utilisé.
- Fig V.3.** Pulvérisettes en agate.
- Fig V.4.** Vue générale d'un système de quartage.
- Fig V.5.** Les différentes tailles de quarteurs disponibles.
- Fig V.6.** Tamiseuse.
- Fig V.7.** Etuve.
- Fig V.8.** Filtration et lavage.
- Fig V.9.** Résidu de lixiviation à analyser.
- Fig. VI.1.** Schéma des procédés de prétraitement et de traitement du minerai.
- Fig. VI.2.** Teneur des différents échantillons, obtenue par volumétrie et ICP.
- Fig. VI.3.** Résultats d'analyse volumétrique des différents échantillons pour deux niveaux de broyage.
- Fig. VI.4.** Analyse granulométrique de l'échantillon N°1.
- Fig. VI.5.** Distribution de la teneur en uranium au niveau des classes granulométriques.
- Fig. VI.6.** Distribution de la teneur en Uranium entre minerai et résidu, ainsi que le taux de récupération de l'U dans la lixiviation des différentes classes granulométriques.
- Fig. VI.7.** Diagramme à barres des contrastes.
- Fig. VI.8.** Diagramme Pareto des effets.
- Fig. VI.9.** Comparaison des résultats expérimentaux avec ceux issus du modèle.
- Figure IV.10.** Diagramme des effets des différents facteurs sur le taux de lixiviation.
- Fig. VI.11.** Profils d'interaction.
- Fig. VI.12.** Profileur d'isoréponses : $t= 4h$, $C= 0,16g/g$ de minerai.
-

Liste des tableaux

Tableaux I.1. Composition chimique et propriétés des plus importants minéraux contenant de l'uranium.

Tableau I.2. Classification des minerais selon leur méthode de traitement.

Tableau I.3. Liste d'oxydants utilisés dans la lixiviation uranifère.

Tableau I.4. Classification des minerais selon la solubilité de l'uranium en milieu acide et alcalin.

Tableau I.5. Besoins énergétiques associés aux procédés de lixiviation alcaline et acide.

Tableau I.6. Equivalents énergétiques de quelques réactifs utilisés dans les procédés de lixiviation, précipitation et extraction liquide-liquide.

Tableau I.7. Coûts d'opérabilité.

Tableaux I.8. Coût des opérations unitaires de traitement de l'uranium.

Tableau II.1. Ressources

Tableau II.1. Caractéristiques minéralogiques du minerai de Timgaouine

Tableau V.1. Conditions des tests préliminaires.

Tableau V.2. Plans d'expérience pour l'étude sur le taux d'extraction

Tableau VI.1. Analyses volumétrique et par fluorescence RX du minerai de Timgaouine

Tableau VI.2. Résultat de la classification granulométrique

Tableau VI.3. Distribution de la teneur en uranium au niveau des classes granulométriques.

Tableau VI.4. Résultats globaux des tests de lixiviation alcaline

Tableau VI.5. La teneur de l'uranium en amont et en aval de la lixiviation alcaline dans les différentes classes granulométriques

Tableau VI.6. Les facteurs de la lixiviation alcaline et leur domaine d'étude.

Tableau VI.7. Résultats obtenus par le plan d'expérience

Tableau VI.8. Effet des coefficients ainsi que leur contribution globale

INTRODUCTION

INTRODUCTION

L'Uranium est un métal exceptionnel en raison de ses caractéristiques physico-chimiques. Il est présent dans pratiquement tous les milieux naturels : roches et eau. Il y a en effet 3 mg/d'uranium par mètre cube d'eau de mer. L'uranium est tout de même relativement répandu dans l'écorce terrestre, notamment dans les terrains granitiques et sédimentaires. La concentration d'uranium dans ces roches est de l'ordre de 3 g/tonne.

C'est un métal lourd radioactif (émetteur alpha), de période très longue (~ 4,5 milliards d'années pour l'uranium 238 et ~ 700 millions pour l'uranium 235). Sa faible radioactivité, additionnée à celle de ses descendants dans sa chaîne de désintégration, génère une puissance de 0,1 Watt par tonne, ce qui en fait, avec le thorium (quatre fois plus abondant, mais trois fois moins radioactif), la principale source de chaleur qui tend à maintenir les hautes températures du manteau terrestre, en ralentissant de beaucoup son refroidissement. L'isotope ^{235}U est le seul isotope fissile naturel. Sa fission libère une énergie voisine de 200 MeV par atome fissionné. Cette énergie est plus d'un million de fois supérieure à celle des combustibles fossiles pour une masse équivalente. De ce fait, l'uranium est devenu la principale matière première utilisée par l'industrie nucléaire.

Les réserves 3P (prouvées + probables + possibles) d'uranium étaient estimées par l'AIEA à 5,4 millions de tonnes dans le monde en 2009, réparties essentiellement entre l'Australie (31 %), le Kazakhstan (12 %), le Canada (9 %) et la Russie (9 %) ; la production mondiale s'est élevée, quant à elle à environ 50 000 tonnes en 2009, répartis entre le Kazakhstan (28 %), le Canada (20 %), l'Australie (16 %), la Namibie (9 %), la Russie (7 %), le Niger (6 %) et l'Ouzbékistan (5 %).

Les minerais d'uranium contiennent généralement un à quelques kilogrammes de métal par tonne de minerai brut. Il sera donc nécessaire de leur faire subir des opérations de concentration pour les amener sous une forme marchande.

L'uranium étant un métal très réactif ; ce sont les traitements chimiques ou hydrométallurgiques qui se sont avérés les plus efficaces à cause des rendements qu'ils permettent d'obtenir. C'est d'ailleurs grâce à Cela que leur importance industrielle ne cesse de s'accroître.

Le procédé de lixiviation a pour but de fournir un rendement d'extraction élevé au niveau du composant, soit de 90 à 93% pour des minerais renferment 0.1% d'uranium, et environ 90% pour des minerais enrichis.

La lixiviation acide des minerais uranifères est la méthode la plus répandue. On dénombre près de 90 % des minerais d'Uranium, traités par lixiviation à l'aide de solutions diluées d'acide sulfurique avec additif, ou sans additif oxydant.

Si le minerai contient plus de 10% en carbonate, il est alors préférable d'utiliser la voie alcaline. Et de même pour un minerai contenant de la calcite, dolomite et de la magnésite, puisque la lixiviation acide nécessite une consommation importante en réactifs. Il est donc avantageux d'opter pour la lixiviation alcaline.

Les travaux de recherche effectués pour étudier et optimiser le procédé d'extraction dans la lixiviation alcaline de l'uranium sont résumés dans le présent travail.

Notre étude a pour objectif d'évaluer l'effet de quelques paramètres semble être les plus influents qui sont la température, la taille moyenne des particules, le temps et la concentration en agent lixiviant, sur le taux d'extraction dans la lixiviation alcaline. Elle est réalisée sur des échantillons provenant du gisement de Timgaouine (Hoggar).

Le présent mémoire se divise en deux grandes parties :

Une partie théorique consistant en une dans l'étude bibliographiques, renfermant principalement :

1. L'uranium et ses caractéristiques physico-chimiques, les différentes méthodes Hydrométallurgiques de traitement du minerai riche en uranium
2. Description du gisement de Timgaouine.
3. Les méthodes de concentration et de prétraitement de ce minerai.
4. Les principales étapes de la procédure des plans d'expérience

Une seconde partie expérimentale, consacrée à :

1. La présentation du matériel et la méthode utilisée dans cette étude.
2. La présentation des résultats des essais réalisés.

Chapitre I

Synthèse Bibliographique

I.1. L'élément Uranium

L'Uranium, de symbole U, est le dernier élément naturel du tableau périodique de Mendeleev. Chaque atome d'uranium possède 92 protons et entre 135 et 148 neutrons ; la plus grande masse atomique ($A = 234, 235, 238$). Il appartient à une série de 15 éléments, dits *actinides*, car commençant par l'actinium ($Z = 89$), série se prolongeant au-delà de l'uranium par des *éléments artificiels*.

A l'état pur, l'uranium solide est un métal radioactif gris à blanc (voire argenté), qui rappelle la couleur du nickel. Il est dur et très dense. De plus, l'uranium est l'atome le plus lourd (contenant le plus de nucléons), présent naturellement sur Terre (**Jérôme ROUSSELLE, 2004**).

L'uranium a dix-sept isotopes, tous radioactifs, dont trois seulement sont présents à l'état naturel : ^{238}U ; ^{235}U et ^{234}U .

L'uranium a été mis en évidence en 1789 par le chimiste prussien Martin Heinrich Klaproth, en chauffant la pechblende (UO_2), un minéral d'uranium. Klaproth donna le nom d' "urane " ou " uranite " au composé qu'il venait d'identifier, en référence à la découverte de la planète Uranus par William Herschel, huit ans plus tôt (1781).

Ce n'est que cinquante ans plus tard, que le chimiste français Eugène Péligot établit que l'urane était composé de deux atomes d'oxygène et d'un atome de métal, qu'il isola et nomma uranium.

Henri Becquerel ne découvrit la propriété radioactive de l'uranium, que beaucoup plus tard, en 1896, lorsqu'il constata que des plaques photographiques placées à côté de sels d'uranium avait été impressionnées sans avoir été exposées à la lumière du soleil. Les plaques avaient été noircies par les rayonnements émis par les sels : le Français Henri Becquerel avait découvert le phénomène de la radioactivité naturelle.

En 1898, Pierre et Marie CURIE découvraient que le minerai d'Uranium renfermait du Radium. Cela permit d'intensifier les recherches concernant les minerais d'uranium, de les extraire et de les exploiter. Les minerais d'uranium deviennent en quelque sorte une source d'extraction du radium ; quant à l'uranium, on l'obtient comme sous produit.

L'uranium prit de l'importance, après la découverte effectuée en 1939 sur la séparation du noyau d'Uranium, ouvrant la voie à l'utilisation d'une quantité intense d'énergie libérée.

En 1942, Enrico FERMI élaborait le premier réacteur atomique. Ce réacteur lui servit pour réaliser la réaction en chaîne de la séparation du noyau d'uranium. Dès ce moment là, commença le véritable essor de l'industrie minière et de l'extraction de l'Uranium.

I.2. Propriétés de l'Uranium

I.2.1. Les propriétés nucléaires

Les usages de l'uranium sont restés très limités pendant 150 ans ; il n'était qu'un pigment jaune vif pour la céramique, la cristallerie ou la bijouterie. Mais la découverte de ses propriétés nucléaires, à la fin des années 1930, a changé totalement son intérêt.

L'uranium représente un miracle de la nature, car il est le seul atome naturel qui permette « *L'allumage* » de l'énergie de fission, grâce à son isotope 235 (0,7 %), très fissile par des neutrons de faible énergie (*louis PATARIN, 2002*).

Cependant son isotope le plus abondant, 238, est également précieux car, par capture neutronique, il donne naissance à un élément artificiel très fissile, le **plutonium**. L'uranium 238 est dit fertile, car il subit ainsi une conversion susceptible d'accroître considérablement la ressource d'énergie de fission, si la réaction en chaîne dispose d'un excès de neutrons suffisant, ce qui est particulièrement vrai dans les réacteurs à neutrons rapides.

L'activité spécifique de l'uranium naturel est de 24,4 MBq kg⁻¹, la moitié étant due à l'isotope 238 et l'autre moitié à l'isotope 234, la contribution du 235 étant négligeable. (*louis PATARIN, 2002*).

I.2.2. Les propriétés chimiques

Rappel de la configuration électronique de l'uranium : [Rn] 5f³ 6d¹ 7s². Les 6 électrons périphériques de valence sont facilement extractibles. Le métal est donc très réducteur, il s'oxyde rapidement à l'air humide ou chaud.

La chimie de l'uranium est complexe (électrons 5f). Ses principales propriétés sont:

- Plusieurs degrés d'oxydation, de III à VI, le dernier étant le plus stable sous forme d'ion uranyle UO₂²⁺ en solution et Les conditions de passage de la valence IV à la valence VI dépendent du potentiel d'oxydoréduction du milieu ;
- Formation d'espèces complexes ioniques ;
- Solubilité remarquable du nitrate d'uranyle dans de nombreux composés organiques.

Ces propriétés sont utilisées dans les procédés industriels, qui visent soit des *produits*, soit des *extractions* préliminaires.

Enfin, les ions uranyle, UO₂²⁺, se dissolvent très bien dans la plupart des acides, comme dans l'acide nitrique (HNO₃) ou l'acide fluorhydrique (HF), en donnant des sels d'uranyle, tels que le nitrate d'uranyle (UO₂(NO₃)₂).

L'équation de la dissolution de l'ion uranyle en sel d'uranyle dans l'acide nitrique est la suivante :



I.2.3. L'Uranium Métal

C'est un produit utilisé dans les applications militaires et, comme combustible, dans les réacteurs d'essais. Dans le passé, il a été le combustible des réacteurs à uranium naturel graphite et gaz (UNGG). Dans le futur, il pourrait servir dans l'enrichissement par laser sur vapeur atomique. C'est un métal cassant qui peut être amélioré sous forme d'alliage.

Le métal est obtenu à partir du composé fluoruré UF_4 , que l'on réduit par le calcium ou le Magnésium.

I.2.4. L'Uranium Oxydes

A partir du nitrate d'uranyle et du diuranate d'ammonium qui sont des produits de base, on obtient par calcination à $350^\circ C$ l'oxyde UO_3 ; puis, par réduction à l'aide d'hydrogène, on aboutit à l'oxyde UO_2 . Cet oxyde se prépare aussi par hydrolyse du Fluorure UF_6 , provenant des usines d'enrichissement.

UO_2 est un composé très stable, servant à fabriquer la céramique, des pastilles du combustible des réacteurs à eau. Il conserve ses propriétés, en particulier mécaniques, jusqu'à proximité de son point de fusion ($2760^\circ C$), et ne réagit pas avec l'eau en cas de rupture de gaine du combustible, cependant il a l'inconvénient d'être peu conducteur de la Chaleur, et ne réagit pas avec l'eau en cas de rupture de gaine du combustible, mais il a l'inconvénient d'être peu conducteur de la Chaleur (*louis PATARIN, 2002*).

L' U_3O_8 est un oxyde naturel, se trouvant, par exemple, dans le minerai primaire, sous forme de pechblende, produit d'oxydation d' UO_2 .

Tous les oxydes se dissolvent dans les acides plus ou moins rapidement, notamment dans l'acide sulfurique (traitement du minerai) ou l'acide nitrique (traitement du combustible irradié).

I.3. Minerai et Minéraux d'Uranium.

L'Uranium est un élément relativement répandu et trop dispersé, sa teneur dans l'écorce terrestre étant de 3 à 4 ppm. Il est aussi abondant que l'étain ou le zinc, 50 fois plus que le mercure et 1000 fois plus que l'or.

L'Uranium se situe dans différents sols, dans les organismes animaux ou végétaux, ses propriétés physico-chimiques, et, plus particulièrement sa mobilité, la grande dimension de ses ions et sa grande activité chimique, lui permettent d'obtenir de nombreuses liaisons avec de nombreux éléments, de s'introduire dans la structure d'un grand nombre de minéraux et de prendre part à un certain nombre de réactions chimiques. En effet, ces propriétés aboutissent à sa dispersion (*SOUDARIKOV*).

Il est à dénombrer plus de 200 minéraux d'Uranium et minéraux contenant cet élément. Ils se classifient selon trois groupes :

- Minéraux, où l'Uranium se trouve sous formes d'oxydes ;
- Liaison de l'uranium (VI) avec des oxydes d'autres métaux, et d'oxyde et hydroxyde d'Uranium (VI) ;
- Mélange d'uranium (IV) et d'oxyde de métaux, tels que le titane, le Niobium, le Thorium.

Les minéraux d'uranium, industriellement utilisés, sont les suivant :

- Minéraux endogènes (primaires), ou plus exactement hypogènes.
- Minéraux exogènes (secondaires), ou plus exactement supergènes.

Tableaux I.1 : Composition chimique et propriétés des plus importants minéraux contenant de l'uranium.

Minéral	Quantité d'U %	Dureté	Densité
<u>Oxydes Anhydres d'Uranium</u>			
• Uraninite	62-78	5-7,6	7,7 – 10
• Pechblende	52,3 - 76,5	4-6,3	4,8 - 7,7
• Noir d'uranium	53	1-4	3,1-4,8
<u>Hydrate d'uranium :</u>			
• Hydro pechblende	62.2-65.4	3.1-4.5	4.3-4.6
• Schoépite	71	2-3	4.8-4.95
• Curite	62	4-5	7.2
<u>Titanate d'uranium :</u>			
• Brannerite	39	4.5-5.5	4.5-5.4
• Davidite	1-7	6	4.8
<u>Niobio Tantalates :</u>			
• Samarskite	8-22	5.0-5.5	5-6.9
<u>Sulfate-carbonates d'Uranium :</u>			
• Schroeckingérite ou Dakeite	17-29	2.5	2.47-2.5
<u>Phosphates d'uranium :</u>			
• Autunite	48-54	2-2.5	3.05-3.5
• Meta Uranocircite	41-48	2-2.5	3.2-3.6
• Terbernite	47-51	2-2.5	3.6-3.68
• Metatorbernite	47-53	2-2.5	5.71-5.75
• Parsonsite	29-50	2.3-2.5	3-3.45
<u>Arsenates d'U :</u>			
• Uranospinite	45-50	2-2.5	4-4.6
• Cinérite	45-47	2-2.5	4.46
<u>Vanadates d'uranium :</u>			
• Carnotite	52-59	2-2.5	3.31-3.35
• Tyuyamunite	44.5-52.4	1-2	3.81-3.96
<u>Silicates d'uranium</u>			
• Uranofane	55-58	2-3	3.95-4.08
• Uranotile	50-57	4-5	5.3-5.97
• Kasolite	35-43	4-5	
• Koffinite	61	---	----
• Gummite	0.25-19.6	2.5-3.0	4.7-5.8
• Thorite (+U)	4-16	1.5-6	3.94
<u>Minéraux contenant d'Uranium</u>			
• Monazite	0.25-19.6	5.55	4.9-5.3
• Euxénite	4-16	5-6	5.25-5.69
• Fergusonite	1-6	5.5-6.5	5.5-5.8
• Vilkite	0.25-20	4.4-5.5	3.5-4.2

En considérant la masse minière du minerai, on peut classer les minerais d'Uranium du point de vue propriétés technologiques.

Tableau I.2. Classification des minerais selon leur méthode de traitement.

Type de minerais	Quantité d'élément déterminant le type de minerais	Méthode possible de traitement hydro-métallurgique
Silicate et alumineux silicatés	+ de 95 minéraux	A
Carbonates	6-12% de carbonate	B.A
	12-25% de carbonate	B.A.*
	>25% de carbonate	B
Sulfures	3-10 de Sulfures	A
	10-25% de Sulfures	A
	>25% de Sulfures	A
Ferro oxydés	Minerai de fers indus	A
Phosphaté	3-10% de P ₂ O ₅	A
	10-20% de P ₂ O ₅	A
	>25% de P ₂ O ₅	A

A : lixiviation acide. * : rarement utilisé B : lixiviation basique

Les minerais peuvent se classer, quantitativement en :

- Minerais très riches, de teneur en Uranium > à 1% ;
- Minerais riches, de teneur en uranium, variant de 1 à 0.5 % ;
- Minerais moyennement riches en Uranium, de teneur 0.5 à 0.25% ;
- Minerais ordinaires, de teneur en uranium variant de 0.25 à 0.09% ;
- Minerais pauvres, de teneur en Uranium variant de 0 à 0.09% jusqu'à la limite industrielle ;
- Minerais d'équilibre.

La limite de la teneur en uranium s'élève de 0.01% à 0.05%, en fonction du type de minerais, de ses dimensions, du gisement et des conditions de travail.

Selon leur composition, les minerais se décomposent en minerais uranifères et en minerais complexes.

I.4. Obtention du concentré uranifère

Les minerais d'uranium contiennent généralement un à quelques kilogrammes de métal par tonne de minerai brut. Il serait donc nécessaire de leur faire subir des opérations de concentration pour les amener sous une forme marchande.

L'uranium étant un métal très réactif, ce sont les traitements chimiques ou hydrométallurgiques, qui se sont avérés les plus efficaces, à cause des rendements qu'ils peuvent engendrer. C'est d'ailleurs, grâce à cela, que leur importance industrielle ne cesse de s'accroître.

Toutes les méthodes chimico-technologiques de transformation du minerai d'uranium utilisent soit le procédé de lixiviation acide, soit celui par la voie alcaline. Le choix de telle ou telle méthode est conditionné par le type de minerai.

Le procédé de lixiviation a pour but de fournir un rendement d'extraction élevé au niveau du composant, soit de 90 à 93% pour des minerais, renfermant 0.1% d'uranium, et environ 90% pour des minerais enrichis (*T.HARRINGTON, . 1970*)

L'existence de différents mélanges et liaisons dans les minerais et la composition de la gangue sont des facteurs décisifs dans le choix du processus technologique.

Si le minerai contient plus de 10% en carbonate, il est alors préférable d'utiliser la voie alcaline. Il en est de même pour un minerai contenant de la calcite, dolomite et de la magnésite, puisque la lixiviation acide nécessite une consommation importante en réactifs. Il est donc avantageux d'opter pour la lixiviation alcaline.

Lorsque le minerai contient de la silice, le procédé à l'acide sulfurique est alors employé. L'utilisation de tel ou tel procédé se détermine en se référant aux facteurs suivants :

- Coût des réactifs ;
- Accessibilité des produits exigés pour la préparation de l'équipement ;
- Etat d'oxydation de l'uranium dans le minerai ;
- Solubilité des composés nuisibles.

L'uranium se trouve dans la solution sous forme hexavalent, ainsi que sous forme de liaison simple ou complexe d'uranyle-ion. Si on se trouve en présence de la valence tétravalente, il est nécessaire d'oxyder l'uranium, afin de le transformer sous la forme soluble hexavalent.

L'oxydation de l'uranium IV est possible avec n'importe quel oxydant, en milieu acide, dont le potentiel est supérieur à +0,33V, par rapport à l'électrode normale d'hydrogène. Par ailleurs, en milieu alcalin même les plus faibles oxydants sont efficaces.

Pour le choix d'un oxydant, il faut tenir compte de l'action corrosive du réactif sur le milieu de l'appareillage.

Tableau I.3. Liste d'oxydants utilisés dans la lixiviation uranifère.

Oxydant	Milieu	Produit de la réaction	Potentiel (Volt)	Oxydant	Milieu	Produit de la réaction	Potentiel (Volt)
H ₂ O ₂	Acide	H ₂ O	+ 1,8	HN0 ₃	-----	NO ₂	+ 0,77
KMnO ₄	Acide	MnO ₂ (solide)	+1,59	Fe ³⁺ (sel)	-----	Fe ²⁺	+ 0,75
KMnO ₄	Acide	Mn ²⁺	+1,52	KMnO ₄	Basique	MnO ₂	+0,54
KClO ₃	Acide	Cl ⁻	+1,44	O ₂ (r)	Basique	OH ⁻	+0,41
Cl ₂ (r)	Eau	Cl ⁻	+1,36	UO ²⁺ ₂	Acide	U ⁴⁺	+0,33
MnO ₂	Acide	Mn ²⁺	+1,35	Cu ²⁺	Acide	Cu ⁺	+0,16
O ₂ (r)	Acide	H ₂ O	+1,23	Na ₂ U ₂ O ₇	Basique	U(OH) ₄	-0,48
HN0 ₃	-----	NO	+0.95				

Le tableau suivant permet de donner la caractéristique qualitative de la solubilité des composants de l'uranium, provenant de la matière première ou du tout-venant.

Tableau I.4. Classification des minerais selon la solubilité de l'uranium en milieu acide ou alcalin.

CARACTERISTIQUES	DISSOLVANTS		
	HN0₃	H₂SO₄	Na₂CO₃
Oxydants	solubles complètement	en partie solubles.	très peu solubles
Hydrates	Idem	solubles complètement	solubles complètement
Phosphates	Idem	Idem	Idem
Arsenates	Idem	Idem	Idem
Vanadates	Idem	Idem	Idem
Silicates	Idem	Idem	Idem
Tantalo-Niobates	Insolubles	insolubles	solubles en partie

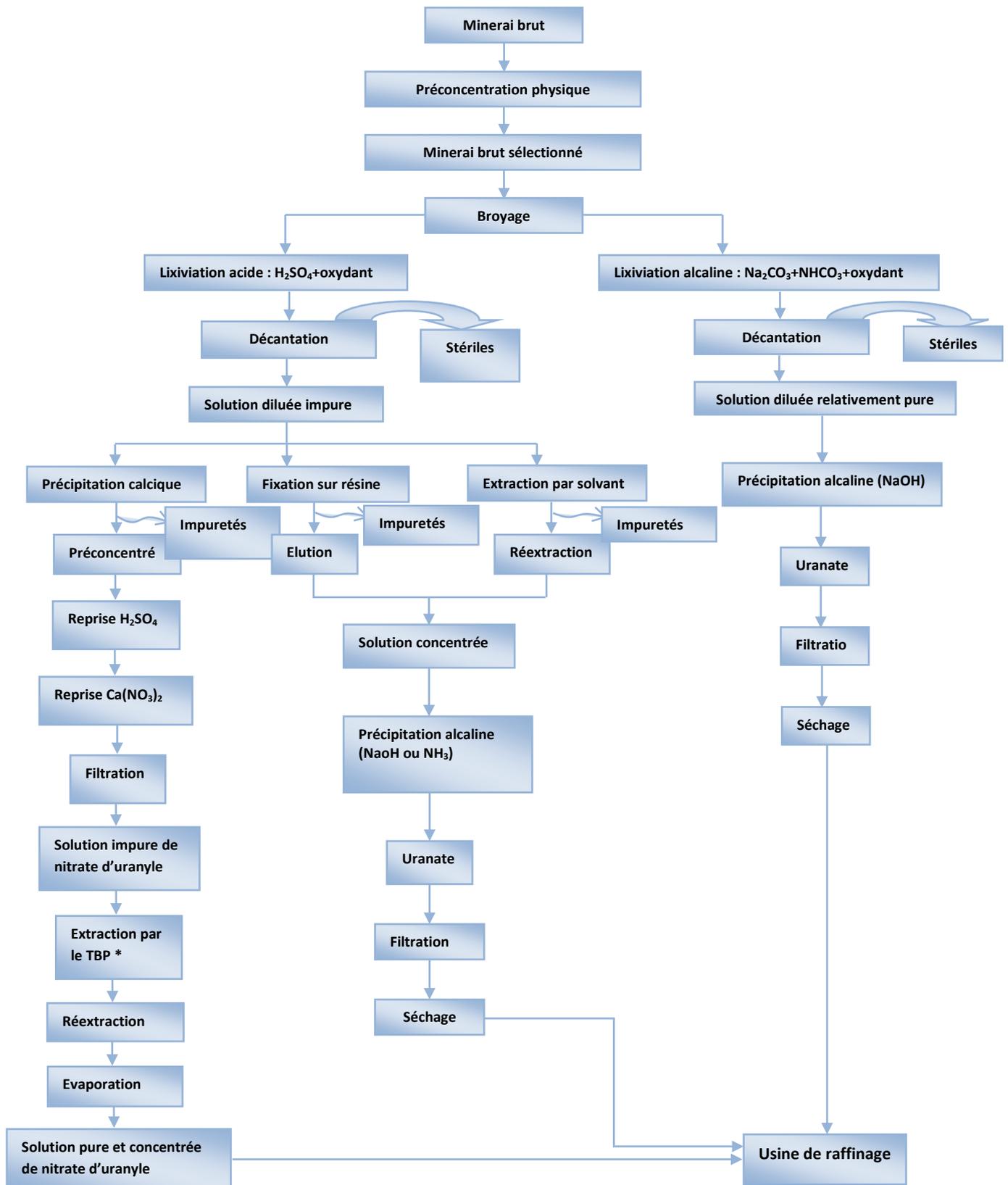


Fig I.1. Schéma explicatif des principaux procédés de concentration de l'uranium P.S :* TPB : Tributylphosphate.

I.1. La lixiviation uranifère

La lixiviation uranifère des minerais est considérée comme étant un procédé d'oxydation, dont l'uranium tétravalent insoluble se transforme en uranium hexavalent soluble (*Merritt, 1971*). Dans ce cas, on a suggéré que le procédé est dirigé par des phénomènes électrochimiques (*Hiskey, 1979*) ; de plus, l'établissement d'une corrélation entre le taux d'extraction de l'uranium dans la lixiviation et les propriétés chimiques de l'oxydant pourrait faciliter le choix du meilleur oxydant (*Needes & Nicol, 1972*). En lixiviation alcaline, l'élément oxydant est bien souvent l'oxygène, il est utilisé soit sous sa forme pure, sinon mélangé à l'air.

Plusieurs travaux publiés dans la littérature se sont intéressés à la lixiviation de l'uranium par ces deux modes, alcaline et acide, parmi lesquels, on citera :

Une étude comparative de la cinétique d'extraction entre la lixiviation alcaline et son homologue acide a révélé que le taux et la vitesse de lixiviation augmentent en fonction de la pression et de la température. Le taux le plus élevé obtenu était de 61% sous une pression atmosphérique et de 96,9% à dix (10) bar, les deux à 70°C. En outre, il a été prouvé que la vitesse de lixiviation soit proportionnelle à la racine cubique de la pression partielle de l'oxygène (*A.J. Mattus & A.E. Torma 1980*).

Une autre étude concernant la lixiviation alcaline simultanée de l'uranium et de l'or a été possible à l'aide d'un mélange de carbonate et de bicarbonate de sodium. On a démontré que la vitesse de lixiviation de l'uranium augmente avec la température ; de plus, notons que le temps et la température représentent les deux facteurs les plus importants qui régissent le processus de lixiviation alcaline (*J.G.H. DU PREEZ et al. 1980*).

Dans le but d'examiner la libération naturelle de l'uranium à partir des roches et des déchets, une étude de la lixiviation semi-dynamique, sous une atmosphère ambiante, en utilisant des solvants dilués, a révélé que ce procédé est très lent et le taux de récupération dans la lixiviation est très faible. De plus, deux processus ont été identifiés, comme étant responsable sur le procédé de lixiviation, à savoir le lavage de la surface et la diffusion (*A.C. Patra, 2011*). Cette étude prouve l'importance de deux facteurs, le temps et l'agitation mécanique, vis-à-vis du procédé de lixiviation de l'uranium.

De ces différents travaux, il ressort que la lixiviation de l'uranium est une opération, nécessitant une étude approfondie et une analyse méticuleuse, pour pouvoir cerner et optimiser les paramètres qui influent sur ce procédé. Les faibles teneurs d'uranium dans le minerai, la dispersion non uniforme du métal dans la gangue et les variétés minéralogiques complexes du minerai comptent parmi les facteurs qui compliquent davantage la mise en solution de l'uranium. Un travail scientifique strict est requis dans le but d'améliorer les taux de lixiviation et pouvoir récupérer la quasi-totalité du métal contenu dans le minerai. Nous distinguons plusieurs facteurs à prendre en considération, à savoir : la température, la pression, la concentration en acide ou en carbonate et bicarbonate, la granulométrie, l'agitation mécanique, le temps, le PH et le rapport L/S, etc.

I.5.1. Lixiviation acide

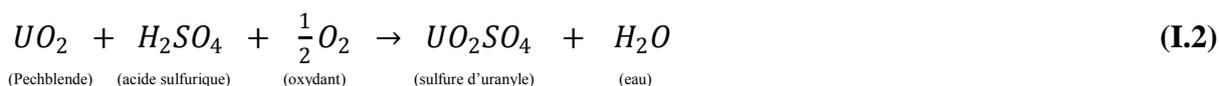
La lixiviation acide des minerais uranifères est la méthode la plus répandue. On dénombre près de 90 % des minerais d'Uranium, traités par lixiviation à l'aide de solutions diluées d'acide sulfurique avec additif, ou sans additif oxydant. Le minerai peut être traité par l'acide sulfurique, l'acide chlorhydrique ou l'acide nitrique. Le résultat de ce traitement permet d'extraire l'Uranium du minerai, passant au stade soluble. La lixiviation acide présente plusieurs avantages, si on la compare à son homologue alcalin, à savoir :

- Un taux de lixiviation élevé ;
- Un broyage grossier du minerai ;
- Un temps de contact relativement court ;
- Absence d'un apport calorifique.

La lixiviation acide est envisagée pour les minerais silicatés, aluminosilicatés, sulfurés et bien d'autres, dont la teneur en carbonate est moyennement faible.

À l'état naturel, on rencontre souvent des minerais renfermant de l'Uranium tétravalent ; ce dernier ne se solubilise pas dans l'acide sulfurique. D'où la nécessité de procéder à une oxydation préalable de l'Uranium, afin de le mettre en solution.

La réaction chimique simplifiée de la lixiviation avec de l'acide sulfurique se traduit ainsi :



La majeure partie de l'Uranium extrait provient des minerais uranifères présentant des teneurs élevées en silice. La teneur en Uranium, dans ces minerais, est de l'ordre de 0,01 à 0,3 % en U_3O_8 .

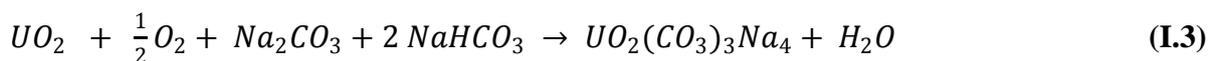
I.5.2. La lixiviation alcaline

Par analogie à la lixiviation sulfurique (conventionnelle), donnant des complexes anioniques type $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_n^{m-}$ avec ($m > n$), la lixiviation alcaline est essentiellement basée sur la propriété que possède l'ion uranyle UO_2^{2+} de former un complexe analogue $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_n^{m-}$ avec ($m > n$) stable, soluble dans les solutions de carbonate de sodium neutre ou acide.

L'agressivité de l'acide sulfurique présente un inconvénient majeur pour le procédé acide, nécessitant un design approprié, des équipements anticorrosifs, les effluents devant être neutralisés avant rejet et beaucoup d'impuretés passant en solution avec l'uranium. Ceci complique davantage les opérations ultérieures et augmente la consommation en acide. Toutes ces sujétions font qu'il est avantageux d'opter pour un agent alcalin, celui-ci étant le carbonate de soude ou bien le mélange carbonate Na_2CO_3 -bicarbonate NaHCO_3 .

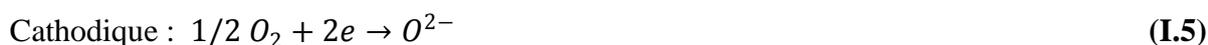
L'uranium a tendance à donner un complexe soluble avec les ions CO_3^{--} . Un milieu oxydant est requis, à moins que tout l'uranium ait la valence VI, ce qui est plutôt rare. Les oxydants souvent utilisés sont le permanganate de potassium, les sels cuivriques en présence d'ammoniaque, nécessitant ainsi l'oxygène de l'air pour catalyser l'oxydation (*J. Souterou, 1965*).

La réaction globale est la suivante :

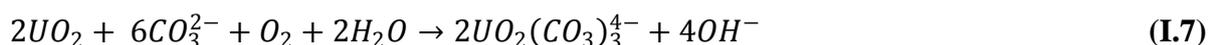


Le bicarbonate de sodium est rajouté afin de rendre le milieu moins basique et éviter la re-précipitation de l'uranium sous forme d'hydroxyde.

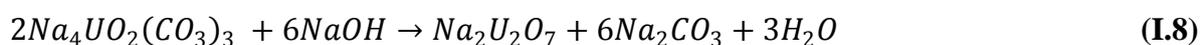
Dans un processus de lixiviation alcaline, l'agent oxydant est l'oxygène, et l'extraction de l'uranium peut être décrite, selon les réactions électrochimiques suivantes (**A.J. Mattus & A.E. Torma 1980**) :



Les ions UO_2^{2+} vont réagir avec l'excès des ions carbonate pour forer un complexe anion, selon la réaction ci-dessous (**Mattus, Jr., A.J., 1978**):



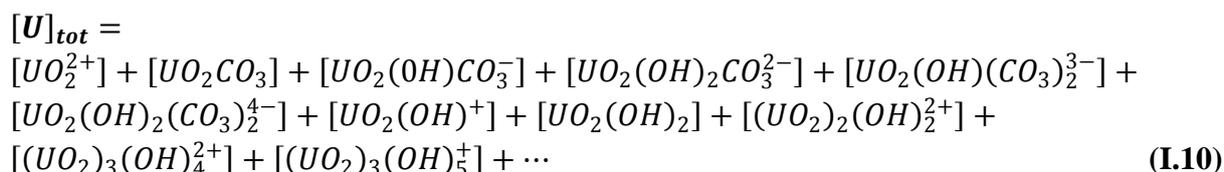
Cette réaction est bien spécifique pour les minéraux de l'uranium ; cependant, l'ion hydroxyde ainsi formé engendre la précipitation de l'uranium, sous forme de diuranate, tel que :



Cette réaction est souvent utilisée pour la lixiviation uranifère alcaline ; cependant, elle doit être empêchée dans le but d'éviter la re-précipitation de l'uranium mis en solution. Ceci peut être achevé par l'addition du bicarbonate, afin de neutraliser l'excès de la soude ainsi formée, eq. III.5 (**Mattus, Jr., A.J., 1978**).



Le système Carbonate d'Uranyle est si compliqué, que les réactions données ci-dessous peuvent le décrire, du fait que l'uranium total dissout dans un milieu alcalin peut être exprimé, sous la forme suivante (**Blake et al., 1956**) :



En fonction du pH et la concentration du carbonate, l'une de ces espèces de l'uranium sera prédominante par rapport aux autres.

Le procédé alcalin est beaucoup plus préconisé pour les minerais, qui comportent une teneur élevée en carbonate, présentant une consommation excessive en acide, calcite et sidérose. De plus, Ce procédé est beaucoup plus sélectif et l'inconvénient de la corrosion ne se pose pas ; cependant, le taux de récupération de l'uranium est relativement médiocre et n'atteint que rarement 90%, et souvent bien inférieur (*J. Souterou, 1965*).

Dans le but de rendre le procédé alcalin beaucoup plus performant, on opère sous une pression d'oxygène (3-5 ATM) et une température de 90 à 100°C. Les attaques sont rapides et les rendements atteignent 98%. Le procédé nécessite des autoclaves au lieu des Pachuca.

I.5.2.1. Les réactions de dissolution de l'uranium

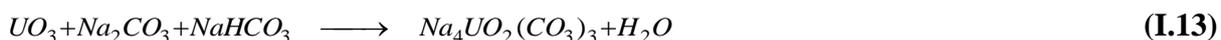
Dans les minerais primaires, appelés aussi formations filoniennes ou endogènes, l'uranium se trouve confiné à l'état réduit sous forme d'uraninite UO_2 et des produits noirs accompagnés par la pechblende, répondant à la formule approchée U_3O_8 , qui n'est qu'une mixture amorphe UO_2 et UO_3 , où l'uranium est à la fois à la valence IV et IV.

Sous l'action combinée de la température et de la pression en autoclave, l'uranium(IV) est oxydé en uranium (VI) par de l'oxygène ou de l'air. Afin d'accélérer le processus d'oxydation qui est faible, on opère souvent sous pression, ou bien on ajoute des catalyseurs d'oxydation.



Le trioxyde d'uranium UO_3 réagit différemment selon qu'il est mis en présence du carbonate seul ou d'un mélange de carbonate et de bicarbonate :

Avec les carbonates et bicarbonates



Avec les carbonates seuls

L'attaque par le carbonate peut mener à la libération de la soude, avec risque de précipitation de l'uranium dissous :



C'est pourquoi, on introduit le bicarbonate pour neutraliser la soude formée.



En l'absence des bicarbonates, la soude formée précipite l'uranium sous forme de diuranate de sodium :



On peut assister également à la neutralisation de la soude libérée par recarbonatation au CO_2 pouvant aboutir au bicarbonate, lequel bicarbonate entre dans la redissolution du diuranate précipité :

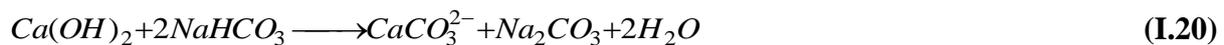




I.5.2.2. Neutralisation du bicarbonate

Dans le cas d'une forte concentration en bicarbonates dans les liqueurs de lixiviation suite à la présence dans le minerai d'éléments transformateurs du carbonate en bicarbonate cité ci-dessous ; il faut opérer des neutralisations à la chaux ou à la soude pour éviter l'effet néfaste de l'anion bicarbonate vis à vis de l'extraction liquide-liquide utilisant l'ammonium quaternaire.

- neutralisation à la chaux



- neutralisation par la soude



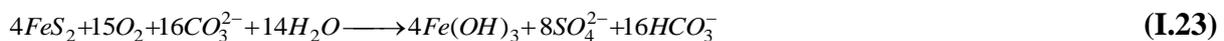
I.5.2.3. dissolution des minéraux de la gangue ou réactions secondaires

Bien souvent, on observe la présence de sulfures (FeS_2), de la silice SiO_2 et de l'alumine Al_2O_3 dans les minerais uranifères à gangue carbonatée. Sous l'action des réactifs alcalins, de la température, de l'oxydation et de la pression, ces minéraux réagissent avec le carbonate de sodium avec libération du bicarbonate de sodium.

- Avec Les sulfures.



En réaction d'ions :



On forme du sulfate de soude qui va polluer le circuit, ce qui implique une purge continue ou périodique de celui-ci et du bicarbonate de soude, bénéfique pour la lixiviation.

On est donc obligé, dans ce cas, de prévoir un prétraitement du minerai soit par exemple, par flottation des sulfures, soit par un grillage oxydant avant l'attaque chimique, ainsi les sulfures se dégagent sous forme de SO_2 .



- Avec la silice

Souvent, dans le cas des minerais altérés, la silice se présente sous sa forme hydratée ($\text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$) ou acide silicique H_2SiO_3 (gel de silice) ; elle peut être solubilisée par attaque alcaline de la gangue suivant :



- Avec l'alumine

L'alumine hydratée résultant de la dégradation des minerais se présente sous forme d'un gel ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) chimiquement plus réactif que l'alumine anhydre (Al_2O_3) vis à vis du carbonate pour générer des aluminates et de bicarbonate.



On consomme pour l'alumine comme pour les sulfures et la silice des réactifs (carbonates de sodium) tout en formant des aluminates, des silicates, des sulfates et des bicarbonates de soude.

Réaction d'autres éléments

- Avec le gypse

Précisons comme pour les sulfures que lorsque le minerai renferme du gypse sous forme de $CaSO_4$, le circuit s'enrichira en sulfates qui favoriseraient le colmatage.



- Action de la chaleur

Dans les conditions de la lixiviation alcaline, à température et sous pression, la chaleur joue en faveur de la transformation du bicarbonate en carbonate, bien que la pression partielle du CO_2 suppose une action inverse.



- Cas des minerais grillés

Il est quelquefois nécessaire de griller le minerai avant la lixiviation. Dans ce cas, lorsque la gangue renferme des éléments basiques tels que $CaCO_3$ et $MgCO_3$, qui se sont transformés en CaO et MgO au cours du grillage, on peut avoir :



La soude formée devra être neutralisée par le bicarbonate de la liqueur, pour éviter des précipitations possibles d'uranium.

Nous venons d'examiner la réaction que peuvent générer certains éléments constitutifs de la matrice uranifère en présence de carbonate. Il en ressort que les oxydes à caractère acide tels : la silice et l'alumine connus pour être des oxydes acides, et la chaux et magnésie connues pour être des oxydes basiques, réagissent vis à vis des carbonates alcalins en donnant consécutivement des réactions acides ou des réactions basiques pour générer des bicarbonates ou de la soude, et l'on s'aperçoit dans le premier cas comme dans le second qu'il faut veiller à maintenir l'équilibre de la composition de la solution en neutralisant l'excès de l'un par l'autre pour éviter la précipitation intempestive du métal.

I.6. Paramètres de lixiviation alcaline

L'optimisation des facteurs influant sur la récupération de l'uranium par voie alcaline exige au préalable le recensement total de ces facteurs.

I.6.1 Facteurs influençant la dissolution de l'uranium dans le réacteur.

1. la quantité en carbonate de sodium (concentration)
2. la température
3. la concentration de l'oxygène (pression)

4. les ions étrangers
5. la granulométrie
6. la vitesse d'agitation
7. la durée de rétention (temps de réaction)
8. le rapport solide/liquide
9. le PH

Suite aux différentes études publiées ainsi que les rapports internes, nous avons constaté que le minerai de Timgaouine peut être lixivié, en ne tenant pas compte de quelques paramètres qui seront pris fixes, à savoir :

I.6.1.1 L'effet de la pression

L'oxydation de l'uranium sera complète, lorsqu'on introduit de l'air comprimé embouteillé à 9 Bars. Cependant, une augmentation supplémentaire de la pression n'a eu virtuellement aucun effet sur le taux de récupération du métal.

Quant aux essais effectués, nous avons utilisé une pression de 10bar (augmentation de 1bars), pour compléter les pertes de pression au niveau de l'autoclave (*C.S.M.R.I., 1979*).

I.6.1.2 La vitesse d'agitation

L'agitation a pour but de mettre en contact les différentes phases dans la solution, elle est donc en relation avec le temps, en augmentant la probabilité de contacte agent lixiviant-particule. Une vitesse de 250 tr/min sera largement suffisante, pour éviter la décantation du solide et assurer la mise en suspension continue de celui-ci, et par conséquent, mettre en contact intime les deux phases.

L'agitation d'une pulpe, lorsqu'elle est bien effectuée, permet d'obtenir une bonne homogénéisation des suspensions dans la solution. Elle favorise aussi une bonne diffusion et agit favorablement sur la cinétique de la réaction chimique.

I.6.1.3 Présence d'autres ions

Les ions étrangers dépendent de la minéralisation du gisement ; étant donné que l'uranium traité par lixiviation est associé avec d'autres minéraux, des réactions parallèles impliquant les carbonates et les autres ions métalliques peuvent se produire. Ceci a une grande importance, car cela peut constituer une consommation inutile en réactif (carbonate de sodium) ; la présence de ces ions dans la solution riche peut nuire aux procédés subséquents de purification et de concentration du métal. Les minéraux que l'on retrouve le plus fréquemment dans le minerai de Timgaouine sont : les minerais oxydés constitués de quartz (jusqu'à 60- 70 %) de roches silicifiées, d'une part, par contre les oxydes noirs renferment le molybdène. Ils sont aussi constitués de minéraux supergènes et de quelques sulfures, principalement la chalcopryrite, la marcasite, la galène, et la sphalérite.

Parmi ces minéraux, il y en a qui ne sont pas attaqués par le carbonate de sodium, ne constituant donc pas de problème, par contre d'autres minéraux le sont.

Il est à noter que la lixiviation alcaline est un procédé assez sélectif, qui permettant de mettre en solution que l'uranium, souvent destiné à une précipitation directe, pour obtenir le diuranate de sodium relativement pur.

I.7. Aspects économiques

L'évaluation du coût de traitement se fait essentiellement à l'aide de trois paramètres principaux :

1. Les quantités d'énergie consommées au niveau des différentes opérations ;
2. Les quantités d'eau utilisées ;
3. Les produits chimiques nécessaires à toutes les opérations de traitement.

Ces trois paramètres conditionnent le choix des technologies de traitement.

Le tableau I.5 donne l'énergie nette requise pour produire une tonne d' U_3O_8 , ainsi que la répartition sur les différents postes pour les deux types de traitement (acide et alcalin). L'énergie nécessaire par unité d'uranium produite par le procédé alcalin est proche du double de celle du procédé acide.

Dans les deux procédés, près de 80% ou plus de l'énergie utilisée est directement en relation avec la quantité de minerai traité. On remarque aussi que la plus grande partie de l'énergie est consommée par la préparation mécanique et la lixiviation. Ce sont donc les postes, sur lesquels les efforts de réduction des coûts doivent porter.

Tableau I.5. Besoins énergétiques associés aux procédés de lixiviation alcaline et acide

	Acide	Alcalin
Énergie nette requise (j/1000kg $U_3O_8 \cdot 10^3$)	350 à 450	700 à 800
Distribution par poste (%)		
-concassage- broyage	26	31
-Lixiviation	38	42
-Séparation solide- liquide	10	5
-Extraction de l'Uranium	11	-
-Réextraction – précipitation Et séchage	15	22

Le tableau I.6 donne les équivalents énergétiques pour les réactifs chimiques et les fournitures diverses nécessaires au traitement des minerais. Ce sont les réactifs de lixiviation et de précipitation qui viennent en tête.

Tableau I.6. Equivalents énergétiques de quelques réactifs utilisés dans les procédés de lixiviation, précipitation et extraction liquide-liquide.

Equivalent énergétique	Unité	Joules x10 ⁶
H ₂ SO ₄	t	965
NaOH	t	34.887
NH ₃	Kg	9.3
Ca O	t	9884
NaClO ₃	t	67.158
Huiles et graisses	l	41.8
Kérosène	l	37.6
Milieus de broyage	kg	8.4

Le troisième aspect concerne les capitaux nécessaires et les coûts de production. Les tableaux I.7 et I.8 donnent la répartition par étape et pour les deux voies. Ces chiffres sont donnés à titre indicatif. Il est difficile de les généraliser, mais il faut tout de même signaler que les capitaux sont en relation directe avec :

- la quantité de minerai traité ;
- les caractéristiques minéralogiques du minerai, qui retiennent sur les paramètres de lixiviation (caractère réfractaire du minerai) ou la séparation solide liquide (importance de particules fines de minerai)
- les infrastructures disponibles sur place et qui sont en relation avec la localisation de l'usine, le niveau de développement du pays et son environnement industriel.

On ne dispose pas de beaucoup de données, concernant les coûts de production. L'ordre de grandeur des coûts des diverses opérations pour une usine qui utilise la lixiviation acide, l'extraction par solvants et qui traite 2000 tonnes/jour de minerai, titrant 0,2% avec un rendement d'extraction global de 95%. On remarque que près de 70% du coût total de production sont associés aux opérations de lixiviation et de séparation solide-liquide, alors que plus de 70% des capitaux et des équipements concernent la préparation mécanique et la séparation solide-liquide avec une nette prépondérance pour la séparation solide-liquide.

Tableau I.7. Coûts d'opérabilité

	Équipement (%)	Capital (%)	Coût de production (%)
Opération unitaire			
-Concassage- broyage	28	29	16
-Lixiviation	9	9	46
-Séparation solide- liquide	46	44	22
-Extraction par solvant	11	12	11
-Précipitation- séchage	6	6	5

Tableaux I.8. Coût des opérations unitaires de traitement de l'uranium

Opérations Unitaires	Coût d'équipements en %	
	Voie Acide	Voie alcaline
- Concassage, broyage	24-41	31-49
- Lixiviation	5-14	10-17
- Séparation solide-liquide	8-12	28-36
- Extractions par solvant	35-45	-
- Précipitation, séchage	5-9	7-16

Chapitre II

Description et localisation de gisement

Introduction

En 1954, Le CEA (Commissariat à l'Énergie Atomique français) en collaboration avec le BRMA (Bureau de Recherche Minière en Algérie) ont lancé le premier programme d'exploration de l'uranium au Hoggar. Cela a permis de mettre en évidence de timides indices (El Bema, Furon, Timgaouine...), sans intérêt économique avec une faible teneur limite d'exploitation.

En 1969, la SONAREM (Société Nationale de Recherche et d'Exploitation Minière) a pris en charge les travaux de reconnaissance générale sur l'uranium, qui ont ciblé la vérification des indices déjà connus, mais aussi les formations du socle précambrien, ainsi que les terrains sédimentaires paléozoïques qui le ceinturent.

En 1971, un vaste programme d'exploration a été élaboré et exécuté. Il comprenait notamment un levé aérospectrométrique, couvrant l'ensemble du territoire national, un levé radiométrique autoporté effectué sur les structures géologiques les plus potentielles et un levé géochimique des indices les plus intéressants.

En 1973, suite à la remontée spectaculaire des cours de l'Uranium et jusqu'en 1980, tous les indices répertoriés ont été explorés et évalués. Plus de 80 000 mètres de forage ont été exécutés. Les résultats majeurs obtenus furent :

- la délimitation des principales provinces géologiques, favorables à la mise en place de minéralisation d'Uranium ;
- la circonscription d'une dizaine d'indices sérieux ;
- le recensement de 78 points de minéralisation, de 319 anomalies (ponctuelles et superficielles) géochimiques et de 80 anomalies aérospectrométrique ;
- la découverte de quatre gisements d'uranium (**Timgaouine, Abankor, Tinef et Tahaggart**), avec des ressources mesurées, estimées à plus de 12,7 millions de tonnes titrant 0,187% U, soit 23 000 tonnes d'uranium métal.

Les types de minéralisations d'uranium identifiées sont les suivants :

- filons de quartz et zones de broyage à molybdène – uranium associées à des shear zones profondes ;
- sédiments carbonatés et détritiques paléozoïques à phosphate – uranium ;
- zones de broyage silicifiées à uranium-sulfures encaissées dans des black shales néo protérozoïques.

II.1 DESCRIPTION DE GISEMENT DE TIMGAOUINE

Le gisement de Timgaouine est situé à 220km au Sud-ouest de Tamanrasset (Fig. II.1). La minéralisation en uranium est contrôlée par une zone de cisaillement, comportant un système de fractures parallèles, de direction subméridienne avec un pendage, de l'ordre de 65° vers l'Ouest. L'uranium est porté par des filons de quartz et des brèches quartzo-feldspathiques rouges, riches en oxyde de fer, en calcite et en sidérose. Les roches encaissantes sont représentées par des granites à biotite.

II.1.1. Travaux réalisés

- 1958-1960 : Reconnaissance du gîte par sondages courts (20 à 30m) et tranchées (CEA, France),
- 1969-1970 : Exploration générale par sondages et prospection radiométrique (SONAREM-GEOMINES),
- 1970-1972 : Exploration générale des zones d'Abankor et exploration détaillée Des zones de Timgaouine et Tinef (GEOMINES),
- 1976 : Travaux géologiques complémentaires sur les zones de Timgaouine et Abankor (Montan Consulting).

Les travaux exécutés se résument à

- Levés géologiques au 1/25 000 (345 Km²), 1/1000 (1,85 Km²), 1/5000 (0,12 Km²), 1/2000 (2 Km²),
- Levé topographique au 1/1000 (1,85 km²) couvrant le gisement
- Prospection radiométriques au 1/10 000 (120 Km²), 1/500 (3 Km²).
- Tranchées (500 m³),
- 99 forages (23 500 m) à maille régulière de 80x40 m et 80x80 m
- puits de recherche (24,5 m),
- puits d'exploration (93 m),
- galerie (140.3m),
- travers-bancs (99,5m).

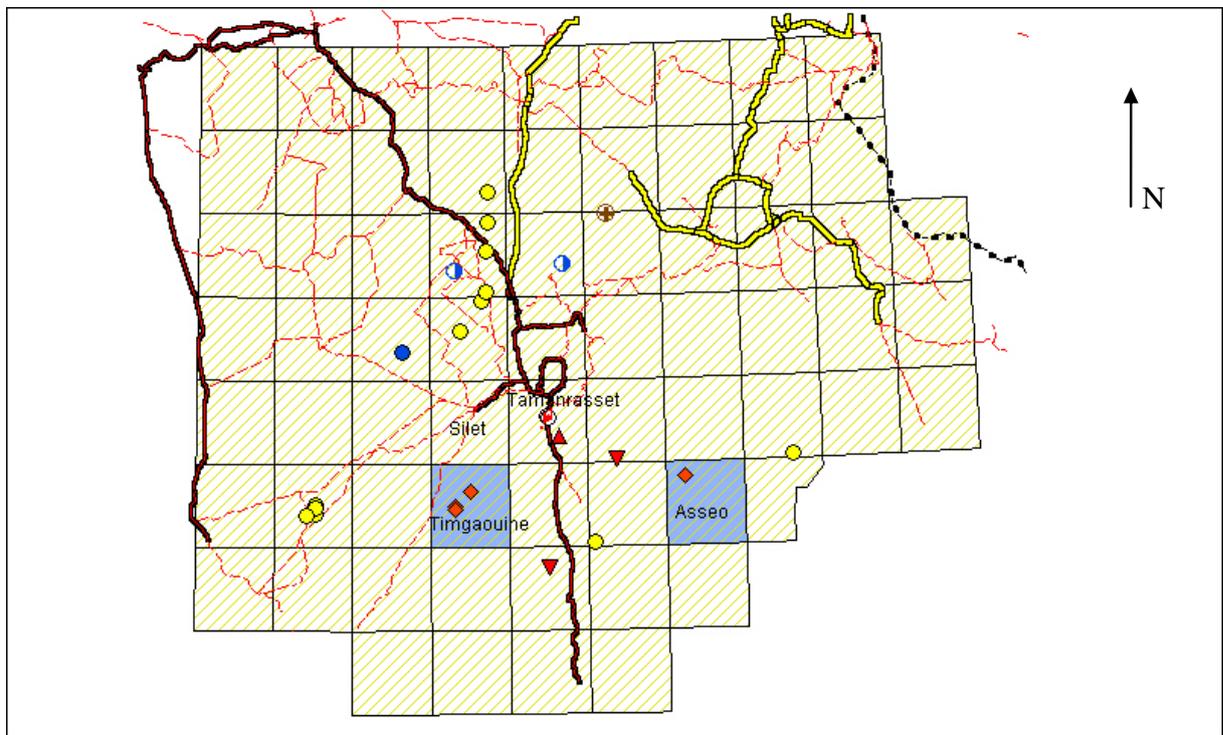
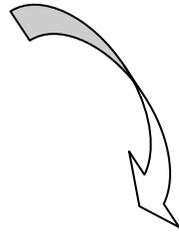


Fig. II.1. Carte de situation

II.1.2. Cadre Géologique

Le gisement de Timgaouine est situé dans le terrane d'Iskel (figure II.1). Il s'agit d'un bloc tectonique Néoproterozoïque développé sur une superficie de plus de 50 000 km². Il est délimité à l'est et à l'ouest par des zones de cisaillement Subméridiennes profondes matérialisées par des mylonites et des cataclasites. Il Comporte des formations volcano-sédimentaires et gréséo-détritiques, structurées en Bandes linéaires parallèles d'allongements nord-sud. Elles sont séparées entre elles Par des batholithes de granitoïdes calcoalcalins qui représentent plus de 70% des Affleurements. Les roches mafiques et ultramafiques affleurant en petits massifs isolés sont intimement liées aux formations volcano-sédimentaires. Enfin, le terrane d'Iskel comprend plusieurs corps subcirculaires de granites post Orogéniques réputés par leurs richesses en minéralisation de wolfram, étain, béryl et Parfois en Uranium.

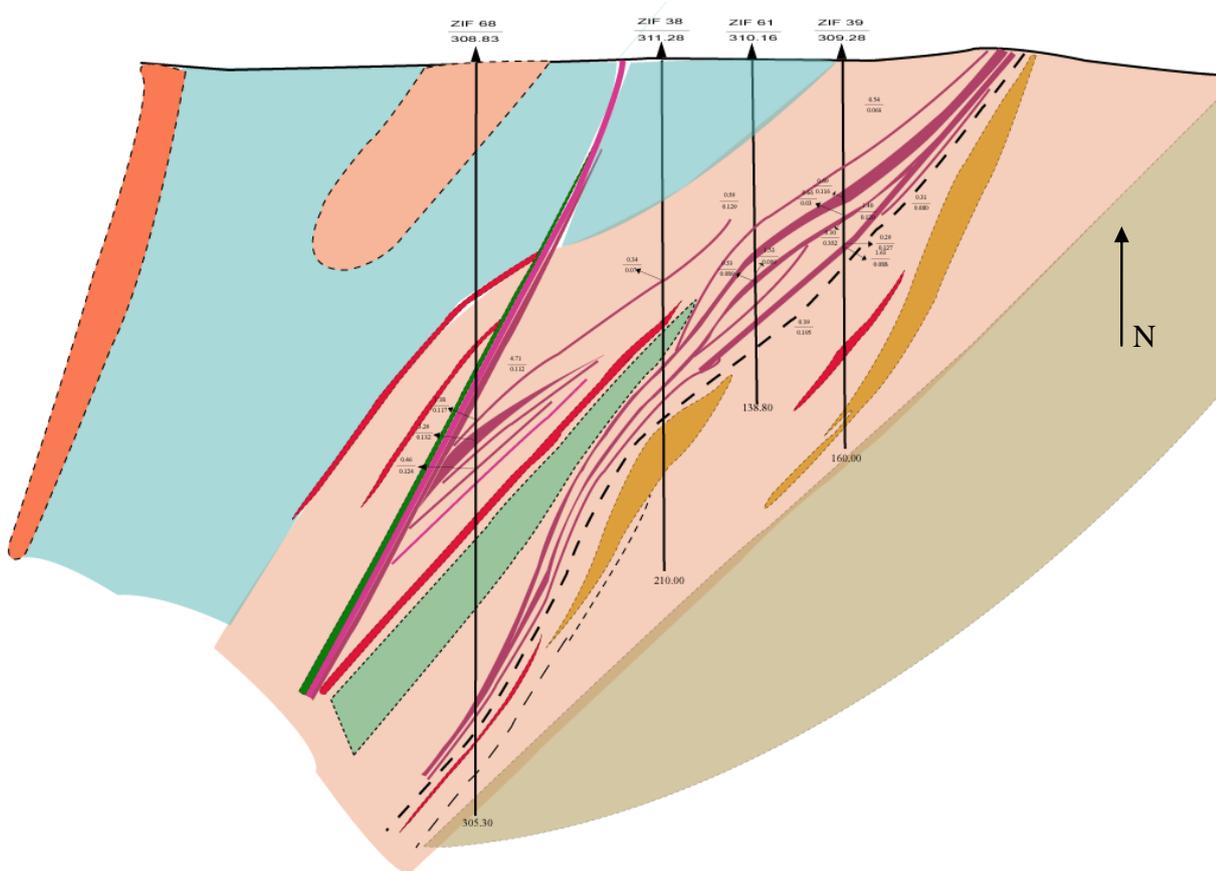


Fig. II.2 - CARTE GEOLOGIQUE DE LA FEUILLE TIMGAOUINE

II.1.3. Minéralisations

La minéralisation est associée au grand batholite granitique de Timgaouine, affleurant dans une large vallée plate, d'environ 140Km de long sur 40Km de large. Il est intrusif et formé essentiellement d'un granite alcalin à deux micas, composé de quartz idiomorphe, d'orthose perthitique, d'albite-oligoclase et accessoirement d'apatite.

Les minéralisations portées par des filons de quartz, des brèches et des métasomatites jalonnent le toit d'une zone de cisaillement subméridienne, dénommée faille 4°18. Elle est soulignée par des granites broyés, altérés. Les longueurs des zones minéralisées varient de 300 à 1200m.

La coupe géologique, établie à partir des sondages, montre d'Ouest en Est la succession suivante : des granites roses à deux micas ; une brèche granitique silicifiée ; une zone de stockwerk et filons associés à un dyke de diabase ; un granite rouge métasomatique à calcite, hornblende et épidote ; des filons de syénite (ou épi-syénite) et enfin des granites roses à deux micas.

L'association minéralogique est caractérisée par la pechblende, en se présentant en trois générations (I, II, III), oxydes noirs d'uranium renfermant du molybdène (molybdates d'uranium), minéraux secondaires d'uranium (gummite, autunite), molybdénite, pyrite à deux générations, dont la première est contemporaine à la pechblende I et quelques sulfures (chalcopyrite, marcasite, galène, sphalérite).

La pechblende primaire (I) montre des structures collomorphes d'aspect sphérolitique et des structures de retrait irrégulières. La pechblende II est identifiée grâce à sa réflectivité réduite, dureté prononcée et surtout par l'absence de fissures de retrait.

Celle-ci repose sur la pechblende primaire, en formant des anneaux extérieurs. La pechblende III marque le passage vers les oxydes noirs. Les Pechblende I et II sont les plus répandues et apparaissent même au niveau -90m (voir travers-banc).

Les oxydes noirs, renfermant du molybdène, se localisent dans les granites fortement cataclasés et métasomatisés. Ils remplissent avec les carbonates les fissures des grains de quartz où ils forment de petites veines. Les minéraux secondaires de couleur jaune à jaune verdâtre ont été décrits soit comme des autunites ou bien un mélange d'uranotile et de gummite.

Tableau II.1. Ressources

Zones	Minerais (tonnes)	Teneur (%)	métal (tonnes)
Zone centrale (C1)	1 366 000	0.28	3800
Zone nord (C2)	3 554 000	0.20	7000
Zone sud (C2)	930 000	0.16	1470
Total (C1+C2)	5 850 000	0.21	12 270
Ressources II (C2)	3 500 000	0.046	1600
Ressources III (C1)	190 000	0.11	210

Nb/ Les ressources ont été estimées avec une teneur de coupure est de 0.07%U.



Fig. II.2. Différentes minéralisations uranifères du gisement Timgaouine

Le tableau suivant présente les différentes minéralisations du minerai de Timgaouine, eu égard à la composition de la gangue, issue du laboratoire de l'université de Louvain et les différentes études effectuées sur le gisement filonien.

Tableau II.1. Caractéristiques Minéralogiques du minerai de Timgaouine

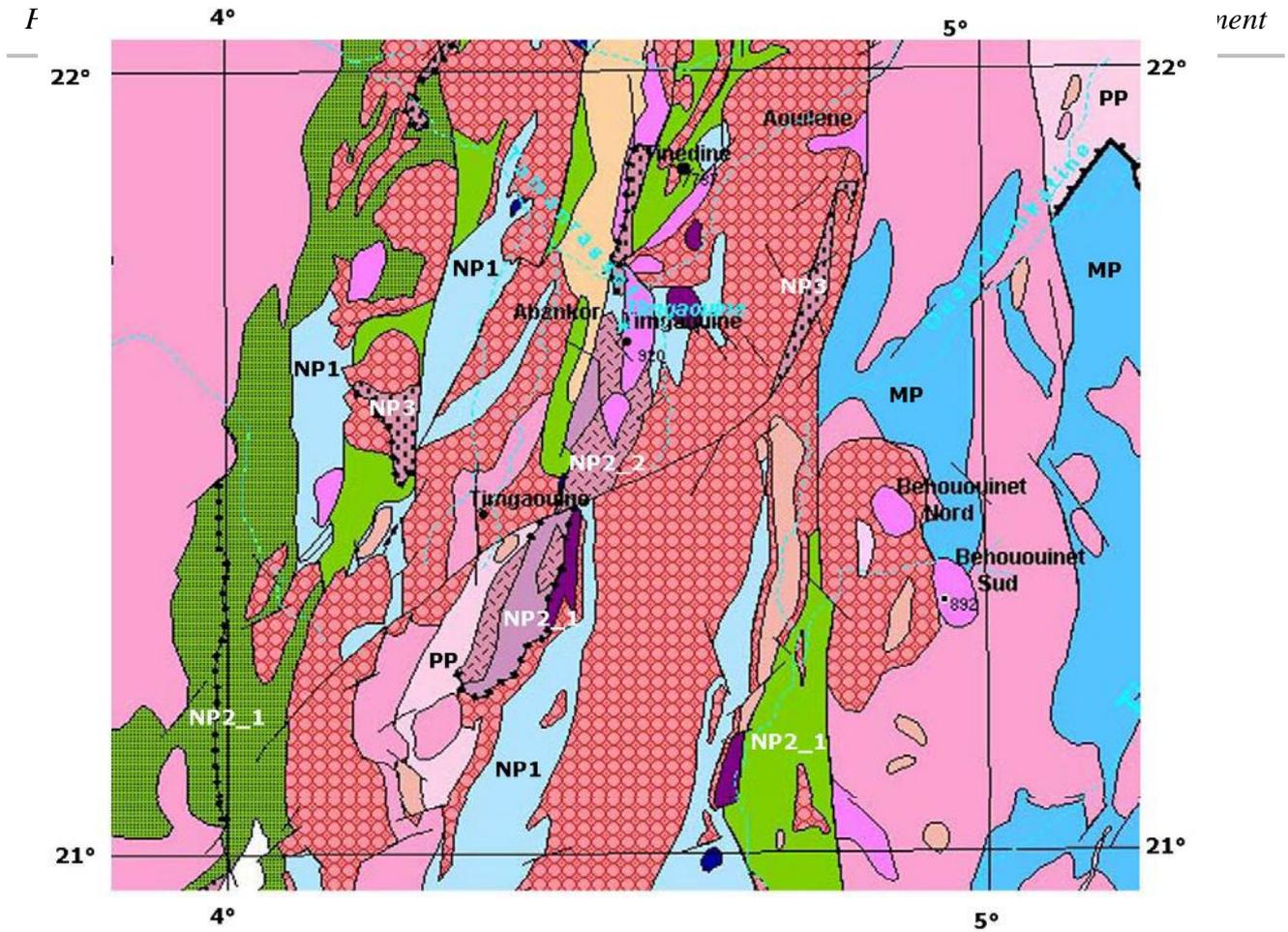
Le long de la faille 4°18'

Roche	Texture, Structure	Couleur	Composition min
1. Granite à muscovite	Massine à béchique Hipidimorphe granulaire	Rouge, rougeâtre, rose, gris verdâtre	Feldspaths: 65% Quartz : 30% Muscovite : 5%
2. Granite porphyre	Texture béchique	Produit jaune	Gummite Uranotile Uranofane Andersonite....

Roches filoniennes

Roche	Texture	Couleur	Composition
Aplites syénitique	Massive, oolitique	Rose-pale	Orthose Albite Les minéraux Fe-Mg se substituent par les carbonates (16%)
Dykes de diabase	Massive	Gris verdâtre	Masse fondamentale carbonatées

Quantitativement : une masse fondamentale de 75% (majorité silicifiée) ;
Enclave de calcite : 10% ;
Pyroxène : 15%.



LEGENDE

Roches plutoniques

complexe Taourirt

- Granites subalcalins à alcalins (Taourirt, intrusifs, hypovolcaniques)
- Gabbros subalcalins à alcalins

complexe Timissaou

- Granites calco-alcalins à subalcalins

complexe Haddock-Tinef

- Syénites alcalines
- Granodiorites et/ou granites calco-alcalins
- Tonalites, trondhémites, diorites, diorites quartziques

- Discordances
- Chevauchements
- Failles certaines
- Failles supposées
- Localités
- Oueds

série pourprée **NP3**

- Molasse supérieure : grès, arkose, grès arkosiques, conglomérats et poudingues

série terrigène **NP2_2**

- Molasse inférieure: Pâilles, calcaires parfois à stromatolites, dolomies, grès, conglomérats avec sills et coulées d'ignimbrites, rhyolites et dykes et sills de dolérites et basaltes.

série Bourzekal-Abankor **NP2_1**

- Formation volcanique à prédominance acide: dacites, rhyodacites, rhyolites, tufs et brèches volcaniques.
- Formation volcano-détritique: conglomérats polygéniques, grès, graviers, arkoses, calcaires, basaltes, andésites, pyroclastites.
- Formation grizo-pâilétique flyschoides : conglomérats de base, arkoses, quartzites, sills, oélites, jaspes.

séries volcanosédimentaire ou série à stromatolites **NP1**

- Série de plate-forme supérieure: quartzites, métapâilles, marbres à stromatolites, basaltes parfois en pillow, basaltes-andésites et leurs pyroclastites.

séries mézoprotérozoïques **MP**

- Série de plate-forme inférieure: quartzites, métapâilles, schistes alumineux, lentilles de marbres et amphibolites et gneiss.

ensemble cristallophyllien paléoprotérozoïque indifférencié **PP**

- Gneiss indifférenciés, granulites et lentilles de quartzites, de marbres et d'amphibolites & Granites migmatitiques et granites

Fig. II.3. Coupe géologique du gisement de Timgaouine

II.2. METHODES D'EXPLORATION DE L'URANIUM

Les méthodes les plus utilisées pour l'uranium sont basées sur les caractéristiques radioactives de l'uranium et de ses produits de filiation. Ces éléments émettent des rayonnements radioactifs qui peuvent être mesurés (radiométrie). Toutefois la géochimie et les autres méthodes géophysiques sont aussi très utiles.

II.2.1. RADIOMETRIE

Les rayonnements radioactifs sont de plusieurs types : Alpha (α), Bêta (β) et Gamma (γ). Le type et l'intensité du rayonnement sont caractéristiques de l'élément ou produit de filiation. L'intensité du rayonnement est proportionnelle à la quantité d'uranium et de produits de filiation. Les rayonnements alpha et gamma sont utilisés en radiométrie. Le rayonnement bêta étant très facilement arrêté par une barrière matérielle n'est pas utilisé en prospection.

II.2.1.1 RAYONNEMENT GAMMA

Le rayonnement gamma, à cause de ses propriétés de pénétration est le plus utilisé.

II.2.1.1.1 Scintillométrie

La méthode radiométrique la plus utilisée pour la prospection de l'uranium est la scintillométrie. Le scintillomètre a remplacé le compteur Geiger. Un cristal d'iodure de sodium dans l'instrument est excité par le rayonnement gamma.

L'excitation lumineuse résultante est ensuite transformée en courant électrique par l'intermédiaire d'une cellule photo - électrique. Ceci permet de mesurer le comptage total du rayonnement gamma.

Le discernement des rayonnements gamma spécifiques des trois éléments radioactifs principaux (Uranium, Thorium et Potassium) peut être fait en utilisant la spectrométrie.

II.2.1.1.2. Prospection aéro spectrométrique

La prospection aérienne mesure généralement :

- le comptage total du rayonnement gamma
- le rayonnement gamma dû à l'Uranium, au Thorium et au Potassium.

Le principe est identique, mais le cristal d'iodure de sodium utilisé dans l'aéronef est de grandes dimensions.

II.2.1.1.3 Prospection au sol

Un scintillomètre portable, mesurant le comptage total du rayonnement gamma est un instrument suffisamment petit (inférieur à 30cm de dimension maximale), pour être utilisé au sol, pour prospector les affleurements et faire des plans compteurs de vérification d'anomalies aériennes. Ceci permet d'effectuer une première approche : radiation gamma due à l'uranium et celle due au Thorium.

II.2.1.1.4 Prospection radiométrique en fond de trou

La diagraphie « fond de trou », utilisée pour la prospection de l'uranium, comprend une méthode scintillométrique, permettant de mesurer le comptage total du gamma (gamma naturel). En traçant une courbe de corrélation entre la mesure du rayonnement

gamma et uranium géochimique mesuré dans la carotte, on peut calculer les teneurs à partir des mesures radiométriques.

Outre la mesure du gamma naturel, les diagraphies modernes comprennent généralement les mesures suivantes :

- Spectral Gamma;
- Gamma – gamma (Densité);
- Neutron (porosité) ;
- Mesures électriques (conductivité, résistivité) ;
- Mesures soniques (porosité).

II.2.1.2 RAYONNEMENT ALPHA

Le rayonnement alpha est utilisé dans la prospection de l'uranium, pour mesurer un produit de filiation : le gaz radon qui est un émetteur alpha.

Cette méthode permet de détecter des gisements d'uranium profonds. Le gaz radon, émis par le gisement, remonte à travers les couches géologiques sus-jacentes et si celles-ci sont suffisamment perméables, le radon remonte à la surface. Deux types de méthodes existent, pour mesurer la radiométrie alpha due au radon :

- *Pompe à radon* : cet instrument comporte un tuyau métallique, enfoncé dans le sol. Une pompe permet d'amener le gaz provenant du sol dans une ampoule, dont la paroi est recouverte par un produit devenant luminescent en présence du rayonnement alpha. La luminescence est transformée en courant électrique et la mesure peut être faite.

- *Coupelles radon* : cette méthode est plus facile à utiliser. Un film sensible au rayonnement alpha est fixé au fond d'une coupelle en plastique. La coupelle est enterrée, retournée, dans un trou profond de 10 à 30 cm. Après quelques jours la coupelle est ramassée et les impacts des particules alpha sur le film sont comptés. Des laboratoires spécialisés fournissaient les coupelles vierges et s'occupaient du comptage pour un prix unitaire.

Dans les deux cas, les mesures sont faites suivant une grille, permettant d'obtenir des plans compteurs.

II.2.2. GÉOCHIMIE

La géochimie est proportionnellement moins utilisée pour la prospection de l'uranium qu'elle ne l'est pour la prospection d'autres métaux. La raison principale étant que pour beaucoup de gisements d'uranium, une corrélation peut être obtenue entre les mesures radiométriques et les mesures géochimiques. Par conséquent, il est plus rentable, dans ce cas, d'utiliser la « teneur radiométrique ».

Toutefois un minimum de mesures géochimiques doivent être faites durant la prospection au sol, pour s'assurer que le rayonnement gamma est dû à l'uranium.

Un certain nombre de forages carottés doivent impérativement être analysés de façon systématique pour pouvoir obtenir la corrélation radiométrie - géochimie.

II.2.3. AUTRES MÉTHODES GÉOPHYSIQUES

Toutes les autres méthodes géophysiques peuvent être utilisées, en fonction des caractéristiques des gisements recherchés. Par exemple, les méthodes électromagnétiques permettront de mieux localiser les gisements « sous discordance » du Protérozoïque qui est généralement associé au graphite.

Au stade actuel des connaissances, l'Algérie recèle un potentiel raisonnable en uranium, localisé essentiellement au Hoggar.

Les nombreux indices et anomalies aéro – spectrométrie identifiées tant au Hoggar, que dans d'autres régions, telles que la Dorsale Reguibet, l'Ougarta ainsi que la Chaîne Tellienne Nord Atlassique, laissent penser et espérer que le potentiel de ressources à découvrir reste encore important.

Ce pronostic favorable est principalement basé sur l'existence de structures géologiques intéressantes, telles que les interfaces socle –couverture (Hoggar), ainsi que les formations superficielles (calcrètes), qui se développent sur le socle précambrien de la Dorsale Reguibat.

Chapitre III

Méthodes et techniques de prétraitement

INTRODUCTION

Les procédés de prétraitement des minerais tels que le concassage et le broyage, sont indispensables à maîtriser afin, d'orienter les travaux de valorisation ultérieurs. En fait, ces procédés visent à réduire la taille des particules, dans le but de libérer le métal, contenu dans la gangue et permettre une surface d'échange importante. Ce chapitre relate brièvement de ces différents procédés ainsi que de leurs différents stades.

III.1. Équipement de protection

Lors de la prise des échantillons, le préleveur doit porter, en tout temps, des gants jetables de type latex ou des gants de nitrile.

À chaque point d'analyse ou de traitement l'opérateur doit changer de gants afin de minimiser la contamination croisée.

L'opérateur doit s'assurer de prendre les mesures appropriées de santé et de sécurité lors de la manipulation de minerai uranifère susceptibles de contenir des agents radioactifs pathogènes et autres. L'annexe de ce document présente les mesures préventives relativement aux pathogènes pour les travailleurs manipulant des matières uranifère.

III.2. Registre d'échantillonnage

Il est essentiel de tenir un registre d'échantillonnage ordonné qui reflète les activités et qui relate tous les faits pertinents concernant les différentes opérations. Ce registre doit décrire ou référer à la méthode d'échantillonnage utilisée et doit spécifier l'équipement de prélèvement utilisé le type de minerai (sa classe granulométrique, teneur ...). Le préleveur doit y inscrire les éléments suivants : l'identification de l'échantillon, le lieu, la date et la masse du prélèvement, le type de résidu et d'analyse. De plus, toute particularité (conditions spécifique, etc.) ou modification de la méthode le type de minerai (classe granulométrique) doit être noté. Un modèle de registre est proposé dans l'annexe.

III.3. Préparation mécanique

Les minerais sont livrés avec des dimensions variables, les plus gros blocs étant équivalents à des cubes de 200 mm à 1 000 mm d'arête. L'uranium se trouvant soit dans des microfissures, soit en joints de grains, il faut le libérer. À cette fin, on procède à une réduction de taille par concassage et broyage. Il n'y a pas de schéma type, chaque minerai posant, dès cette étape, des problèmes particuliers. Pour des minerais à base de roches cristallines, on peut Considérer comme classiques les opérations suivantes:

- ✓ concassage primaire : réduction jusqu'à 150 à 250 mm ;
- ✓ concassage secondaire : réduction jusqu'à 50 à 70 mm ;
- ✓ concassage tertiaire : réduction jusqu'à 15 à 30 mm ;
- ✓ broyage par broyeur à barres : réduction jusqu'à 1 à 2 mm ;
- ✓ broyage par broyeur à boulets : réduction jusqu'à la dimension finale voulue (150 à 600 µm).

Des opérations complémentaires permettent :

- ❖ de séparer, après concassage primaire ou secondaire, les fines des cailloux (débouage consistant en un lavage à l'eau) ;
- ❖ de séparer, entre deux opérations, les grains de diverses tailles de façon à n'envoyer vers les appareils que ceux qui ont besoin d'y passer ; ce sont des criblages entre les divers concasseurs et des classifications (par cribles, panneaux tamiseurs, classificateurs à râeaux ou à vis, hydrocyclones, etc.) avant les broyeurs.

Les **opérations de concassage** sont effectuées en général sans eau ; les **opérations de broyage** peuvent être réalisées à sec mais, le plus souvent, elles le sont en présence d'eau, qu'il faut éliminer en grande partie avant d'envoyer le minerai broyé à l'attaque. Selon les cas, cette séparation de l'eau est obtenue par décantation, filtration, cyclonage, etc.

Les minerais sédimentaires, principalement gréseux, peuvent être réduits par des opérations plus simples : concassage primaire, puis broyage semi-autogène donnant directement, avec une classification, la taille finale recherchée.

III.4. Echantillonnage

Pour procéder à l'analyse de paramètres chimiques, un échantillon doit être réalisé au laboratoire à partir du lot de minerai fourni par Le Département Géologie. Les échantillons instantanés sont prélevés à intervalle régulier et à des masses identiques. Un minimum de 8 échantillons. Le prélèvement de la quantité nécessaire à l'essai et qui soit également représentative de l'échantillon de départ.

III.5. Quartage

Un quarteur ou diviseur d'échantillons a comme but de diviser une certaine quantité de matière meuble (p.ex. un gravier, un sable, ou tout mélange de fragments résultant d'un concassage) en deux portions de poids égaux. L'une des portions peut à son tour être passée dans le quarteur (et ainsi de suite) jusqu'à l'obtention de la quantité réduite désirée, qui sera toujours représentative de l'échantillon de départ.

III.5.1. Quartage par la méthode du cône

Il s'agit d'une méthode manuelle qui ne demande que très peu de matériel. La fig III.1 illustre le détail.

Verser l'échantillon en un cône régulier sur une feuille ; à l'aide d'une petite pelle ou d'une lame de papier rigide, séparer le cône verticalement par son sommet en deux moitiés symétriques et écarter l'une des deux moitiés de quelques centimètres en prenant garde à ce qu'un minimum de poudre reste sur la feuille de base ; scinder ensuite les deux moitiés par un nouveau plan vertical perpendiculaire au premier, puis séparer l'échantillon de sorte que l'on obtienne quatre quarts de cône identiques ; Prélever et rassembler les quarts 2 et 4 (fig III.1) avec lesquels l'opération est répétée jusqu'à l'obtention de la quantité désirée.

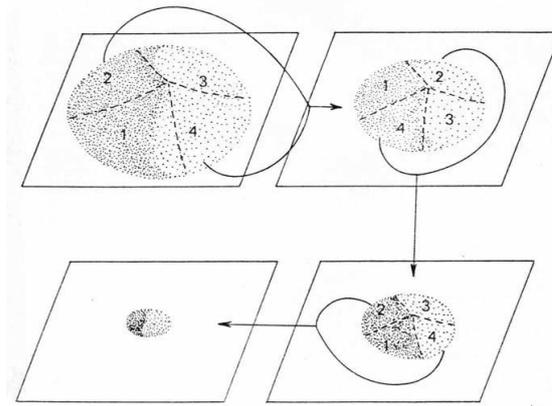


Fig III.1. Méthode manuelle de quartage (méthode du cône).

III.5.2 Quartage par un diviseur

Cet appareil de laboratoire permet de diviser facilement en plusieurs parties représentatives la totalité d'un échantillon initial, chaque portion étant recueillie dans un bac de manière séparée. La répétition en cascade de cette opération, en retenant à chaque opération le contenu de l'un des bacs, permet d'obtenir, après trois ou quatre opérations identiques, la quantité de matériaux représentative et nécessaire à l'essai envisagé.

III.5.3 Limites du quartage mécanique

- La largeur des rainures doit être environ deux fois plus grande que la taille maximale des grains (fragments) à quarter. Dans le cas contraire, les fragments risquent de se bloquer dans les rainures, ce qui augmente fortement le temps de nettoyage.
- Cette méthode engendre beaucoup de poussière (enclencher la ventilation, porter un masque de protection des voies respiratoires de classe FFP2 ou FFP3)
- Le temps de nettoyage entre deux échantillons dure facilement 10 minutes, séchage à l'air Comprimé inclus).

III.6. Analyse granulométrique

La dimension des particules et leur répartition a un effet considérable sur la teneur en métal (libération de métal) en particulier sur les sols grossiers. Il est donc intéressant de classer les sols, en connaissant la grosseur des particules et leur distribution relative. La gamme des grosseurs des gains est très étendue (les sols peuvent être formés de blocs, de cailloux de grande diamètre ou de matériaux ultrafins). C'est pourquoi sous forme de graphe, on traduira la relation entre le logarithme du diamètre des grains et la distribution dimensionnelle en poids cumulative de ces derniers en pourcentage d'une part et la relation entre la teneur de métal en fonction de diamètre L'établissement de cette distribution par procédé porté le nom d'analyse granulométrique. Cette analyse se fait par le tamisage.

III.7. Tamisage

III.7.1. But de l'essai

L'analyse granulométrique par tamisage permet de déterminer la grosseur et les pourcentages pondéraux respectifs des différentes familles de grains constituant l'échantillon. Elle s'applique à tous les granulats de dimension nominale supérieure ou égale à 75µm.

III.7.2. Principe de l'essai

Cet essai consiste à faire passer l'échantillon à travers une colonne de tamis, emboîtés les uns aux autres, dont les dimensions des ouvertures sont décroissantes du haut vers le bas. Le classement des grains s'obtient par vibration de la colonne de tamis, afin de quantifier la taille des particules dans le but de caractériser le lot (fin, grossier,...).

III.7.3. Description de l'essai :

Le matériau séché, de masse M2, est versé sur une série de tamis choisis de telle manière que la progression des ouvertures soit croissante du bas de la colonne vers le haut. Dans la partie inférieure, on dispose un tamis de 0.075 mm, surmontant un fond afin de récupérer les éléments fins. Un couvercle est également disposé en haut de la colonne, afin d'interdire toute perte de matériau pendant le tamisage. On appellera **tamisât** le poids de matériau passant à travers un tamis donné et **refus** le poids de matériau retenu par ce même tamis. Le matériau étudié est déversé en haut de la **colonne de tamis** et celle-ci vibrera.

La somme des refus cumulés mesurée sur les différents tamis et du tamisât sur le fond (fillers) doit coïncider avec le poids de l'échantillon introduit en tête de colonne. La perte éventuelle de matériau pendant l'opération de tamisage ne doit pas excéder 2% du poids total de l'échantillon de départ.

Les résultats des refus sont exprimés en pourcentage de la masse sèche M1 de départ. Le pourcentage des fines f est calculé comme suit : $f = (M1 - M2) / M1 \times 100$.

Avec : M1 : Masse de la prise d'essai, en Kg.

M2 : Masse séchée du refus à 0.080 mm, en Kg.

P : Masse du tamisât restant dans le fond, en Kg.

Chapitre IV

Plans d'expériences

INTRODUCTION

Dans le cas d'un procédé, influencé par plusieurs variables, la conception statistique expérimentale s'avère être un outil puissant pour déterminer l'effet des facteurs opérationnels ainsi que leurs interactions, ceci permettant ainsi une maîtrise effective du procédé. Cette technique a été largement utilisée dans l'industrie chimique (*S.J. Nejad, 2010*).

Dans le but d'optimiser le nombre d'expérience à effectuer afin de réaliser une étude paramétrique, ainsi que d'éviter les interférences entre les différents paramètres, une approche très élégante est souvent envisagée, à savoir le Plan d'expérience tels que le Plan Factoriel Complet (Full factorial Design, FFD), ou bien le Plan Factoriel Fractionnaire, PFF (*S.J. Nejad, 2010*). Ces méthodes consistent à présenter les différentes expériences à réaliser dans une sorte de matrice (*F. Veglio, 1994*). Le nombre total des expériences est : 2^n (FFD), ou bien 2^{n-1} (PFF); ' n ' étant le nombre de paramètres et ' 2 ' signifie les deux niveaux inférieur et supérieur du paramètre étudié.

Le plan factoriel complet consiste à effectuer la totalité des expériences possibles, afin de mieux couvrir tous les effets et les interactions des différents paramètres. Cependant, le nombre d'expérience, croît d'une façon significative avec le nombre de paramètres, soient 2^n ; de plus, plusieurs expériences s'avèrent inutiles et n'apportent qu'un apport minime, quant à la compréhension des effets et des interactions; en fait, il est d'autant plus regrettable que l'on s'aperçoit, au moment de l'interprétation des résultats, que beaucoup d'expériences ont été inutilisés. C'est pour cette raison que le plan factoriel fractionnaire a été introduit, afin de diminuer le nombre d'expériences et aboutir aux mêmes résultats du FFD (*J.L. Goupy, 1990*).

Pour un procédé donné, le nombre de paramètres peut être plus au moins important en fonction du procédé lui-même. Ce nombre est souvent inférieur à 10 et supérieure à 2 (*F. Veglio, 1994*; *S.J. Nejad et al., 2010*).

Dans le cas présent, les paramètres de lixiviation, cités ci-dessus, sont huit (08), à savoir la concentration de la solution de lixiviation (**C**), la température (**T**), la pression (**P**), l'oxydation (**O**), le diamètre des particules (**d**) et la durée de rétention (**t**), les différents ions présent dans la solution et le Ph. Bien que tous ces paramètres apparaissent comme étant importants à examiner, certains ont été suffisamment étudiés dans la littérature et auxquels des valeurs optimums ont été accordées. Parmi ces paramètres on trouve le diamètre des particules (**d**); ce dernier a été bien examiné par plusieurs auteurs, les travaux affirment qu'un échantillon optimal doit avoir 80% de sa granulométrie inférieure à $\sim 75\mu\text{m}$ ($d_{80} = 75\mu\text{m}$) (*J. Souterou 1965*; *A.J. Mattus & A.E. Torma 1980*; *IAEA TRS N°359, 1993*). Cependant, il restera toujours utile de chercher un compromis entre la granulométrie, l'efficacité et la facilité de la filtration. En effet, une granulométrie fine complique davantage le procédé de filtration et le rend laborieux.

La méthode factorielle fractionnaire permet un examen méticuleux de l'effet des différents paramètres ainsi que leurs interactions, tout en minimisant le nombre d'expériences à effectuer. La méthode stipule que le nombre total des expériences égale à 2^{n-1} , avec n est le

nombre de paramètre à examiner. De plus, une bonne analyse des résultats issus de ce plan nécessite une bonne compréhension de la théorie des alias.

Le Plan factoriel peut couvrir les principaux effets et les interactions principales des paramètres dans toute la gamme des paramètres sélectionnés. D'après le principe de la dispersion des effets dans le désign factoriel, il est très probable que l'effet principale d'un seul paramètre et les interactions de deux paramètres sont les effets les plus significatifs ; d'après la théorie des alias, les interactions d'ordre trois et celles avec un ordre plus élevé sont négligeables (*J.L. Goupy, 2005*). Autrement, les interactions d'ordre élevé, telles que les interactions de trois facteurs sont très rares et considérées comme étant un résidu aléatoirement dispersé (*S.J. Nejad, 2010*).

La compréhension de la méthode des plans d'expériences s'appuie sur deux notions essentielles, celle d'*espace expérimental* et celle de *modélisation mathématique* des grandeurs étudiées.

IV.2. Espace expérimental

Un expérimentateur qui projette une étude s'intéresse à une grandeur qu'il mesure à chaque essai. Cette grandeur s'appelle la *réponse*, c'est la grandeur d'intérêt. La valeur de cette grandeur dépend de plusieurs variables. Au lieu du terme «variable» on utilisera le mot *facteur*. La réponse dépend donc de un ou de plusieurs facteurs. La valeur donnée à un facteur pour réaliser un essai est appelée *niveau*. Lorsqu'on étudie l'influence d'un facteur, en général, on limite ses variations entre deux bornes. La borne inférieure est le niveau bas. La borne supérieure est le niveau haut.

Le domaine de variation du facteur est constitué de toutes les valeurs comprises entre le niveau bas et le niveau haut.

Le regroupement des domaines des facteurs définit le «*domaine d'étude*». Ce domaine d'étude est la zone de l'espace expérimental choisie par l'expérimentateur pour réaliser ses essais. Une étude, c'est-à-dire plusieurs expériences bien définies, est représentée par des points répartis dans le domaine d'étude.

IV.3. Modélisation mathématique

En l'absence de toute information sur la fonction qui lie la réponse aux facteurs, on se donne *a priori* une loi d'évolution dont la formulation la plus générale est la suivante :

$$y = f(x_1, x_2, x_3, \dots, x_n) \quad (\text{IV.1})$$

Cette fonction est trop générale et il est d'usage d'en prendre un développement limité de Taylor-Mac Laurin, c'est-à-dire une approximation. Si les dérivées peuvent être considérées comme des constantes, le développement précédent prend la forme d'un polynôme de degré plus ou moins élevé :

$$y = a_0 + \sum a_i x_i + \sum a_{ij} x_i x_j + \sum a_{ii} x_i^2 + \dots \quad (\text{IV.2})$$

Où :

- y est la grandeur à laquelle s'intéresse l'expérimentateur ; c 'est la réponse ou la grandeur d'intérêt,
- x_i représente un niveau du facteur i ,
- x_j représente un niveau du facteur j ,
- a_0, a_i, a_{ij}, a_{ii} sont les *coefficients* du polynôme.

Ce modèle est appelé le modèle *a priori* ou le modèle *postulé*. Les modèles établis sont des modèles de prévision valables dans le domaine d'étude, domaine que l'on doit toujours préciser. Ce ne sont pas des modèles théoriques basés sur des lois physico-chimiques ou mécaniques. Dans quelques rares cas, il est possible d'utiliser des lois physiques théoriques connues.

IV.4. Modélisation expérimentale

Deux compléments doivent être apportés au modèle purement mathématique précédemment décrit.

Le premier complément est le manque d'ajustement. Cette expression traduit le fait que le modèle choisi par l'expérimentateur avant les expériences est probablement un peu différent du modèle réel qui régit le phénomène étudié. Il y a un écart entre ces deux modèles. Cet écart est le *manque d'ajustement* (*lack of fit* en anglais), on le note par la lettre Δ .

Le second complément est la prise en compte de la nature aléatoire de la réponse.

En effet, dans le cas général, si l'on mesure plusieurs fois une réponse en un même point expérimental, on n'obtiendra pas exactement le même résultat. Il y a une dispersion des résultats. Les dispersions ainsi constatées sont appelées *erreurs aléatoires* ou *erreurs expérimentales* (*pure error* en anglais) et on les note par la lettre ε .

La relation générale {IV.1} doit être modifiée ainsi :

$$y = f(x_1, x_2, x_3, \dots, x_n) + e + \Delta. \quad \{\text{IV.3}\}$$

Cette relation sera exploitée au cours du chapitre 5 où l'on verra comment on estime le manque d'ajustement Δ et l'erreur aléatoire ε .

IV.4.1. Système d'équations

Chaque point expérimental apporte une valeur de la réponse. Or cette réponse est modélisée par un polynôme dont les coefficients sont les inconnues qu'il faut déterminer. À la fin du plan d'expériences, on a un système de n équations (s'il y a n essais) à p inconnues (s'il y a p coefficients dans le modèle choisi a priori). Ce système s'écrit d'une manière simple en notation matricielle :

$$y = X a + e$$

Où :

- y est le vecteur des réponses,
- X est la matrice de calcul des coefficients ou matrice du modèle qui dépend des Points expérimentaux choisis pour exécuter le plan et du modèle postulé,
- a est le vecteur des coefficients,
- e est le vecteur des écarts.

Ce système ne peut pas, en général, être résolu simplement car le nombre d'équations est inférieur au nombre d'inconnues. En effet, il y a n équations et $p + n$ inconnues. Cette résolution ne peut être menée à bien que si l'on utilise une méthode de régression. La plupart du temps cette méthode est basée sur le critère d'optimisation des moindres carrés. On obtient ainsi les estimations des coefficients que l'on note \hat{a} .

Le résultat de ce calcul est :

$$\hat{a} = (X' X)^{-1} X' y \quad \{\text{IV.4}\}$$

Formule dans laquelle la matrice X' est la matrice transposée de X . Il existe de nombreux logiciels qui exécutent ce calcul et qui donnent directement les valeurs des coefficients.

Deux matrices interviennent constamment dans la théorie des plans d'expériences :

- la matrice d'information $X' X$,
- la matrice de dispersion $(X' X)^{-1}$.

Fonction désirabilité

La fonction désirabilité est très utile quand il faut trouver le meilleur compromis entre plusieurs réponses. Cette fonction a été proposée par Derringer et Suich et elle figure dans de nombreux logiciels de plans d'expériences. Elle est très facile à utiliser et rend de grands services.

La fonction désirabilité appliquée à une seule réponse

Commençons par définir la fonction désirabilité pour une seule réponse. Cette fonction varie de 0 à 1. La valeur 1 correspond à une forte valeur souhaitée, la valeur 0 à Faibles valeurs souhaitées.

IV.5. Notions de statistique appliquées aux plans d'expériences

On définira d'abord l'erreur expérimentale, puis les notions de population et d'échantillon.

IV.5.1 Erreur expérimentale

Les quatre points au centre ont des valeurs différentes. Au lieu de donner la liste des quatre valeurs, on peut essayer de la résumer en indiquant la valeur centrale et la dispersion autour de cette valeur centrale. En général, on prend la moyenne arithmétique comme valeur centrale et l'écart-type comme mesure de la dispersion.

IV.5.2. Moyenne

Par définition, la moyenne arithmétique d'un ensemble de valeurs est la somme de toutes les valeurs divisées par le nombre de valeurs.

IV.5.3. Écart-type

La définition de l'écart-type est un peu moins simple que celle de la moyenne. Notons que la somme de ces écarts à la moyenne est égale à zéro.

$$\sum_{i=1}^{i=n} (y_i - y') = \sum_{i=1}^{i=n} y_i - c = \frac{n}{n} \sum_{i=1}^{i=n} y_i - ny' = ny' - ny' = 0$$

On ne peut donc pas prendre la somme des écarts comme mesure de la dispersion. C'est pourquoi on fait disparaître le signe négatif en prenant les carrés des écarts.

IV.5.4. Population

Supposons que nous fassions plusieurs mesures dans les mêmes conditions expérimentales.

Nous obtenons une suite de valeurs qui sont proches les unes des autres, mais qui sont légèrement différentes. Imaginons que nous poursuivions les mesures jusqu'à en obtenir une infinité. L'ensemble de toutes ces valeurs forme une population de grandeurs aléatoires caractérisée par :

- la valeur centrale des mesures, appelée moyenne de la population et notée m ;
- l'écart-type de la population, noté $\delta_{\text{population}}$,
- la distribution.

IV.5.5. Échantillon

D'un point de vue statistique, obtenir un échantillon de n valeurs, c'est tirer au hasard n valeurs dans la population de toutes les valeurs possibles. La valeur de n est petite vis-à-vis du nombre d'individus de la population. Un échantillon de n valeurs est caractérisé par :

La valeur moyenne des mesures ; soit un échantillon de n réponses, y_i ; la moyenne y' est calculée grâce à la relation :

$$y = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n y_i \quad (\text{IV.5})$$

L'écart-type de l'échantillon, noté $\delta_{\text{échantillon}}$;
L'histogramme des valeurs.

IV.5.6. De l'échantillon à la population

Il est très rare que l'on puisse connaître directement les caractéristiques d'une population. Le moyen le plus souvent utilisé est d'estimer ces caractéristiques à partir d'un échantillon. Les statisticiens se sont penchés sur ce problème et voici leurs conclusions :

La meilleure estimation de la moyenne de la population, c'est la moyenne de l'échantillon :

Meilleure estimation de $u = y'$ de l'échantillon.

La meilleure estimation de l'écart-type de la population est notée par la lettre s . Elle est donnée par la relation :

$$s = \text{Meilleure estimation de } \delta_{\text{population}} = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_1^n (y_i - y')^2} \quad (\text{IV.6})$$

Il faut souligner que le dénominateur est $n - 1$ et non n .

IV.5.7. La variance

La variance des coefficients dépend des réponses, du modèle postulé et de la méthode de calcul. Les statisticiens ont établi les formules donnant la variance des coefficients :

$$V(a_i) = \delta a_i^2. \quad (\text{IV.7})$$

La variance des coefficients est donc directement liée à la variance de l'écart.

Rappelons que l'écart peut être divisé en deux parties : le manque d'ajustement (lack of fit en anglais) et l'erreur expérimentale (pure error en anglais).

IV.6. Facteurs et interactions influents

L'influence des facteurs et de leurs interactions est évaluée par l'intermédiaire des coefficients du modèle postulé. Il nous faut donc trouver une valeur étalon pour juger l'importance d'un coefficient. Cet étalon sera l'écart-type du coefficient.

On comparera la valeur du coefficient à la valeur de son écart-type.

1. Si le coefficient est nettement plus grand que son écart-type, on estimera que le coefficient est influent :

$$a_1 \gg \delta a_1.$$

2. Si le coefficient est nettement plus petit que son écart-type, on estimera que l'on peut éliminer ce coefficient :

$$a_1 \ll \delta a_1.$$

3. Si le coefficient est du même ordre de grandeur que son écart-type, il faudra faire appel à ses connaissances du phénomène et aux enjeux de l'étude pour prendre une décision :

$$a_1 = \delta a_1.$$

Pour évaluer l'importance d'un coefficient, la théorie des statistiques compare ce coefficient à son écart-type en faisant le rapport $a_1/\delta a_1$. Ce rapport est appelé le t de Student. À partir du t de Student, on peut évaluer la probabilité que le coefficient soit nul ou, autrement dit, sans importance ou peu significatif. Cette probabilité est la p -value. Si la p -value est proche de 0 (probabilité nulle), le coefficient est influent car il n'est pas nul. Si la p -value est proche de 1, le coefficient est proche de 0 et donc négligeable. Si la p -value possède une valeur intermédiaire, le coefficient est peut-être légèrement significatif ou non significatif.

IV.7. Test de Cochran d'homogénéité des variances

Le test de Cochran permet de tester l'homogénéité des variances pour des échantillons composés d'un même nombre de résultats (Schimmerling et al. 1998).

La valeur critique (calculée) ; $C(m, N, \alpha=0.05)$ du critère :

$$C = \frac{\delta_u^2 \max}{\sum_1^n \delta_u^2} \quad (IV.8)$$

$$\delta_u^2 = \sum_{i=1}^{i=n} (y - y')^2 / (m - 1) \quad (IV.9)$$

Le choix du diviseur (m-1) vient du fait qu'il y ait seulement (m-1) mesures indépendantes pour calculer la variance, car il existe une relation entre les m mesures initiales : la relation de définition de la moyenne.

$\delta_u^2 \max$: Variance maximale observée sur les échantillons ;

δ_u^2 : Variance de l'échantillon (variance des expériences dans chaque point) ;

N : Nombre d'échantillon (d'expériences) ;

A : Probabilité de l'erreur de 1ere espèce ;

u : Numéro de l'expérience ;

m : Nombre de répétition (la taille de chaque échantillon) ;

y : Valeur du paramètre d'optimisation dans la ueme expérience à la ieme répétition ;

y' : Valeur moyenne du paramètre d'optimisation dans la ueme expérience.

IV.8. Calcul des coefficients du modèle de la régression linéaire multiple

Cette méthode est la plus simple et la plus utilisée, lorsqu'on cherche à établir la relation entre une variable expliquée et un ensemble de variables explicatives.

Cette méthode prend pour hypothèse la linéarité du modèle par rapport aux paramètres inconnus à estimer.

Les coefficients se calculent ainsi :

$$b_0 = \sum_{n=1}^n y' / n \quad (IV.10)$$

$$b_i = \sum_{n=1}^n y' \cdot X_{iu} / n \quad (IV.11)$$

$$b_{ij} = \sum_{n=1}^n Y'_u \cdot X_{iu} \cdot X_{ju} / n \quad (IV.12)$$

X_{iu}, X_{ju} : Valeurs codées des facteurs dans la u^{ème} expérience ;

Y'_u : Valeur moyenne des paramètres d'optimisation dans la u^{ème} expérience ;

N : Nombres d'essais.

Ce n'est pas par chance, que l'on puisse calculer si facilement effets et interactions, mais c'est une conséquence des modèles mathématiques, qui sont sous-jacents à la théorie des plans d'expérience.

IV.9. Présentation du modèle choisi

Le modèle mathématique choisi *à priori* (modèle PDAI) est un modèle linéaire d'ordre un (01), tel que :

$$y = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_3x_3 + a_4x_4 + a_{12}x_1x_2 + a_{13}x_1x_3 + a_{14}x_1x_4 + a_{23}x_2x_3 + a_{24}x_2x_4 + a_{34}x_3x_4 + a_{123}x_1x_2x_3 + a_{124}x_1x_2x_4 + a_{134}x_1x_3x_4 + a_{234}x_2x_3x_4 + a_{1234}x_1x_2x_3x_4 \quad (\text{VI.13})$$

Avec :

a_0 : Coefficient constant ;

a_i : Effet des facteurs ;

a_{ij} : Effet d'interaction entre deux facteurs, le produit des niveaux des facteurs pris deux à deux ;

a_{ijk} : Effet d'interaction entre trois facteurs, le produit des niveaux des facteurs pris trois à trois ;

a_{ijkl} : Effet d'interaction entre quatre facteurs, le produit des niveaux des facteurs pris quatre à quatre.

Les différents coefficients du modèle ainsi choisis seront calculés, d'après la méthode des moindres carrés standards.

Concernant les variables x_i , $x_i x_j$, $x_i x_j x_k$ et $x_i x_j x_k x_m$, elles sont évaluées d'après les relations suivantes :

$$x_i = \frac{x_i - \left(\frac{l_{ii} + l_{si}}{2}\right)}{\left(\frac{l_{ii} - l_{si}}{2}\right)} \quad (\text{VI.14})$$

$$x_i x_j = \left[\frac{\left(\frac{x_i - \left(\frac{l_{ii} + l_{si}}{2}\right)}{\left(\frac{l_{ii} - l_{si}}{2}\right)}\right) * \left(x_j - \left(\frac{l_{ij} + l_{sj}}{2}\right)\right)}{\left(\frac{l_{ij} - l_{sj}}{2}\right)} \right] \quad (\text{VI.15})$$

$$x_i x_j x_k = \left[\begin{array}{c} \left[\frac{\left(x_i - \frac{l_{ii} + l_{si}}{2} \right) \left(x_j - \frac{l_{ij} + l_{sj}}{2} \right)}{\left(\frac{l_{ii} - l_{si}}{2} \right) \left(\frac{l_{ij} - l_{sj}}{2} \right)} \right] * \left(x_k - \frac{l_{ik} + l_{sk}}{2} \right) \\ \left(\frac{l_{ik} - l_{sk}}{2} \right) \end{array} \right] \quad (\text{VI.16})$$

$$x_i x_j x_k x_m = \left[\begin{array}{c} \left[\frac{\left(x_i - \frac{l_{ii} + l_{si}}{2} \right) \left(x_j - \frac{l_{ij} + l_{sj}}{2} \right)}{\left(\frac{l_{ii} - l_{si}}{2} \right) \left(\frac{l_{ij} - l_{sj}}{2} \right)} \right] * \left(x_k - \frac{l_{ik} + l_{sk}}{2} \right) \\ \left(\frac{l_{ik} - l_{sk}}{2} \right) \end{array} \right] * \left(x_m - \frac{l_{im} + l_{sm}}{2} \right) \\ \left(\frac{l_{im} - l_{sm}}{2} \right) \quad (\text{IV.17})$$

Avec :

$l_{ii}, l_{ij}, l_{ik}, l_{im}$: les niveaux inférieurs des facteurs i, j, k, m respectivement ;

$l_{si}, l_{sj}, l_{sk}, l_{sm}$: les niveaux supérieurs des facteurs i, j, k, m respectivement.

Il est à rappeler que les interactions d'ordre trois et ceux supérieures à trois sont souvent considérées comme étant négligeables (*J.L. Goupy, 2005*).

Le modèle comporte en tous 16 coefficients, soit 16 inconnues. Les 16 essais vont permettre de calculer ces 16 inconnues. La résolution de ce système d'équations est réalisée grâce au logiciel JMP 8.0.

Chapitre V

*Mise en œuvre des techniques
expérimentales*

V.1. La fragmentation du minerai

La fragmentation est une opération mécanique qui consiste à réduire le minerai tout venant à la maille de libération du métal. En effet, un broyage poussé développe inutilement des fines donnant une grande surface spécifique consommatrice de réactifs, de surcroît les fines obtenues gênent la décantation de la pulpe et colmatent les pores des filtres au cours de la filtration. En revanche, un broyage grossier ne permet pas l'accès du réactif au minéral à extraire, surtout si l'on sait la lenteur de la cinétique de l'attaque alcaline. La recherche d'un broyage correcte donnant une valeur de coupure optimale permet l'économie du temps et du réactif de dissolution tout en donnant des solutions de lixiviation relativement propres.

V.1. 1. Concassage

Les échantillons de minerai ont subi une première réduction dans un concasseur à mâchoire à une granulométrie inférieure à 5mm.



Fig V.1. Concasseur à mâchoire utilisé

V.1. 2. Broyage

Le lot de minerai concassé est passé dans un broyeur à disque pour lui faire subir une fragmentation poussée.



Fig V.2. Broyeur à disque utilisé

V.1. 3. Broyage poussé

Afin d'améliorer la justesse et la reproductibilité des résultats d'analyse de l'uranium dans le minerai nous avons procédé à un broyage poussé (très fin) des prises, à une granulométrie $<75\mu\text{m}$. Le broyeur en agate (pulvérisette) permet d'atteindre cette finesse durant 15min.

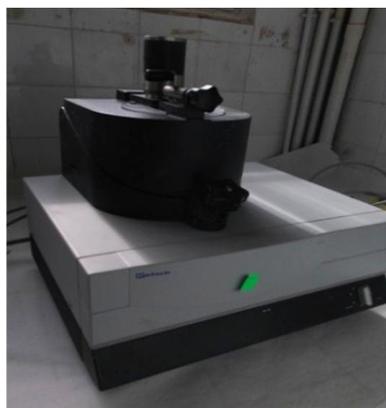


Fig V.3. Broyeur en agate utilisé

V.2. Echantillonnage

V.2.1. Matériel requis

- seau propre en plastique d'environ 20 litres avec couvercle;
- pots en plastique ou en verre d'environ un litre à grande ouverture avec couvercles;
- cuillère ou louche propre en plastique;
- sacs en plastique refermables (ou à fermeture à glissière);
- toile de plastique, au besoin;
- pelle en plastique, au besoin.

V.2.2. Méthode d'échantillonnage

Tout le matériel réutilisable doit être préalablement nettoyé avec de l'eau savonneuse, rincé avec de l'eau distillée et asséché avec un chiffon propre (papier absorbant). L'ensemble du matériel servant à l'échantillonnage doit être gardé dans un endroit propre ou dans un espace protégé des contaminations.

Un échantillon instantané est pris à partir du lot de minerai (Tout-venant) avec l'instrument approprié. Si cela est jugé sécuritaire, le prélèvement peut se faire également de façon manuelle avec des gants jetable neufs à chaque point de prélèvement. Cet échantillon instantané est ensuite placé dans un pot en plastique d'un litre avec couvercle ou dans un sac de plastique hermétique.

Lorsque tous les échantillons ont été mis en place et accumulés dans le seau, une fraction de l'échantillon est transférée dans un contenant refermable préalablement étiqueté et prêt à être acheminé au laboratoire d'analyse et de traitement.

Si le volume de l'échantillon dans le seau est supérieur à 10 litres, le fractionnement doit être réalisé par la technique de quartage. Pour diviser l'échantillon, vider le contenu sur une toile de plastique ou sur une surface adéquate. À l'aide d'une pelle en plastique, faire un tas de forme régulière et diviser le tas en quatre. Jeter deux quarts opposés, combiner les deux restants et répéter le procédé jusqu'à l'obtention d'un échantillon composé de la taille voulue.

V.3. Quartage

V.3.1. Aspects pratiques

2.1 Système mécanique de quartage Les pièces typiques d'un système de quartage sont (Fig.) :

- Le diviseur lui-même, caractérisé par un dispositif de rainures (fentes) parallèles à directions de déversement alternativement opposées engendrant la séparation de l'échantillon.

La largeur des rainures varie selon le modèle du diviseur.

- Trois bacs de tailles adaptées au diviseur permettant de verser l'échantillon (bac 1) et de récolter les deux moitiés de l'échantillon (bacs 2 et 3).



Fig V.4. Vue générale d'un système de quartage

V.3.2. Matériel nécessaire pour le quartage

- diviseur avec trois bacs (métal ou plastique). Largeur des rainures disponibles à CRND : 50 mm, 25 mm, 12 mm, 11 mm

- Petite pelle pour la technique manuelle de cône (ou papier rigide, carton fin, ...)
- Papier d'imprimante recyclé
- Air comprimé pour le nettoyage des rainures et pour le séchage
- Linges et/ou papier ménage

- Récipient original (grand) dans lequel se trouvait l'échantillon, qui permet de stocker le témoin composé de tous les produits du partage, sauf le dernier ;
- Deuxième récipient (petit), qui permet de garder l'échantillon quarté ;
- Matériel de nettoyage (patte, brosse en plastique, éventuellement brosse et ramassoire).



Fig V.5. Les différentes tailles de diviseurs disponibles.

A gauche, les Grands (50 et 25 mm) et à droite, les plus petits (12 et 11 mm).

V.4. Tamisage

V.4.1. Appareillage

- Bacs.
- brosses.
- Pinceaux.
- Echantillonneur.
- Balance dont la portée limite est compatible avec les masses à peser et permettant de faire toutes les pesées avec une précision relative de 0,1 %.
- Etuve ventilée réglé à $105^{\circ}\text{C} \pm 5^{\circ}\text{C}$.
- Un dispositif de lavage.
- Série de tamis dont l'ouverture sera de 40mm à 0.080mm.

V.4.2. Mode opératoire :

V.4.2.1. Choix de l'échantillon : l'échantillon à prélever doit être représentatif pour pouvoir procéder à l'échantillonnage avec un échantillonneur muni de barrettes réglées au diamètre voulu pour homogénéiser le mélange et obtenir un poids.

V.4.2.2. Classer les tamis : Les tamis seront classés par ordre de grosseur croissante normalisée sous forme de colonne (les mailles les plus faibles en bas).

V.4.2.3. Introduire l'échantillon dans la colonne : le matériau est déversé à la partie supérieure de la colonne. L'ensemble agité pour faire descendre les plus petits.

V.4.2.4. Tamiser : On secoue tamis par tamis au-dessus d'un plateau jusqu'à ce qu'aucun grain ne passe à travers les mailles. Le matériau passé à travers le tamis appelé (tamisât) doit être remis dans le tamis de dimension immédiatement inférieure à celui utilisé.

V.4.2.5. Peser les refus : le matériau resté sur le tamis (refus) doit être pesé, ainsi de suite, dont on y trouvera :

- les refus cumulés en poids (g).
- les pourcentages des refus cumulés.

Fig V.6. Tamiseuse

**V.5. Séchage**

Le minerai et le résidu de lixiviation sont séchés à 105°C pendant 24 heures avant les essais et les analyses.

Fig V.7. Etuve



V.6. Essais de lixiviation alcaline

Les essais de lixiviation alcaline ont été conduits sur un lot de minerai d'uranium de Timgaouine, afin d'étudier les paramètres du procédé de la lixiviation alcaline.

Le programme d'essais de la lixiviation alcaline a été poursuivi, suivant un plan d'expérience, précédé d'une série de tests préliminaires, afin de rechercher en détail l'effet de la dimension des grains de minerai, de la durée de rétention, de la température, de la quantité en agent lixiviant, (carbonate de sodium), sur l'extraction de l'uranium. Tous les essais ont été conduits, en utilisant de l'air comme agent oxydant, une vitesse d'agitation adéquate pour mettre en contact les différentes phases. Tous les échantillons du minerai ont été pulvé à 33% de matières solides (rapport solide/liquide égale à 1/3) et lixiviées sous pression dans un autoclave, de capacité un (01) litre.

Les différentes conditions de la série des tests préliminaires sont données dans la table ci-dessous :

Tableau V.1. Conditions des tests préliminaires.

Référence de test	m/V (g/ml)	T (C°)	Granulométrie (μm)	Quantité en agent lixiviant (g/g)	t (h)	P (bar)	Agitation (tr/min)
TP01	100/200	90	<70 μm (75%)	20/100	0,5	2	250
TP02	100/200	140	En vrac	10/100	4	10	250
TP03	100/200	140	<150 μm	10/100	4	10	250
Tp04	100/200	140	<300 μm	10/100	4	10	250

V.6.1. Choix du plan d'expériences

L'étude de la lixiviation alcaline se pratique sur 4 facteurs, avec un plan factoriel complet 2^4 , car il s'attend à de nombreuses interactions entre les facteurs. Le plan comporte donc 16 essais (Tableau V.2).

Tableau V.2.Plans d'expérience pour l'étude sur le taux d'extraction

Essai N°	t (h)	T (°C)	C (g/g minéral)	Gr (µm)
AP01	-	-	+	+
AP02	-	+	+	+
AP03	+	-	+	-
AP04	-	-	+	-
AP05	-	-	-	-
AP06	+	+	+	+
AP07	+	-	+	+
AP08	+	-	-	-
AP09	-	+	+	-
AP10	-	+	-	-
AP11	-	+	+	+
AP12	+	+	+	-
AP13	+	+	-	-
AP14	-	-	-	+
AP15	+	+	-	+
AP16	+	-	-	+

V.6.2. Dispositif expérimental

L'appareil du banc d'essais a consisté en un réacteur sous pression de 1 litre. L'appareil a été équipé d'un agitateur normal (4.6 cm de diamètre, à 2 pales, de type turbine), mené par un régulateur de vitesse (1tr/min à 1000 tr/min), incorporé dans une boîte de commande ordinaire. Une pression constante a été maintenue dans le réacteur, en utilisant de l'air comprimé, à partir d'un cylindre à air. L'air a été introduit dans la pulpe, au moyen d'un tube de dispersion, s'étendant jusqu'aux pales de l'agitateur. La génération de la température s'effectue électriquement (de 0°C à 250°C), introduite suivant un tube étendue jusqu'au réacteur.

V.7. Dispositif de filtration

La filtration ou la séparation solide liquide a pour but d'éliminer la gangue. Donc, nous procédons à la filtration de la pulpe sous vide. Le gâteau de filtration est déposé dans le creuset fritté. La solution chargée en uranium est récupérée dans la fiole à vide et mise dans un flacon, pour être analysée



Fig V.8. Filtration et lavage

V.8. Analyse des échantillons

L'analyse des échantillons liquides et solides a été effectuée selon deux méthodes, par volumétrie et à la torche à plasma (ICP). Les deux méthodes sont détaillées en annexe.



Fig V.9.: Résidu de lixiviation à analyser.

Chapitre VI

Résultats et interprétation

Introduction

Durant le premier stade, afin de déterminer les intervalles de variation de la concentration d'agent lixiviant (Na_2CO_3), de la granulométrie, de la température et du temps, conduisant à une bonne récupération de l'uranium, nous avons procédé à des tests préliminaires sur quelques échantillons dont le but est de déterminer l'adaptabilité du minerai aux diverses conditions de lixiviation. Les résultats obtenus, lors de ces essais, apparaissent au niveau des histogrammes donnés ci-dessous.

L'étude expérimentale est schématisée selon l'organigramme ci-après :

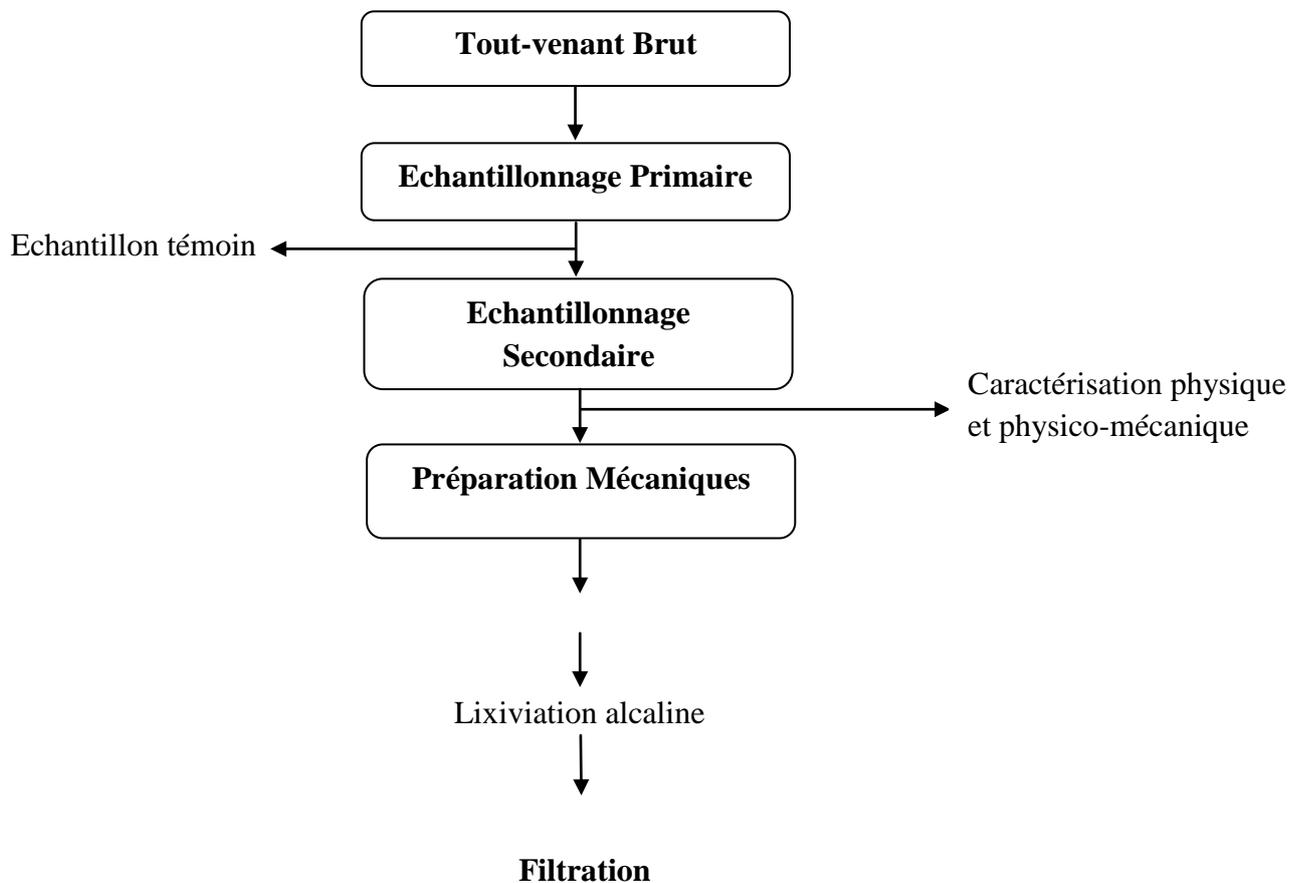


Fig. VI.1. Schéma des procédés de prétraitement et de traitement du minerai

VI.2. Chimie analytique

Tableau VI.1. Analyses volumétrique et par fluorescence RX du minerai de Timgaouine
Analyse chimique des minerais d'uranium de Timgaouine

Echant	%									
	U3O8	V2O5	Mo	Ca	Mg	Fe	CO3	C	S	P2O5
Timg	0.712	0.01	0.27	3.22	0.49	1.59	5.32	2.08	0.29	0.04

Analyse par fluorescence aux rayon-X

Echant	PPM					
	Cu	Zn	Pb	As	Fe	Rb
Timg	110	340	520	140	6700	88
	Sr	Ti	Zr	Mo	U	Mn
	380	650	250	3000	4800	620

VI.2.1. Détermination de la teneur en uranium des minerais issus du fût N°1

Les échantillons de minerai, issus du broyage à disques ont été, après quartage, analysés par volumétrie et torche à plasma (ICP). Les résultats obtenus sont indiqués dans les figures suivantes (fig.VI.2) :

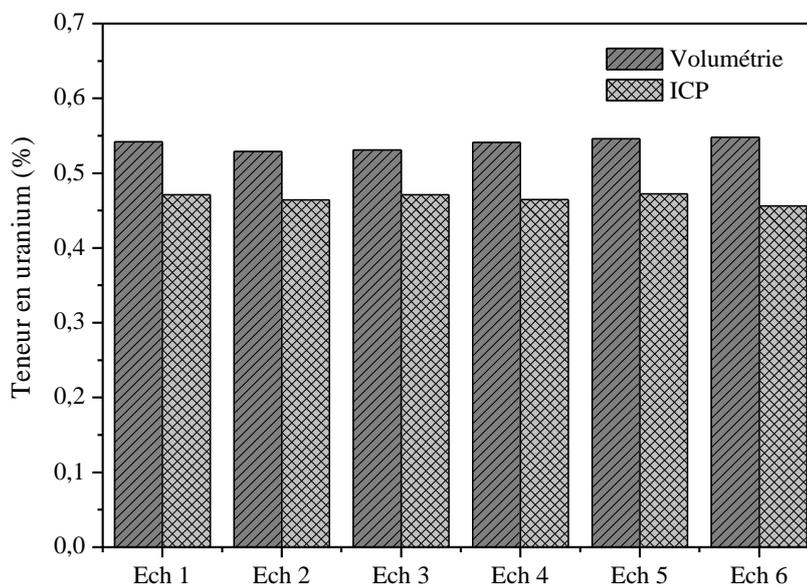


Fig. VI.2. Teneur des différents échantillons, obtenue par volumétrie et ICP.

Nous constatons que les résultats ne sont pas reproductibles. Une étude détaillée de toutes les étapes du protocole d'analyse a été effectuée. En conclusion de celle-ci, il n'a été constaté, que le problème d'ordre physique, inhérent à la granulométrie de l'échantillon à analyser.

Afin d'améliorer la justesse des résultats d'analyse et leur reproductibilité nous avons procédé à un broyage très fin des échantillons au moyen d'un broyeur agate à une granulométrie inférieure à 200 mesh [75 μm]. La figure suivante indique une nette amélioration des résultats et une meilleure reproductibilité. De plus, la concentration moyenne du lot étudié est trouvée égale à ~0,7%. Cette teneur sera, prise pour effectuer l'ensemble des calculs pour le reste de ce document.

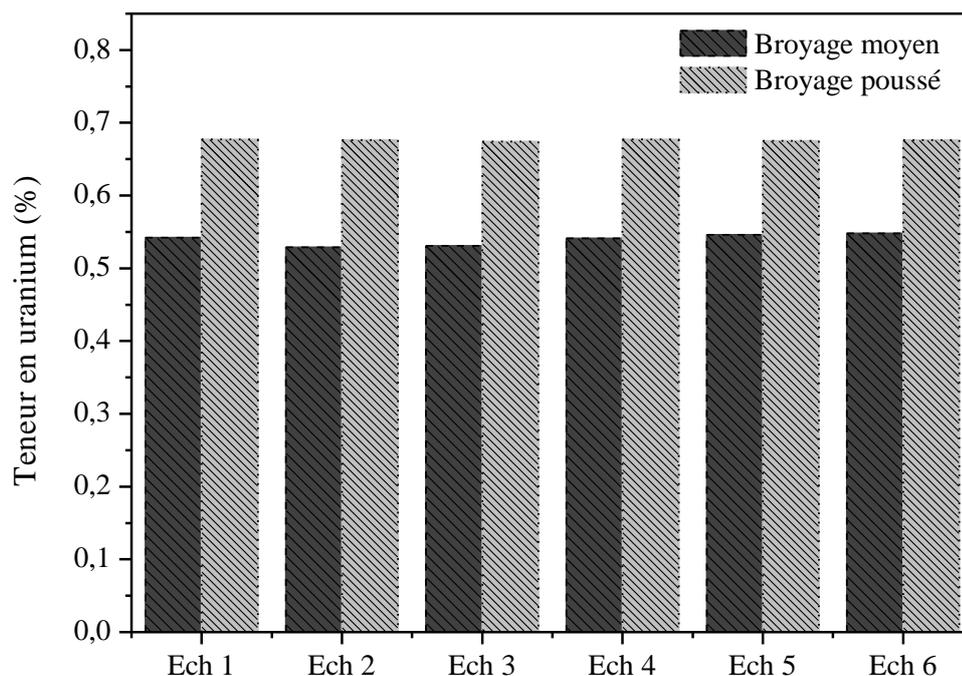


Fig. VI.3. Résultats d'analyse volumétrique des différents échantillons pour deux niveaux de broyage.

VI.3. Analyse granulométrique

Tableau VI.2. Résultat de la classification granulométrique

Minerai	Timgaouine		
N° Echantillon :	1		
Masse Total	100,80g		
N°	Classe	Masse	W %
1	$\Phi > 300 \mu\text{m}$	55	54,56
6	$200 < \Phi < 300 \mu\text{m}$	6,9	6,85
3	$150 < \Phi < 200 \mu\text{m}$	7,9	7,84
4	$106 < \Phi < 150 \mu\text{m}$	8,58	8,51
5	$75 < \Phi < 106 \mu\text{m}$	8,6	8,53
6	$\Phi < 75 \mu\text{m}$	13,84	13,73
	Total	100,80	100,02

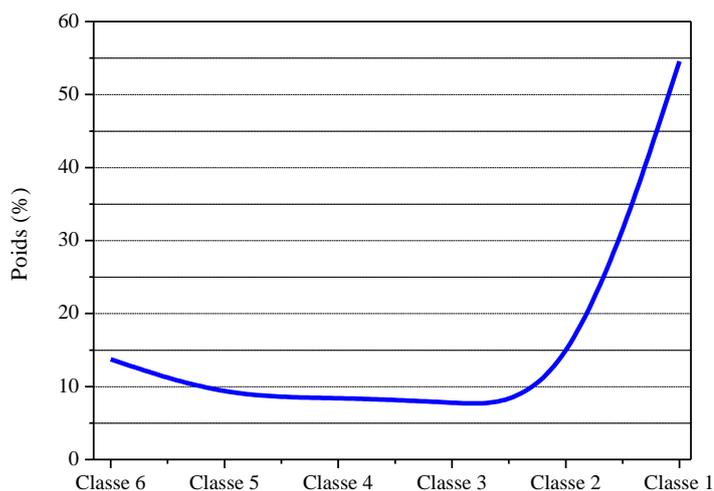


Fig. VI.4. Analyse granulométrique de l'échantillon N°1.

D'après les résultats illustrés dans la figure VI.4, nous remarquons que la majeure partie de l'échantillon (~55%), obtenu à l'aide d'un broyeur à disque, se constitue de particules dont le diamètre est supérieur à 300 μ m. Les classes inférieures présentent des fractions pratiquement identiques (~7 à 10%). En effet, le minerai de Timgaouine est de type primaire, pechblende, ayant une dureté élevée, ce qui rend la réduction des particules assez difficile et requière un broyage ultérieur poussé.

VI.3.1. Analyse du contenu d'uranium de chaque classe

L'analyse granulométrique fait sur l'Echantillons 1 ainsi obtenu a permis d'effectuer une analyse méticuleuse de chaque classe dans le but d'évaluer son contenu moyen en uranium. L'analyse de l'uranium a été précédée par un broyage poussé à l'aide d'un broyeur agate pour bien homogénéiser la prise à analyser et se rapprocher de la teneur réel en uranium dans chaque classe. La distribution de l'uranium dans les diverses fractions du criblage, est donnée dans la table suivante :

Tableau VI.3. Distribution de la teneur en uranium au niveau des classes granulométriques.

Minerai		Timgaouine		
N° Echantillon :		1		
Masse Total		100,80g		
N°	Classe	M	W %	Teneur en % d'U
1	$\Phi > 300 \mu\text{m}$	55	54,56	0,51
6	$200 < \Phi < 300 \mu\text{m}$	6,9	6,85	0,55
3	$150 < \Phi < 200 \mu\text{m}$	7,9	7,84	0,58
4	$106 < \Phi < 150 \mu\text{m}$	8,58	8,51	0,65
5	$75 < \Phi < 106 \mu\text{m}$	8,6	8,53	0,71
6	$\Phi < 75 \mu\text{m}$	13,84	13,73	0,75



Fig. VI.5. Distribution de la teneur en uranium au niveau des classes granulométriques.

VI.4. Tests de lixiviation alcaline

Les différents tests préliminaires ont pour but de déterminer, d'une part, si le minerai se prête à une lixiviation alcaline et, d'autre part, le taux de récupération exacte en métal de chaque classe granulométrique.

Il est à indiquer que les différentes conditions de lixiviation alcaline, à savoir la pression, la température, la quantité en agent lixiviant et en minerai, la granulométrie moyenne et la durée de rétention, ont été données en détail au niveau de la partie expérimentale, chapitre V.

Les essais de lixiviation ont été tous effectués à partir d'un lot de minerai de Timgaouine de teneur en uranium de 0.70%.

Le tableau ci-dessous regroupe les résultats globaux des différents tests effectués.

Tableau VI.4. Résultats globaux des tests de lixiviation alcaline

Référence de test	Teneur initial en U %	Masse traitée	Taux de Lixiviation	Teneur dans le résidu	Produit de tête
TP01	0.72	100	82.34	14.23	80.55
TP02	0.72	100	73.76	19.60	74.69
TP03	0.72	100	81.25	15.19	81.02
Tp04	0.72	100	96.02	3.82	95.98

VI.4.1. Test préliminaire de lixiviation alcaline

Le test préliminaire (TP01, tableau VI.4) vise à examiner la susceptibilité du minerai de Timgaouine pour une attaque alcaline.

Le taux de la lixiviation de l'uranium obtenus est élevé, avec un taux d'extraction maximal d'uranium de 81%. Le taux d'extraction de l'uranium, basée sur la solution et l'analyse du produit de tête, était le même, 81%. D'après le rapport de l'AIEA, un taux de lixiviation supérieur à 30% indique que la voie alcaline est à préconiser.

Ce résultat confirme davantage que ce minerai se prête au mieux à une lixiviation alcaline. En outre, le minerai renferme un taux de carbonate de 10% ce qui implique une consommation excessive du réactif dans le cas d'une lixiviation acide ; d'où la nécessité d'opter pour la voie alcaline.

VI.4.2. Test de lixiviation alcaline du minerai en vrac

Dans le but de déterminer la classe granulométrique qui libère le maximum de métal lors du procédé de lixiviation, nous avons entrepris un test de lixiviation alcaline sur un minerai en vrac, TP02, dont la composition granulométrique est donnée dans la table ci-dessous. Les différentes classes granulométriques ont été analysées en amont et en aval du procédé, et les taux de lixiviation alcaline relatifs à chaque classe ont été calculés.

Tableau VI.5. La teneur de l'uranium en amont et en aval de la lixiviation alcaline dans les différentes classes granulométriques.

Classes, μm	Minerai naturel			Après lixiviation			U Extrait, %
	Masse, g	Poids, %	[U], %	MASS, g	Poids, %	[U], %	
$\Phi > 300$	56,67	55,2932	0,510	60,87	70,00	0,191	62,54
$200 < \Phi < 300$ μm	6,9	6,7324	0,550	5,65	6,50	0,075	86,43
$150 < \Phi < 200$ μm	7,9	7,7081	0,580	4,15	4,77	0,063	89,21
$106 < \Phi < 150$ μm	8,58	8,3715	0,650	5,8	6,67	0,055	91,54
$75 < \Phi < 106$ μm	8,6	8,3911	0,710	2,19	2,52	0,056	92,10
$\Phi < 75$ μm	13,84	13,5038	0,790	8,3	9,54	0,038	95,87

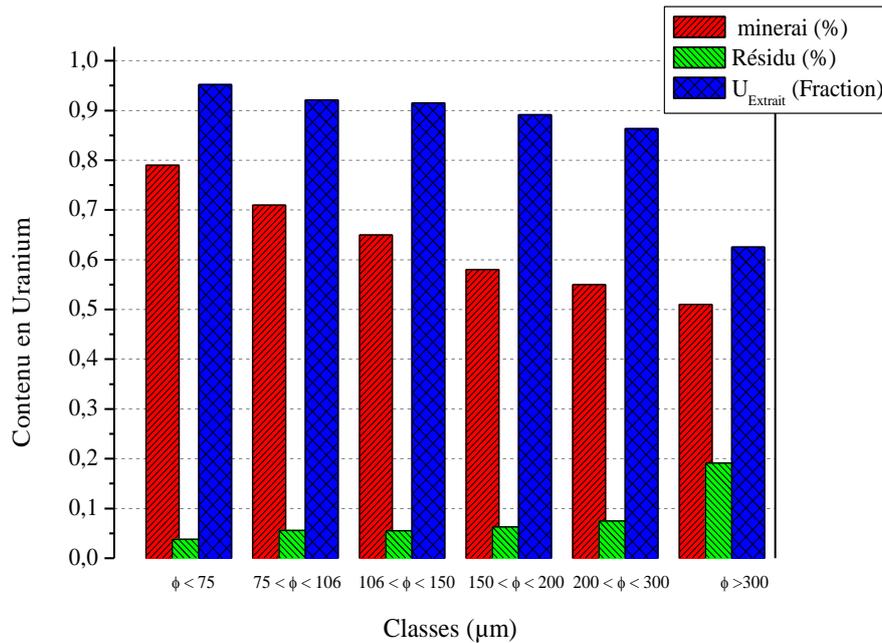


Fig. VI.6. Distribution de la teneur en Uranium entre minerai et résidu, ainsi que le taux de lixiviation des différentes classes granulométriques.

D'après les résultats obtenus, on conclue que la classe dont le diamètre est inférieure à $150\mu\text{m}$, donne un taux d'extraction élevé susceptible d'être amélioré. En effet, la lixiviation alcaline exige un degré de broyage relativement poussé afin de libérer le maximum du métal contenu dans la gangue. De plus, notre minerai est issu d'un gisement endogène renfermant la pechblende, une minéralisation difficile à solubiliser.

Ce résultat nous permet de se situer quant aux niveaux inférieur et supérieur du paramètre granulométrie, lors de l'élaboration du plan d'expérience. Donc pour un plan d'expérience à deux (2) niveaux, on peut avoir un niveau supérieur de $\Phi < 300\mu\text{m}$ et un niveau inférieur de $\Phi < 150\mu\text{m}$, cela minimise le cout de broyage. De plus, d'après le résultat trouvé et afin de rationaliser la consommation énergétique, on définit une température maximale de 140°C et une autre minimale de 70°C .

Concernons l'agent lixiviant, il s'est avéré que le carbonate de sodium seul peut conduire à des taux de lixiviation très acceptables, avec absence de phénomène de précipitation de l'uranium en solution, et ce grâce à l'auto-neutralisation de la soude générée. La quantité en agent lixiviant est en rapport avec celle du minerai, nous avons opté pour une quantité minimale de $0,08\text{g/g}$ de minerai et une quantité maximale de $0,16\text{g/g}$ de minerai, ce choix est basé sur l'expérience.

La durée de rétention est un facteur indispensable qui permet d'atteindre l'équilibre et établir un bon contact liquide-solide. Cependant, elle a un effet important sur le cout du procédé, consommation de l'énergie. Une durée de quatre (4) heures s'est avérée largement suffisante pour pouvoir mettre en solution la quasi-totalité du métal contenu dans le minerai.

Une durée d'une (1) heure sera prise comme étant le niveau bas de ce paramètre au niveau du plan d'expérience.

VI.5. Etude de la lixiviation alcaline suivant un plan d'expérience

VI.5.1. Choix des niveaux de facteurs et du plan d'expérience

Pour établir une bonne étude, la liste de tous les facteurs pouvant influencer le taux d'extraction a été donné précédemment, cependant la sélection des facteurs se fait sur ce qui paraît susceptible d'améliorer le taux de lixiviation. Les différents facteurs s'effectue ainsi que leurs niveaux bas et haut sont regroupés dans le tableau suivant (tableau VI.6).

Tableau VI.6. Les facteurs de la lixiviation alcaline et leur domaine d'étude.

Code	Facteur	Niveau bas (-1)	Niveau haut (+1)
t	Temps (h)	1	4
T	Température (°C)	70	140
C	Carbonate de sodium (g/g minerais)	4	8
Gr	Granulométrie (µm)	<150	<300

Les quatre (4) facteurs ainsi retenus seront étudiés avec un plan factoriel complet à deux niveaux, faisant un nombre d'expériences total de 2^4 , soit 16 expériences. Les effets individuels des différents facteurs, ainsi que leurs interactions d'ordre deux et trois seront évalués. Les différentes évaluations ainsi que le plan d'expérience lui-même sont effectués à l'aide d'un logiciel très performant, JMP 8.0. Ce dernier facilite beaucoup mieux la tâche liée au traitement des résultats, permettent d'économiser le temps et l'effort et à minimiser l'erreur.

VI.5.2. Evaluation des effets

D'après les résultats obtenus, regroupés dans le tableau VI.7, il est bien remarquable que l'on puisse aboutir à un taux de lixiviation très élevé (~98%), tout en combinant les niveaux des différents facteurs. Une analyse bien détaillée, à l'aide du logiciel JMP, permettra l'évaluation de l'effet des différents facteurs sur le taux de lixiviation global du procédé.

Les résultats obtenus, ainsi que leurs détails, sont regroupés dans les deux tableaux VI.7-8. Ces résultats révèlent les deux effets importants de la température et de la granulométrie. L'analyse détaillée a permis de générer les différents graphiques donnés ci-après.

Tableau VI.7. Résultats obtenus par le plan d'expérience

Expérience N°	Configuration	t (h)	T (°C)	C (g/g minéral)	Gr (µm)	U _{Extrait} (%)
AP01	---+	1	70	0.16	300	75,59
AP02	++++	1	140	0.08	300	86,23
AP03	+--+	4	70	0.16	150	83,64
AP04	---+	1	70	0.16	150	87,23
AP05	----	1	70	0.08	150	87,03
AP06	++++	4	140	0.16	300	76,09
AP07	+---	4	70	0.16	300	75,33
AP08	+---	4	70	0.08	150	81,58
AP09	---+	1	140	0.16	150	88,37
AP10	+---	1	140	0.08	150	89,88
AP11	+++	1	140	0.16	300	92,25
AP12	+++	4	140	0.16	150	98,39
AP13	+++	4	140	0.08	150	94,17
AP14	---+	1	70	0.08	300	78,05
AP15	+++	4	140	0.08	300	85,66
AP16	+++	4	70	0.08	300	84,14

Tableau VI.8. Effet des coefficients ainsi que leur contribution globale

Terme	Estimation	Ecart type	t de Student	P-Value	Contribution (%)
Constante	85.23	0.0494	1726.11	0.0004*	-
T	3.65	0.0494	73.99	0.0086*	19.78
Gr	-3.56	0.0494	-72.09	0.0088*	19.27
C	-0.62	0.0494	-12.47	0.0509	3.33
T	-0.35	0.0494	-7.13	0.0888	1.90
T*Gr	-0.26	0.0494	-5.33	0.1181	1.42
T*C	0.51	0.0494	10.34	0.0614	2.76
Gr*C	-1.24	0.0494	-25.05	0.0254*	6.70
T*t	0.05	0.0494	1.00	0.9070	0.27
Gr*t	-1.01	0.0494	-20.47	0.0311*	5.47
C*t	-0.90	0.0494	-18.16	0.0350*	4.86
T*Gr*C	0.45	0.0494	9.20	0.0689	2.46
T*Gr*t	-2.87	0.0494	-58.11	0.0110*	15.53
T*C*t	-0.34	0.0494	-6.80	0.0930	1.82
Gr*C*t	-1.85	0.0494	-37.38	0.0170*	9.99
T*Gr*C*t	-0.82	0.0494	-16.59	0.0383*	4.44

Le tableau VI.8 donne les valeurs de l'effet, de la contribution, du *t-Student* et de P-value pour chaque paramètre. Il suffit de voir l'étoile en exposant devant le P-value d'un paramètre pour conclure que celui-ci possède un effet considérable sur le procédé de lixiviation. En effet, une valeur suffisamment faible indique que ce facteur possède une grande probabilité pour qu'il soit prédominant parmi les autres facteurs (*J.L. Goupy, 2005*). Pour notre cas de figure, la granulométrie et la température sont les facteurs les plus influents sur la lixiviation alcaline. De plus, la valeur de l'écart type est constante et faible pour tous les contrastes ; ceci indique que l'estimation de celles-ci est précise et fiable, avec une faible dispersion. En outre, le *t* de Student présente le rapport entre l'estimation du contraste et son écart type ; le facteur est d'autant plus influent que la valeur de celui-ci est grande. L'analyse des résultats, tableau VI.8 et Fig. VI.7, exhibe clairement l'effet prédominant de deux facteurs, à savoir la granulométrie et la température, avec une contribution similaire de ~ 20%. Ceci est en accord avec les résultats trouvés dans la littérature (*J.G.H. Du Preez et al. 1980 ; A.J. Mattus & A.E. Torma 1980*). La granulométrie est considérée comme étant un facteur ayant un effet négatif sur le procédé de lixiviation (*J. Souterou, 1965 ; IAEA TRS N°359, 1993*). Une granulométrie fine permet une bonne libération uranifère et facilite la mise en solution de l'uranium ; cependant, elle peut entraîner un grand problème au niveau de la filtration qui peut être ralentie, ainsi que la rétention inter-particulaire de l'uranium à cause des agglomérations du minerai. Quant à nos résultats, il suffit de regarder les effets engendrés par les interactions entre le paramètre granulométrie avec les autres paramètres, on trouve que tous ces effets sont négatifs et c'est l'effet Granulométrie qui l'emporte devant tous les autres effets. En plus de la bonne libération de l'uranium, la granulométrie agit directement sur la surface offerte pour le contact entre le solide et le solvant, contenant l'agent lixiviant ; un solide finement divisé exhibe une aire de contact considérable, ce qui facilite la lixiviation dans un temps relativement court ; en revanche, la graine avec une grande taille nécessite un temps relativement long pour extraire tout l'uranium qu'elle contient (*A. C. Patra et al., 2011*).

Quant aux deux autres facteurs, la concentration et le temps, bien qu'ils soient négatifs, leurs effets sont très faibles. Donc, les deux facteurs prédominants aident à vaincre les effets du temps et de la concentration. Du fait que nous avons travaillé dans un milieu de carbonate sans présence du bicarbonate, l'effet de la concentration en carbonate est négatif car il provoque une légère précipitation de l'uranium dissout à cause de la soude générée (*Mattus, Jr., A.J., 1978*). Cependant, comme il a été déjà indiqué, la majeure partie de la soude ainsi générée sera neutralisée par le bicarbonate produit par le procédé de lixiviation lui-même. En revanche, le résultat est un peu paradoxal, car nous savons très bien qu'une concentration très faible en agent lixiviant ne permet pas une bonne mise en solution du métal, idem pour le facteur temps ; ceci doit être lié aux plages de variation des deux paramètres choisies. En outre, Considérons les différentes interactions calculées, celle de la température et de la granulométrie ($T*Gr$) est faible, contrairement à la théorie des alias qui stipule que deux facteurs ayant des effets importants, leur interaction est par conséquent forte également. De plus, le tableau montre que les deux facteurs dont l'effet est faible peuvent donner lieu à de fortes interactions, un résultat qui s'échappe de la règle de la théorie des alias (*J.L. Goupy, 2005*). En effet, ceci indique que chaque paramètre agit sur le procédé de lixiviation d'une

manière dépendante.

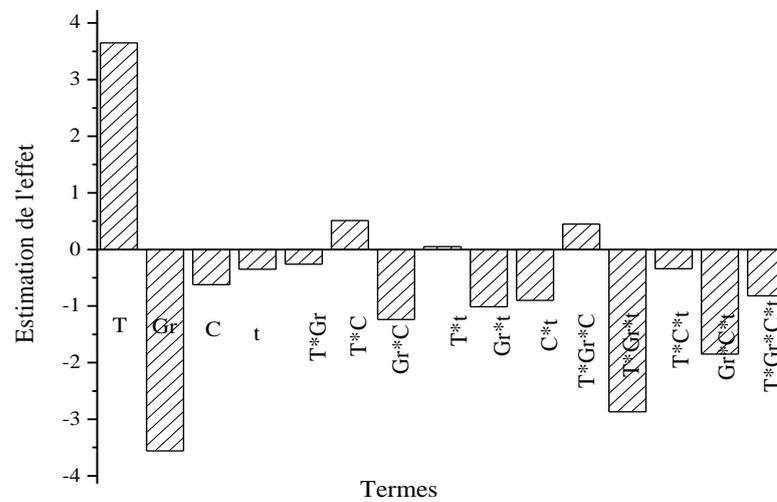


Fig. VI.7. Diagramme à barres des contrastes

Le diagramme de Pareto, Fig. VI.8, permet une bonne comparaison entre les différents facteurs, dans le but de choisir ceux qui sont les plus importants, et éliminer les autres. Ce diagramme est seulement préconisé, dans le cas où nous avons une ambiguïté quant au choix des facteurs prédominants ; notamment dans le cas des effets aliésés avec des interactions d'ordre deux, plans fractionnaires.

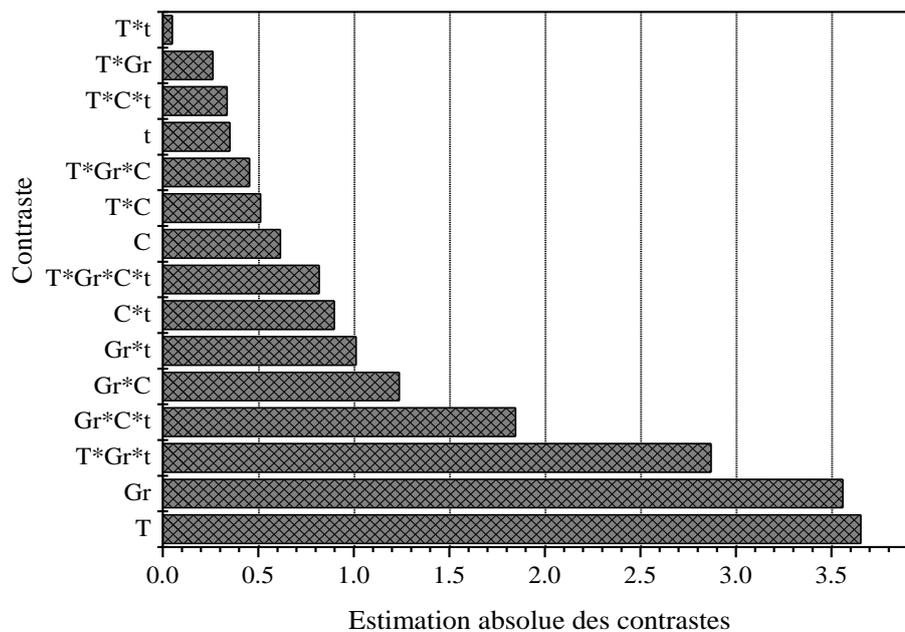


Fig. VI.8. Diagramme Pareto des effets

VI.5.3. Modélisation des résultats

VI.5.3.1. Modèle mathématique

La modélisation des résultats expérimentaux consiste à construire un modèle qui permet de représenter ces résultats et pouvoir les reproduire avec une erreur tolérable. Nous avons opté pour la méthode des moindres carrés standard comme étant la méthode d'analyse statistique, en tenant compte de tous les facteurs. Ayant quatre (04) facteurs prenant chacun deux niveaux, le modèle du premier degré avec interactions est suffisant pour expliquer les résultats. Il convient un plan complet 2^4 ; le modèle mathématique est donné par l'équation VI.6.

$$\begin{aligned}
 U_{\text{extrait}} (\%) = & 85,2268 + 3,6531 \left(\frac{T-105}{35} \right) - 3,5593 \left(\frac{Gr-225}{75} \right) - 0,6156 \left(\frac{C-0,12}{0,04} \right) - 0,3518 \left(\frac{t-2,5}{1,5} \right) - \\
 & 0,263125 \left[\frac{\left(\frac{T-105}{35} \right) * (Gr-225)}{75} \right] + 0,510625 \left[\frac{\left(\frac{T-105}{35} \right) * (C-0,12)}{0,04} \right] - 1,236875 \left[\frac{\left(\frac{Gr-225}{75} \right) * (C-0,12)}{0,04} \right] + \\
 & 0,0493 \left[\frac{\left(\frac{T-105}{35} \right) * (t-2,5)}{1,5} \right] - 1,0106 \left[\frac{\left(\frac{Gr-225}{75} \right) * (t-2,5)}{1,5} \right] - 0,8968 \left[\frac{\left(\frac{C-0,12}{0,08} \right) * (t-2,5)}{1,5} \right] + \\
 & 0,4543 \left[\frac{\left[\frac{\left(\frac{T-105}{35} \right) * (Gr-225)}{75} \right] * (C-0,12)}{0,04} \right] - 2,8693 \left[\frac{\left[\frac{\left(\frac{T-105}{35} \right) * (Gr-225)}{75} \right] * (t-2,5)}{1,5} \right] - \\
 & 0,3356 \left[\frac{\left[\frac{\left(\frac{T-105}{35} \right) * (C-0,12)}{0,04} \right] * (t-2,5)}{1,5} \right] - 1,8456 \left[\frac{\left[\frac{\left(\frac{Gr-225}{75} \right) * (C-0,12)}{0,04} \right] * (t-2,5)}{1,5} \right] - \\
 & 0,8193 \left[\frac{\left[\frac{\left[\frac{\left(\frac{T-105}{35} \right) * (Gr-225)}{75} \right] * (C-0,12)}{0,04} \right] * (t-2,5)}{1,5} \right]
 \end{aligned} \tag{VI.6}$$

Il y a donc 16 coefficients, le logiciel calculera le coefficient constant, les effets principaux et les différents groupes d'interactions. Si les groupes d'interactions sont faibles, on pourra les ignorer. Si les groupes sont forts, on ne pourra pas les éliminer et l'interprétation deviendra plus difficile ; il faudra alors faire appel à la théorie des aliases et à de nouvelles hypothèses d'interprétation (*J.L. Goupy, 2005*).

Cette modélisation est un simple outil permettant de connaître les paramètres qui risquent d'avoir le plus d'influence sur le procédé étudié ; et il ne s'agit pas seulement d'une

modélisation permettant d'effectuer des prévisions.

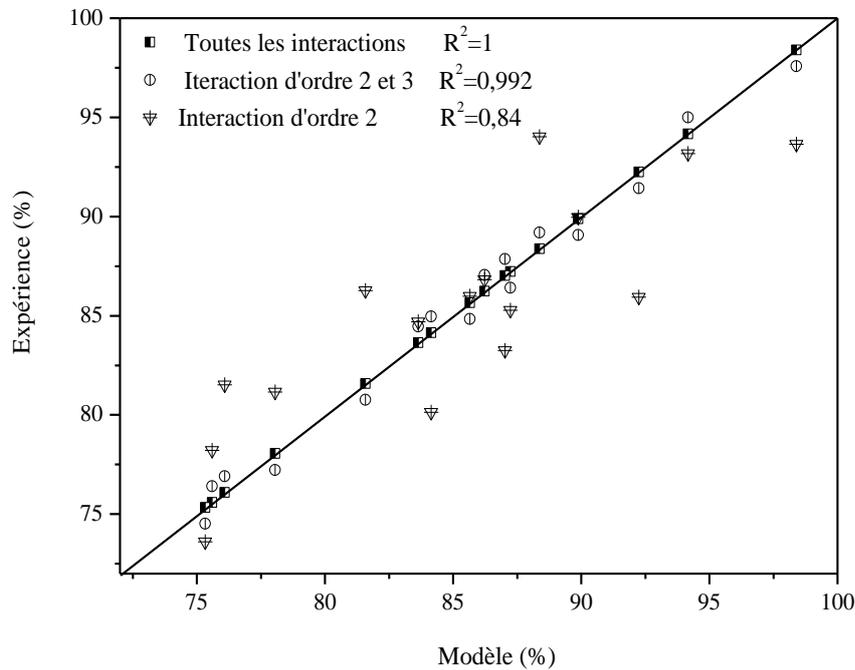


Fig. VI.9. Comparaison des résultats expérimentaux avec ceux issus du modèle

La figure VI.9 montre la distribution des points expérimentaux, taux de lixiviation, et les points du modèle par rapport à la première bissectrice ; et ce pour trois cas : modèle avec toutes les interactions, modèle avec interactions d'ordre deux et trois, et modèle avec seulement interactions d'ordre deux. Nous remarquons que le facteur de corrélation est parfait pour les deux premiers cas, ce qui indique que le modèle est représentatif de l'expérimentation. Quand on élimine les interactions d'ordre trois, le modèle devient moins représentatif. Donc, il faut inclure au moins les interactions d'ordre deux et trois. En revanche, ceci illustre davantage notre constatation, concernant l'interdépendance des effets des différents facteurs.

VI.5.3.2. Profileur de prévision

Il est bien révélé que le taux de lixiviation élevé est obtenu, quand le facteur Température est réglé à son niveau supérieur et celui de Granulométrie à son niveau inférieur, Fig. VI.10. Quant à la concentration et le temps, les deux ne présentent pratiquement aucune influence sur le taux de lixiviation dans l'intervalle étudiée, en particulier la limite inférieure de la concentration et la limite supérieure du temps.

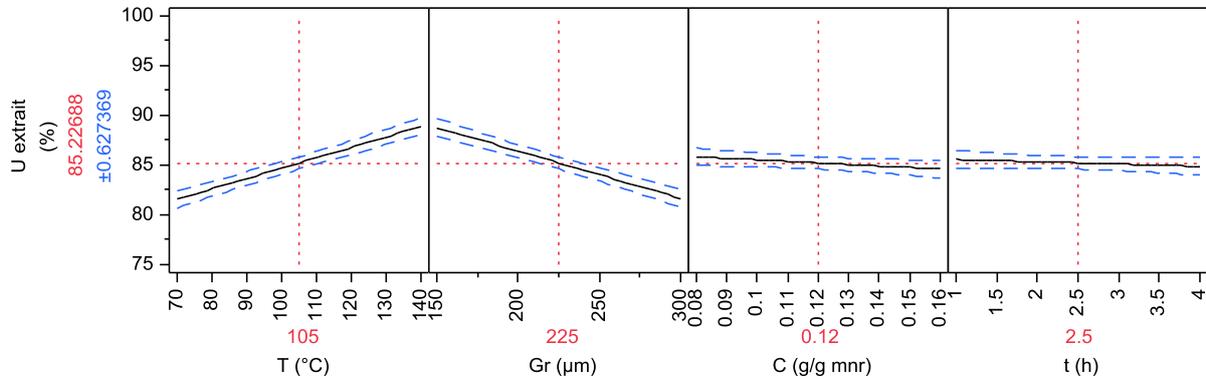


Figure IV.10. Diagramme des effets des différents facteurs sur le taux de lixiviation

VI.5.3.3. Profils d'interactions

Les effets des différentes interactions sur le taux de lixiviation sont regroupés dans la figure VI.11. Quand les droites sont en parallèles, cela signifie que l'interaction est très faible, voir inexistante (*J.L. Goupy, 2005*). On remarque que toutes les droites sont pratiquement en parallèles, sauf celles qui correspondent aux interactions du facteur Concentration avec les autres facteurs et facteur temps avec granulométrie en plus de la concentration. Concernant la température, le taux de lixiviation augmente à mesure que la granulométrie diminue ; cependant, celui-ci est pratiquement constant quand le temps ou bien la concentration changent. Il est à rappeler que le niveau supérieur de la température favorise un taux de lixiviation élevé dans tous les cas par rapport au niveau inférieur. Une granulométrie fine donne lieu à un taux de lixiviation élevé, quand la température augmente et un taux pratiquement constant et indépendant des deux autres paramètres, temps et concentration. Ces deux derniers présentent de fortes interactions avec les deux premiers paramètres et favorise l'extraction du métal, quand ils sont réglés à leur niveau supérieur et les facteurs influents sont réglés à leur niveau optimale, supérieur pour la température et inférieur pour granulométrie. Donc, ceci nécessite d'avoir un compromis, pour les valeurs optimales, afin d'assurer un taux de lixiviation très élevé, voir proche de 99%.

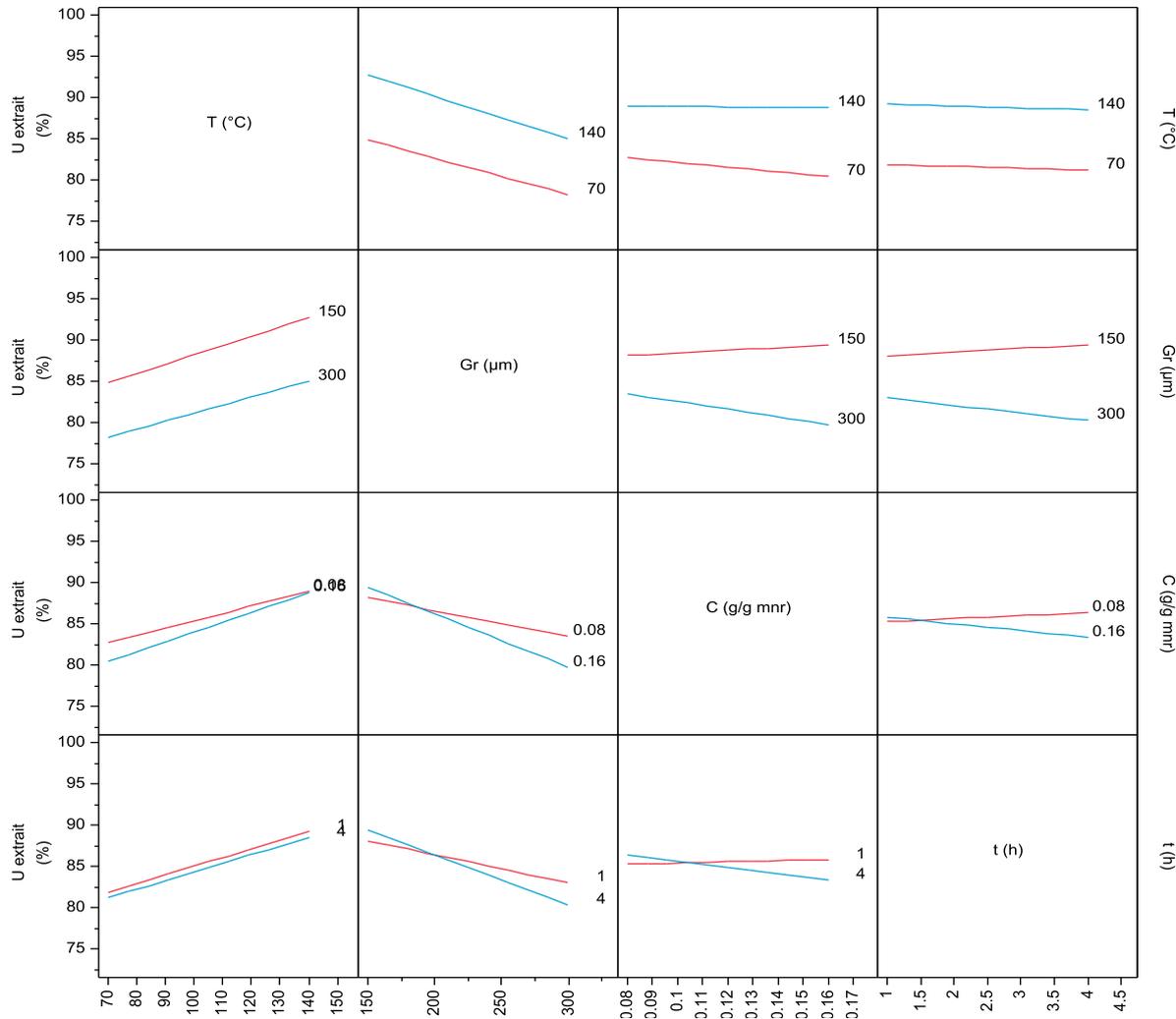


Fig. VI.11. Profils d'interaction

VI.5.3.4. Profileur d'isoreponse

La courbe d'iso-réponse, Fig. VI.12, indique la gamme de température et de granulométrie (les deux facteurs les plus influents), dans laquelle l'objectif du taux de lixiviation est atteint. Nous avons opté pour un taux de lixiviation proche de ~98% ; la figure ci-dessous montre que ce but peut être réalisé. L'extrapolation en dehors du domaine d'étude indique, quand pourrait-on améliorer davantage le taux de lixiviation ; cependant, ceci reste à confirmer via l'expérience.

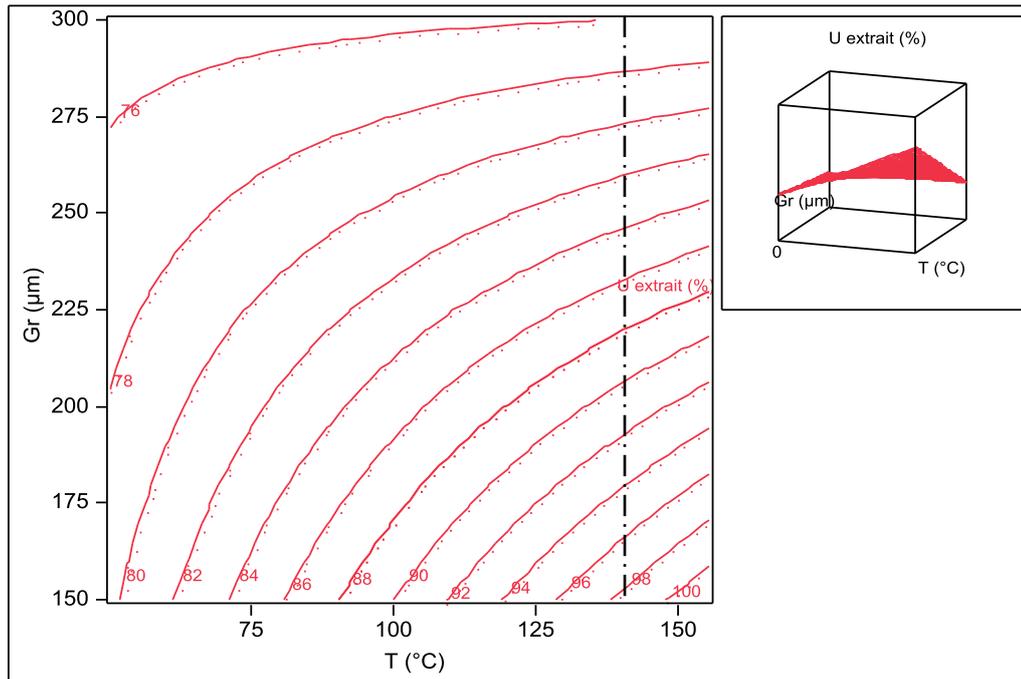


Fig. VI.12. Profileur d'isoréponses : $t = 4\text{h}$, $C = 0,16\text{g/g}$ de minerai.

VI.6. Conclusion

L'étude de l'effet des différents paramètres sur la lixiviation alcaline, révèle que les paramètres, dont l'effet est important, sont bien la température et la granulométrie ; l'effet positif de la température aide à vaincre l'effet négatif de la granulométrie. Bien que le temps et la concentration aient été soulevés, comme étant des facteurs faibles et négatifs, ces derniers présentent des interactions importantes avec les deux autres facteurs et doivent être pris en considération lors de la modélisation des résultats expérimentaux. Un taux de lixiviation élevé est obtenu en réglant tous les paramètres au niveau supérieur, et celui de la granulométrie au niveau inférieur. En outre, Le modèle représente au mieux les résultats expérimentaux et permet de les reproduire avec exactitude dans le domaine d'étude.

Le minerai de Timgaouine est un minerai relativement difficile à traiter ; l'expérience montre que la mise en solution de l'uranium de ce minerai par voie alcaline est pratiquement une tâche laborieuse et nécessite des moyens colossaux en termes de broyage et d'opération sous pression.

CONCLUSION

CONCLUSION

L'objectif de cette étude a consisté à trouver la meilleure récupération de l'uranium par la méthode des plans d'expériences, concernant la concentration d'agent lixiviant (Na_2CO_3), de la granulométrie, de la température et du temps, conduisant à une bonne récupération de l'uranium. Ce travail a permis aussi de vérifier l'effet de chaque facteur et celle de l'interaction sur l'extraction de ce dernier.

L'étude expérimentale a été réalisée à l'échelle laboratoire, au niveau de centre de recherche nucléaire de Draria, (Laboratoire de recherche en génie des procédés).

Les essais de lixiviation ont été effectués en trois étapes. Dans la première phase, une série d'essais préliminaires a été réalisée sur des échantillons de teneurs différentes. Ces essais ont permis une limitation des intervalles de la concentration en carbonate et la taille moyenne des particules utilisés comme base pour l'étape prochaine (filtration). Dans une autre phase, des essais de lixiviation ont été réalisés, sur la base des résultats obtenus précédemment (première phase), tout en vérifiant et assurant quelque résultat obtenu par les publications ultérieures.

Les résultats de la seconde phase ont fait l'objet d'une opération de leurs traitements par la méthode des plans d'expérience, en utilisant un logiciel important (JMP8.0), afin de déterminer la loi de récupération relative à ce gisement.

Cette approche devait permettre de déterminer assez rapidement les rendements uranium de chaque opération de traitement.

La planification des expériences avait pour objectif de mettre en évidence les anomalies par un maximum de redondances dans les informations produites. Un certain nombre d'anomalies ont effectivement été identifiées. Cependant, quelques erreurs ont été commises par manque d'expérience dans le domaine expérimental. Les problèmes et anomalies rencontrés, ainsi que les propositions de correctifs sont présentés ci-dessous :

Le minerai Timgaouine est un minerai relativement difficile à traiter ; l'expérience montre que la mise en solution de l'uranium de ce minerai par voie alcaline est pratiquement une tâche laborieuse et nécessite des moyens colossaux en termes de broyage et opération sous pression.

L'impact de la T (température) sur la cinétique de mise en solution de l'uranium a été sous-estimé dans les essais réalisés. Il semble qu'une T, en de hors de l'intervalle proposé, ralentisse la cinétique. Il faudra donc porter une attention particulière à ce facteur lors de futurs essais, pour demeurer dans le domaine précis de la température.

Le dosage de l'uranium dans les solutions s'est révélé le problème majeur du projet. Il serait essentiel d'approfondir l'effet du carbonate seul sur les mesures et de vérifier si la présence d'auto génération de carbonate apporte une interférence différente. D'autre part La préparation de standards à partir d'une solution d'uranium pur et la contamination contrôlée de ceux-ci devraient permettre d'éclaircir la problématique du titrage de l'uranium

Le fait de ne pas éliminer le sodium dans les solutions a limité l'analyse de l'uranium par ICP (interférence ionique). Il serait donc bénéfique de prévoir la prise d'échantillons de solution et l'analyse de ces éléments en limitant la perturbation des réactions occasionnées par un échantillonnage trop fréquent.

Dans le but d'obtenir des échantillons plus uniformes d'un test à l'autre, les échantillons pour une granulométrie donnée devraient être concassés, puis homogénéisés avant d'être séparés de nouveau pour les tests subséquents. De cette manière, la concentration d'alimentation des différents éléments présents dans les séries d'échantillons serait théoriquement plus uniforme qu'une division à partir d'échantillons de granulométrie grossière (erreur fondamentale) et faciliterait l'analyse de la variation du rendement.

BIBLIOGRAPHIE

BIBLIOGRAPHIE

- [1]. -/ *Louis PATARIN, le cycle du combustible nucléaire, 2002, ISBN : 2-86883-620-8.*
- [2]. -/ *SOUDARIKOV, technologie de l'Uranium 1972.*
- [3]. -/ *Y.M. STERLIN, Métallurgie de l'uranium.*
- [4]. -/ *T.HARRINGTON, hydrométallurgie de l'uranium 1970.*
- [5]. -/ *CEA, le cycle du combustible nucléaire 2002, ISSN : 1637-5408.*
- [6]. -/ *F. Veglio Hydrometallurgy. 1974.1985.1994.199.2002.2004.*
- [7]. -/ *AIEA Vienne .Processing of Low- Grade Uranium Ores.1970.*
- [8]. -/ *Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, 15[1] pp. 50~55 (January 1977).*
- [9]. -/ *Jacque Goupy. Lee Creighton ,Introduction aux plan d'experience 2005,ISBN 2100497448*
- [10]. -/ *Brahim Meftah, Outlook of Nuclear Energy in Algeria, IAEA-CN-164-1S02.*
- [11]. -/ *David R. Lide, CRC Handbook of Chemistry and Physics, 2009, ISBN 978-1-420-09084-0.*
- [12]. -/ *Uranium appauvri: sources, exposition et effets sur la santéOMS 2001.*
- [13]. -/ *Arfsten DP et al. 2001, Toxicology in Health, 17 5610.*
- [14]. -/ *Depleted Uranium: Sources, Exposure and Health Effects - Full Report, Geneva 2001.*
- [15]. -/ *V. V. Shatalov, S. A. Pirkovskii,, Atomic Energy, Vol. 102, No. 2, 2007.*
- [16]. -/ *C R Edwards; A J Oliver, JOM; Sep 2000; 52, 9; ABI/INFORM Trade & Industry*
- [17]. -/ *Edward R. Landa, US Geological Survey, January 2004*
- [18]. -/ *C. DEPTULA and S. MINC, January 1966*

ANNEXE

Mesures préventives relative aux pathogènes pour les travailleurs manipulant des minerais uranifères
(Tableau 10.4 du Guide sur la valorisation des matières résiduelles)

Vaccination	Programme régulier d'immunisation s'appliquant à tous les travailleurs.
Équipement de protection	<ul style="list-style-type: none"> ➤ Salopette ou combinaison jetable. ➤ Visière de protection (lorsque la nature des travaux l'exige) ¹. ➤ Savon antiseptique sans eau (volatil) ou serviettes nettoyantes jetables (de type Wet-Ones®). ➤ Présence, à proximité des aires d'épandage, d'une trousse de premiers soins conforme aux exigences du <i>Règlement sur les services de premiers soins</i>.
Mesures d'hygiène	<ul style="list-style-type: none"> ➤ Porter un équipement de travail propre. ➤ Éviter de se frotter les yeux et la bouche ou de porter les mains au visage. ➤ Se laver fréquemment les mains au cours d'une journée (conformément aux indications du CLSC), principalement avant de manger, de boire et de fumer. ➤ Garder ses ongles courts. ➤ Ne jamais garder d'aliments, de boissons ou de tabac dans les poches de ses vêtements de travail. ➤ Ne pas épandre le vent « dans le dos », sauf avec des rampes munies de pendillards ou avec tout autre équipement qui réduit la dérive de bioaérosols par le vent. ➤ À la suite d'une coupure ou d'une lésion cutanée, désinfecter la blessure et la protéger afin d'éviter tout contact entre la partie blessée et les résidus. ➤ Laver les vêtements et l'équipement d'épandage qui ont été en contact avec la minéralisation. ➤ Ne jamais apporter ses vêtements de travail sales à la maison. Les déposer plutôt dans un sac de plastique et aviser la personne préposée au lavage. ➤ Prendre une douche à l'établissement de travail à la fin de la journée et se laver les cheveux.

¹ Le port d'un masque respiratoire n'est plus obligatoire. Afin que le port du masque soit efficace, il faudrait implanter un programme complet de protection respiratoire conformément à la norme CSA Z94.4-93 de l'ACNOR.

ANNEXE II

Modèle de registre d'échantillonnage

Mois : _____ Année : _____

Méthode d'échantillonnage¹ : _____

Identification de l'échantillon	Lieu	Date	Glacière (Temp.)	Heure	Types de résidus ²					Types d'analyses ³			Remarques ⁴	Préleveur	
					D	P	P/S	M	C	CO	CI	M			

¹ Méthode d'échantillonnage utilisée (adaptation conforme au *Protocole d'échantillonnage des matières résiduelles fertilisantes*).

² Types de résidus : D = désencrés, P = primaires, P/S = primaires-secondaires, M = mixtes (P/S + D ou autre, décrire le mélange), C = cendres.

³ Types d'analyses : CO = Analyses chimiques organiques; CI = Analyses chimiques inorganiques; M = Analyses microbiologiques.

⁴ Décrire les anomalies ou particularités pouvant avoir une incidence sur la qualité de l'échantillon et indiquer toute modification à la méthode d'échantillonnage.

Methode volumetrique du dosage de l'uranium par le vanadate d'ammonium

Principe :

Dans un milieu concentré en acide phosphorique, l'uranium peut être réduit de la valence VI à la valence IV par le fer (Fe^{2+}). L'excès en ion (Fe^{2+}) peut être oxydé par le nitrate de sodium dont l'excès est à son tour éliminé sous forme de gaz par l'urée ;



Réactifs:

Solution standard de l'uranium :

Peser 1,1792 g d' U_3O_8 , ajouter 10 ml d'acide chlorhydrique concentré ; 4 à 5 gouttes d'acide nitrique et chauffer jusqu'à ce que tout l' U_3O_8 se dissolve.

Après cela, dissoudre jusqu'à un volume de un litre. La solution ainsi obtenue est à 1 mg d'uranium / ml.

Solution titrante de vanadate d'ammonium :

Peser 0,2949 g de vanadate d'ammonium et humecter avec un peu d'eau. Ajouter ensuite 250 ml de la solution d'acide sulfurique (1:1) et dissoudre tout en agitant. Diluer jusqu'à un volume d'un litre avec de l'eau.

Solution de $(\text{NH}_4)_2\text{Fe}(\text{SO}_4)_2$ à 20%

Solution de NaNO_2 à 15%

Solution d'urée à 40%

Solution de H_3PO_4 à 1:2 : un volume d'acide pour deux volumes d'eau

Solution de H_2O_2 à 30%

Indicateur diphenylamine sulfonate de sodium à 0,2%, dans une solution de H_2SO_4 à 2%.

Cette solution peut être préparée avec le Baryum comme suit :

Ajouter 0,32 g de diphenylamine sulfonate de Baryum à 90 ml d'eau. Agiter et ajouter 0,5 g de Na_2SO_4 . Bien mélanger et laisser reposer jusqu'au lendemain. Filter et diluer le filtrat dans 100 ml d'eau.

Indicateur phénylanthranilic acide à 0,2% :

Peser 0,2 g de phénylanthranilic acide et 0,2 g de Na_2CO_3 . Dissoudre le tout dans 100 ml d'eau.

Standardisation de la solution de vanadate :

Dans un bécher de 200 ml, mettre 3 ml de la solution standard d'uranium, ajouter 25 ml d'eau, 2 ml de la solution $(\text{NH}_4)_2\text{Fe}(\text{SO}_4)_2$ à 20% ; 15 ml H_3PO_4 concentré et chauffer, refroidir ensuite jusqu'à la température ambiante. Ajouter goutte à goutte la solution de NaNO_2 à 15% jusqu'à ce que la couleur marron du complexe (Fe^{2+}) disparaisse. Ajouter immédiatement après 4 ml de la solution d'urée à 40%, agiter jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de bulles. Laisser reposer pendant 5 minutes. Après addition de 2:3 gouttes des indicateurs, titrer cette solution avec la solution de vanadate d'ammonium. Pour le virage, la couleur violette doit persister au moins 30 secondes. Calculer le titre de la solution de vanadate d'ammonium.

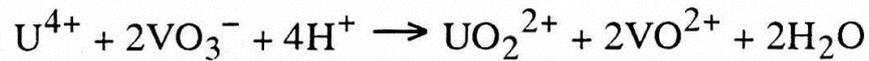
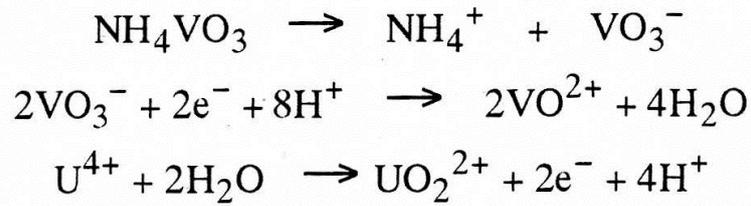
Procédure de dosage du minerai :

Peser 0.5 gramme de minerai dans un bécher en téflon de 50 ml, et humecter avec un peu d'eau. Ajouter 10 ml d' HF et évaporer à sec. Après avoir refroidit, ajouter 10 ml d' HCl concentré, 1 ml d' H_2O_2 . Attendre l'arrêt d'une réaction vigoureuse ajouter 10 ml d' H_3PO_4 concentré. Faire ensuite évaporer jusqu'à un volume de 12 ml environ. La solution obtenue doit être claire (dans le cas contraire, continuer l'évaporation jusqu'à ce que la solution s'éclaircit) . Verser cette solution dans un bécher en pyrex de 100 ml et ajouter H_3PO_4 (1 :2) jusqu'à un volume de 20 ml environ. Ajouter 2:4 gouttes de la solution de $(\text{NH}_4)_2\text{Fe}(\text{SO}_4)_2$ à 20% ; 1:3 gouttes de la solution de TiCl_3 jusqu'à l'apparition de la couleur violette (ajouter 1 :2 gouttes en excès). Après cela , ajouter goutte à goutte la solution de NaNO_2 à 15% jusqu'à ce que la couleur marron disparaisse. Verser tout de suite après 4 ml de la solution d'urée à 40%. Ajouter de l'eau jusqu'à un volume de 40 ml environ. Attendre tout en agitant jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de bulles . Laisser reposer encore 5 minutes. Ajouter 2:3 gouttes de l'indicateur coloré. Titer ensuite à l'aide de la solution standard de vanadate d'ammonium. Cette méthode peut être aussi utilisée pour les solutions de lixiviation pour lesquelles, on doit procéder comme pour la standardisation de la solution de vanadate d'ammonium.

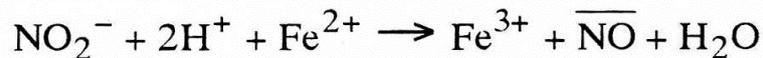
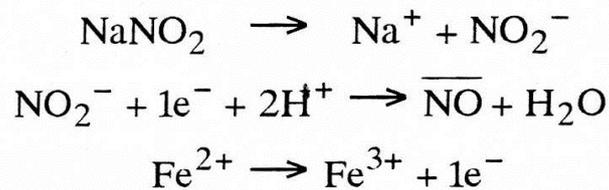
Dans ce protocole, le degré de finesse du broyage n'est pas indiqué. De ce fait, un broyage classique au moyen du broyeur à disque, entraîne lors du processus d'analyse des erreurs dues à une homogénéité insuffisante des échantillons.

Ce travail a permis l'amélioration de cette méthode d'analyse en précisant la granulométrie à laquelle doit être broyé l'échantillon avant l'attaque acide.

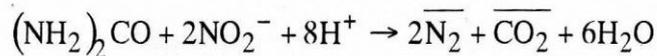
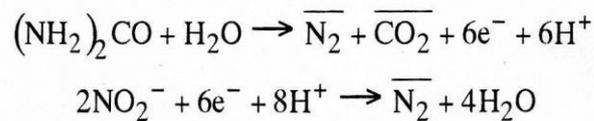
Réactions mise en jeu :



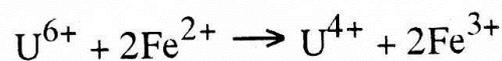
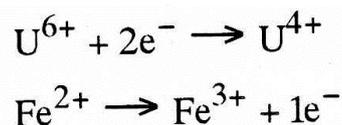
Oxydation de l'excès de Fe^{2+} par NaNO_2



Elimination de l'excès de NaNO_2 par l'urée :



Réaction d'oxydoréduction de l'uranium par le fer :



APPRECIATION DES RESULTATS - INCERTITUDES

rAprès réalisation d'un dosage ou d'une mesure, on sera donc en mesure de calculer la normalité puis la molarité d'une solution inconnue. Or toute mesure physique est entachée d'une certaine erreur. On doit donc calculer la marge supérieure de l'erreur entachant le résultat calculé.

A) Causes d'erreurs :

1) *Erreurs systématiques : elles peuvent être dues*

- *A la méthode utilisée :*

Exemples :

- Indicateur coloré virant avant la neutralisation. On pourra y remédier en changeant l'indicateur ou chiffrer l'erreur.
- Réaction incomplète. On essaiera de changer la méthode ou de chiffrer l'erreur.

- *Aux produits :*

Exemples :

- Produits impurs
- Produits souillés

- *Aux instruments et matériels :*

Exemples :

- Instruments défectueux : Balance dérégulée, burette sale ou mal calibrée. On pourra y remédier en étalonnant l'instrument.
- Mauvaise utilisation de l'instrument : La pesée sur une balance au 1/10 de mg se fera à $\pm 0,0001$ g près.
- Les pipettes sont calibrées avec une certaine tolérance. Lecture sur la burette.

2) *Erreurs fortuites :*

Imprévisibles, incontrôlables. Seul un grand nombre de mesures peut permettre de les réduire (Test de répétabilité). Elles peuvent être dues :

- *Aux manipulateurs :* Plus ou moins formé, plus ou moins concentré
- *Aux locaux :* Environnement de travail favorable
- *A l'équipement :*
- *A la matrice sur laquelle on travaille :* Eau, sol, air, milieux complexes, milieux vivants

B) Appréciation de la mesure dans les dosages volumétriques courants

En fait, on supposera que toutes les erreurs systématiques dues à la méthode ou à des produits et instruments défectueux sont éliminées et on ne calculera que la limite supérieure de l'erreur occasionnée par l'emploi des différents instruments.

1) *Pipettes jaugées*

Les pipettes jaugées sont livrées par le fabricant avec une tolérance sur les volumes qui est fixée par des normes (Cf. ci-dessus).

2) *Burettes*

Si on suppose que les burettes sont correctement étalonnées, les incertitudes sont dues aux lectures de graduation. On peut estimer que lors de la mise au zéro de la burette, on peut apprécier la demi division. De même lors de la lecture du volume : une demi division. Soit en tout : incertitude maximum sur le volume lu à la burette : 1 division.

APPRECIATION DES RESULTATS - INCERTITUDES

Exemple : si la burette est graduée en $1/20$ de cm^3 $V = 26,55 \pm 0,05 \text{ cm}^3$

3) Balance

Si la balance est graduée en $1/10$ de mg

Incertitude $1/2$ division lors de la mise au zéro

Incertitude $1/2$ division lors de la lecture

Soit une division = $0,0001 \text{ g}$

i4) Titre des solutions connues

Exemple : Soude $0,215 \text{ N}$ à $0,5\%$ près

$N = (0,215 \pm 0,005) \text{ N}$

Analyse par ICP

Torche à plasma (ICP)

Une autre technique très largement répandue pour l'analyse des métaux est la spectroscopie d'émission atomique par plasma à couplage inductif, plus connue sous le nom d'ICP-ES. Il s'agit ici d'une spectroscopie d'émission. L'excitation des niveaux électroniques et la génération des atomes et des ions est réalisée par un plasma nous verrons dans le détail les processus mis en jeu dans celui-ci.

Le plasma :

Les plasmas sont des gaz plus ou moins ionisés et électriquement neutres. Ils sont générés à haute température entre 7000 K et 15000 K. A partir de ces températures, on a un déplacement relativement libre des cations et des électrons.

Ces gaz gardent les propriétés mécaniques des gaz parfait mais ont une conductivité thermique et électrique plus élevée.

Le gaz le plus utilisé pour des raisons de coût, d'ionisation et de conductivité thermique est l'Argon.



L'argon a un potentiel d'ionisation très élevé de 15.76 eV. De ce fait tous les éléments possédant un potentiel d'ionisation plus faible seront ionisés dans le plasma. Pour générer un plasma et l'entretenir, il faut apporter une énergie importante.

Le plasma est généré dans une torche qui comporte trois tubes en quartz coaxiaux. Une bobine d'induction dans le haut de la torche est parcourue par un courant alternatif à haute fréquence (entre 5 et 100 MHz) Un flux d'argon tangentiel (tube externe) va permettre d'isoler, de refroidir la région proche des bobines et de donner la forme au plasma. Le gaz plasmagène est introduit dans le tube intermédiaire ce qui permet d'éviter tout contact proche de la bobine. L'ionisation de ce gaz est amorcée par une décharge électrique dans le bas de la torche. Puis les ions créés interagissent avec le champ magnétique (trajectoire circulaire) au niveau de la bobine d'induction ce qui crée des chocs et augmente la température (effet Joule) et maintient l'état de plasma (ionisation).

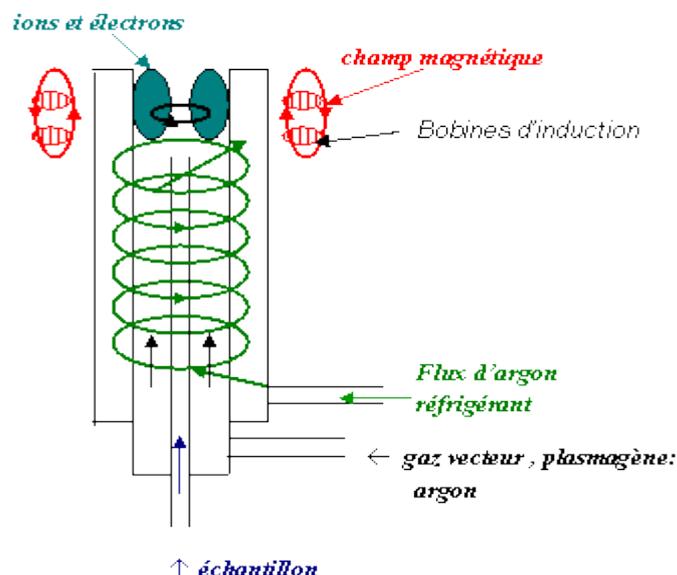
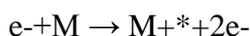
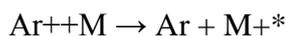


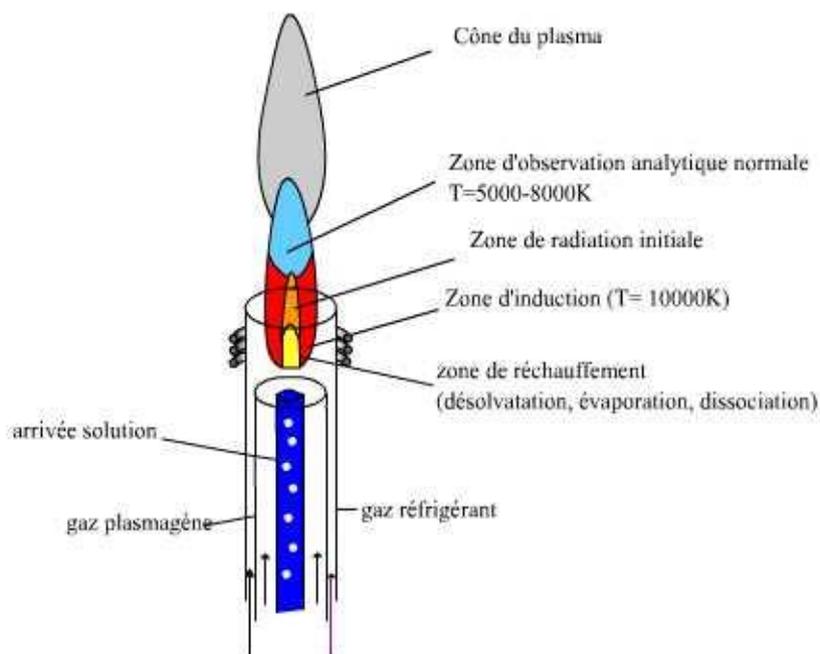
Schéma de la torche à plasma

L'échantillon préalablement nébulisé (à peu près identique à l'absorption atomique sauf que le gaz nébulisant est de l'argon) est introduit au centre du plasma. La température extrêmement élevée permet la désolvatation puis la volatilisation et l'atomisation des espèces comme dans le cas de la flamme mais avec beaucoup plus d'efficacité ici (pas de composés réfractaire). De plus la température atteinte permet l'ionisation de la plupart des atomes par chocs avec l'argon (Ar ou Ar+) ou des électrons :



On observe ensuite la désexcitation des ions ou atomes par émission de fluorescence.

L'excitation a lieu à certaine température seulement. Or le plasma présente un certain profil de température. Il y a donc différentes zones correspondants aux différents processus. Il y a une zone spécifique pour l'analyse de l'émission. : la zone d'observation analytique optimale.



Différentes zones dans la torche à Plasma

Interférences :

Interférences chimiques

Contrairement aux autres techniques : Absorption atomique en mode flamme et four graphite (électrothermique), la technique d'ICP ne présente pas ou très peu d'interférences chimiques. Les liaisons chimiques sont rompues au-delà de 6000 °C ce qui augmente considérablement la limite de détection de composés réfractaires.

Interférences dues à l'ionisation

Le plasma générant un important nombre d'électrons les interférences dues à l'ionisation sont la plupart du temps inexistantes. Cependant dans le cas de solution concentrées (NaCl, KCl...), elles deviennent significatives, un tampon d'ionisation peut alors être nécessaire, il est possible d'utiliser aussi la méthode des ajouts dosés.

Interférences spectrales

Déjà vue précédemment. Il est souvent possible de choisir une autre longueur d'onde d'analyse. Si vraiment rien ne marche, il faudra alors mettre en œuvre une analyse muticomposante à différentes longueurs d'onde.

Interférences physiques

Elles sont dues en général à une différence de nébulisation due à la matrice (viscosité, tension superficielle...). Elles nécessitent une correction soit par la méthode des ajouts dosés (ou une reconstitution de la matrice) soit par l'utilisation d'un étalon interne (avec un élément non présent dans la matrice). Toutes les intensités sont rapportées à cet étalon interne qui est ajouté en quantité constante dans toutes les solutions.

Tableau .Comparaison des interférences

	<i>AES-ICP</i>	<i>AAF</i>
Nature des éléments étudiés	métaux, alcalins et alcalino-terreux	plus varié avec les non-métaux
Interférences	chimiques: aucune ($T > 6000K$)	chimiques: formation d'oxyde mixte
	spectrales: grande perturbation (grande précision nécessaire)	spectrales: perturbation moindre (a-n-s)
Sensibilité de détection	grande sensibilité: ppb	plus faible sensibilité: ppm
Précision	0,3 à 2%	0,1 à 1%
Performance de l'appareil	dosage multiple simultané possible	dosage d'un seul élément à la fois

PRÉPAREZ ET ANALYSEZ VOS PLANS D'EXPÉRIENCES AVEC JMP®

JMP® est un logiciel de statistique élaboré par la société SAS Institute Inc. qui est particulièrement bien adapté pour la construction et l'analyse des plans d'expériences.

Il est conçu pour les ordinateurs personnels et possède des versions adaptées à Windows, Macintosh ou Linux. Il utilise une interface « pointer-cliquer », et son ensemble très complet d'outils statistiques permet la mise en forme, l'exploration et l'analyse des données expérimentales. Le présent chapitre est une courte introduction à JMP que l'on pourra compléter de la manière suivante :

- Allez sur le blog du livre : <http://www.plansdexpériences.com>. Vous y trouverez les exemples du livre accompagnés d'explications supplémentaires et des fichiers de données téléchargeables. Vous pourrez aussi télécharger un manuel d'introduction à JMP, en français, d'environ 80 pages.
- Si vous n'avez pas récupéré la documentation (version .pdf) au moment de l'installation de JMP, allez sur le site <http://www.jmp.com> sur lequel vous pourrez la télécharger.

–

En particulier, les guides *Design of Experiments* et *Statistics and Graphics Guide* fournissent de nombreux détails sur les ressources et l'utilisation de JMP.

Nous allons décrire les tâches principales que vous pourrez effectuer avec JMP, comme construire un plan d'expériences, choisir un modèle mathématique, interpréter les résultats expérimentaux, récupérer les sorties de JMP pour les utiliser dans d'autres logiciels ou pour les incorporer dans des documents.

Construire un plan d'expériences

Dans certaines situations, les plans sur mesure sont les mieux appropriés à l'étude entreprise. Le *Custom Designer* génère alors un plan optimal adapté à votre problème et à vos moyens comme les plans étudiés au cours de cet ouvrage.

Cependant, dans de nombreuses autres situations, les plans classiques (comme la plupart de ceux décrits dans ce livre) sont suffisants. Dans ce cas, on utilise d'autres moyens de construction de plans (*Screening Designer*, *Full factorial Designer*, *Response Surface Designer* et *Mixture Designer*). Nous allons voir successivement comment construire un plan avec le *Screening Designer* et le *Custom Designer*.

l'exemple, « Je maîtrise la consommation de ma voiture », qui est utilisé, exemple où la réponse est la consommation de carburant et où les facteurs sont la vitesse et la surcharge.

Screening Designer (plan de criblage classique)

- **Entrer les réponses**

Sélectionnez **DOE > Screening Design**. Lorsque la boîte de dialogue apparaît, double-cliquez sur le nom de la réponse, Y, et entrez **Consommation**.

ANNEXE IV

Response Name	Goal	Lower Limit	Upper Limit	Importance
Consommation	Maximize	.	.	.

Entrer les facteurs

Dans la rubrique **Factors**, entrez le chiffre 2 devant **Continuous** et cliquez sur le bouton **Add** pour introduire deux facteurs.

Name	Role	Values
X1	Continuous	-1 1
X2	Continuous	-1 1

Modifier le nom des facteurs

Double-cliquez sur X1 et modifiez-le en **Vitesse**. Entrez les niveaux bas (**80**) et haut (**120**) de la **Vitesse**. Répétez ces opérations pour la Surcharge. Cliquez sur le bouton **Continue** pour passer à la rubrique suivante.

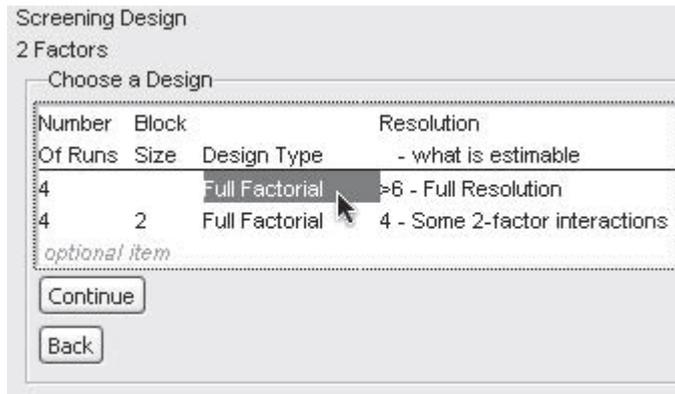
Name	Role	Values
Vitesse	Continuous	80 120
Surcharge	Continuous	0 300

Screening Design
Specify Factors
Add a Continuous or Categorical factor by clicking its button. Double click on a factor name or level to edit it.
Continue

Choisir le plan

JMP vous propose plusieurs plans classiques parmi lesquels vous pouvez choisir celui qui vous convient le mieux. Vous pouvez aussi choisir d'exécuter le plan en le subdivisant en blocs. Ici, choisissez le premier plan de la liste. Il possède 4 essais et n'a aucun bloc. Cliquez sur le bouton **Continue**.

ANNEXE IV



Construire le plan

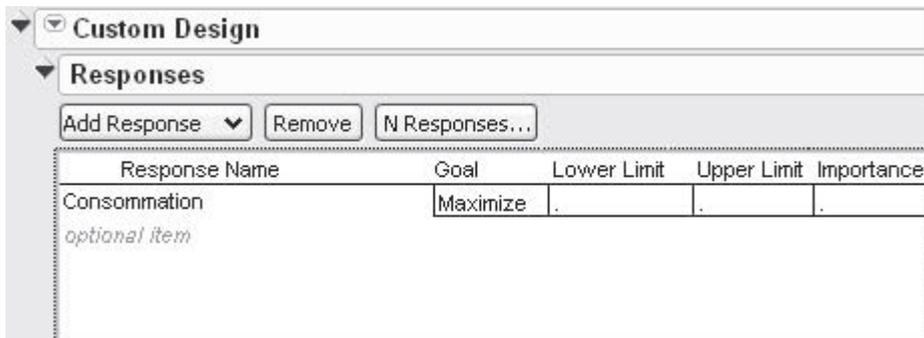
Cliquez sur le bouton **Make Table** pour générer votre plan sous la forme d'un tableau : les facteurs sont en colonnes et les essais en lignes. La colonne des réponses sera remplie après l'exécution des expériences pour pouvoir effectuer l'analyse des résultats.

	Pattern	Vitesse	Surcharge	Consommation
1	--	80	0	▪
2	+-	120	0	▪
3	-+	80	300	▪
4	++	120	300	▪

Custom Designer

Entrer les réponses

Sélectionnez **DOE > Custom Design**. Lorsque la boîte de dialogue apparaît, double-cliquez sur le nom de la réponse et écrivez Consommation.



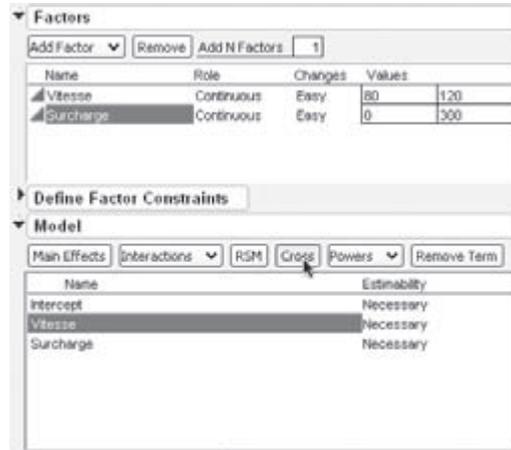
Entrer les facteurs

Puis cliquez sur le bouton **Add Factor** pour introduire un facteur. Choisissez **Continuous**. Indiquez le nom du facteur et ses niveaux. Répétez l'opération pour introduire le second facteur. Il faut ensuite préciser le modèle mathématique. JMP propose un modèle avec la constante et les facteurs principaux. Vous pouvez, si besoin est, ajouter les interactions et les puissances.

ANNEXE IV

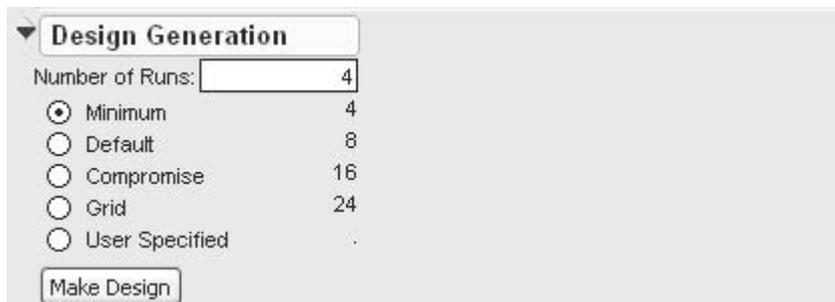
Indiquer les interactions

Pour entrer une interaction, surlignez le premier facteur concerné dans la rubrique **Factors**, et le second dans la rubrique **Model**, puis cliquez sur **Cross**. Si vous désirez simplement toutes les interactions d'un certain ordre, sélectionnez cet ordre grâce au bouton **Interactions** sans rien sélectionner d'autre. JMP écrira toutes les interactions.



Choisir le nombre d'essais

Le modèle étant spécifié, JMP vous propose plusieurs choix pour le nombre d'essais. Vous choisissez celui qui vous convient grâce aux boutons radio ou vous imposez le vôtre grâce à la case **Number of Runs**. Ici, vous mettez 4, le nombre d'essais de l'exemple. Cliquez sur **Make Design** pour générer le plan.

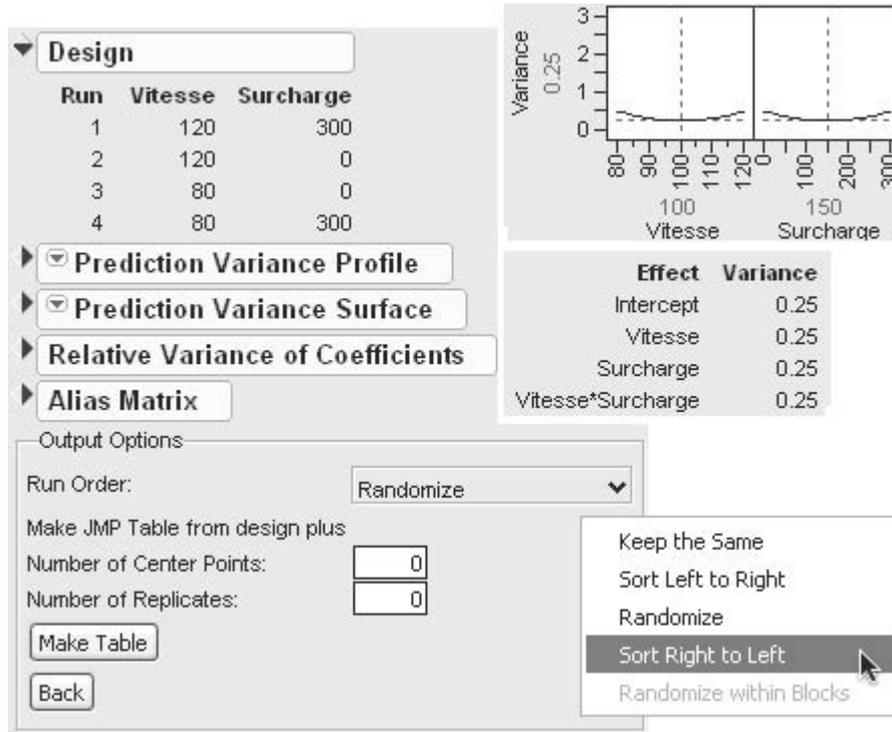


Propriétés du plan

Maintenant vous pouvez voir le plan et quatre rubriques qui contiennent des informations sur la qualité du plan. Deux de ces rubriques, **Prediction Variance Profile** et **Relative Variance of Coefficients**, sont illustrées ici.

Vous sélectionnez ensuite l'ordre des essais. **Randomize** est le choix par défaut. Ici, choisissez **Sort Right to Left** pour obtenir l'ordre de Yates. Cliquez sur le bouton **Make Table** pour générer votre plan sous forme de tableur.

ANNEXE IV



Plan

Le plan est affiché dans un tableau. Les facteurs sont en colonnes et les essais en lignes. La colonne des réponses sera remplie après l'exécution des expériences pour pouvoir effectuer l'analyse des résultats. Il n'y a pas de colonne **Pattern**.

The screenshot shows the JMP table interface. On the left, the column list includes:

- Custom Design
- Design: Custom Design
- Criterion: D Optimal
- Model
- Columns (3/0):
 - Vitesse *
 - Surcharge *
 - Consummation *

The main table displays the design data:

	Vitesse	Surcharge	Consummation
1	80	0	▪
2	120	0	▪
3	80	300	▪
4	120	300	▪

Le tableur de JMP

Lorsque vous cliquez sur **Make Table** vous obtenez un tableau. Il est divisé en deux parties : à gauche, il y a une zone d'informations, à droite, la grille des données.

ANNEXE IV

Zone de désélection

Nom des facteurs

Variables discrètes

Variables continues

Variable ordonnables

	popcorn	oil amt	batch	yield	trial
1	plain	little	large	8.2	1
2	gourmet	little	large	8.6	1
3	plain	lots	large	10.4	1
4	gourmet	lots	large	9.2	1
5	plain	little	small	9.9	1
6	gourmet	little	small	12.1	1
7	plain	lots	small	10.6	1
8	gourmet	lots	small	18.0	1
9	plain	little	large	8.8	2
10	gourmet	little	large	8.2	2
11	plain	lots	large	8.8	2
12	gourmet	lots	large	9.8	2
13	plain	little	small	10.1	2
14	gourmet	little	small	15.9	2
15	plain	lots	small	7.4	2
16	gourmet	lots	small	16.0	2

Numéro des essais

Zone d'information

La zone d'informations est divisée en plusieurs sections :

- La section située en haut, appelée **Tables**, indique le nom du fichier (ici *Popcorn*) ; elle contient un ou plusieurs scripts (ici, un seul script appelé *Fit Model*) et peut fournir d'autres informations sur le tableur.
- La deuxième section, appelée **Columns**, indique les colonnes du tableur et le type de chaque variable. Le type des variables est très important car il est pris en compte par le logiciel pour effectuer les bonnes analyses et les bons graphiques.

Il est possible de changer le type des variables en cliquant sur l'icône qui est située à gauche de l'intitulé de la colonne et en sélectionnant le type qui convient dans le menu qui apparaît. Trois options sont disponibles pour le type des variables : *Continuous* (désigne une variable continue par un triangle bleu), *ordinal* (facteur discret ordonnable illustré par un diagramme à barres vert dont les marches sont croissantes) et *nominal* (facteur discret illustré par un diagramme à barres rouge dont les marches sont irrégulières). Lorsque les variables sont de type *Continuous*, JMP prend la précaution de bien présenter les graphiques et les statistiques des facteurs continus. Il en est de même pour les variables *ordinal* et *nominal* qui gouvernent les graphiques et les statistiques correspondants.

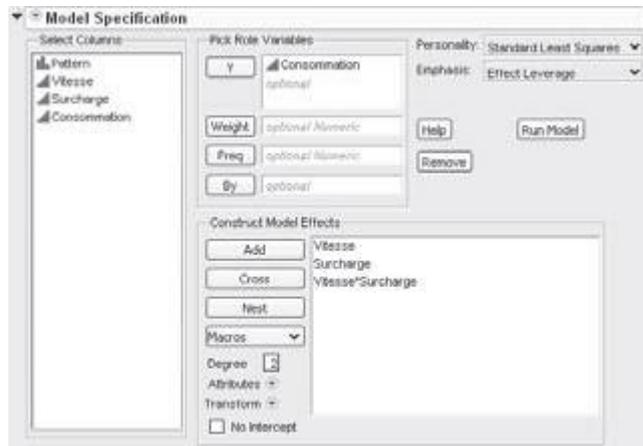
- La zone suivante, appelée **Rows**, donne des informations sur les lignes du tableur. Il est important de se souvenir, surtout lorsqu'on entre les données à la main, que chaque ligne du tableur représente un essai expérimental. Il en résulte que la réponse introduite par l'expérimentateur doit parfaitement correspondre à l'essai concerné.

Grille des données

Il s'agit du plan proprement dit représenté sous forme d'un tableur. Les facteurs sont disposés en colonnes et les essais expérimentaux en lignes. Les lignes et les colonnes peuvent être sélectionnées avec la souris. Pour désélectionner les lignes ou les colonnes, il faut cliquer dans la zone de désélection qui se trouve à gauche des titres de colonnes. Si l'on clique au-dessus de la diagonale, on désélectionne les colonnes et, si l'on clique au-dessous de la diagonale, on désélectionne les lignes. On peut aussi ajouter ou supprimer des lignes ou des colonnes.

Choisir et utiliser un modèle

Si vous avez construit votre plan à la main ou si vous voulez rester maître de votre analyse, vous devez remplir vous-même la fenêtre de modélisation.



Surlignez la (ou les) réponse(s) dans la plage **Select Columns** et cliquez sur le bouton **Y** qui se trouve dans la plage **Pick Role Variables**. Vous pouvez aussi utiliser le « tirer-déposer » en prenant le nom d'une réponse et en le déposant dans la plage voulue.

– Surlignez le (ou les) facteur(s) dans la plage **Select Columns** et cliquez sur le bouton **Add** qui se trouve dans la plage **Construct Model Effects**.

– Si vous voulez ajouter des interactions au modèle, surlignez les facteurs impliqués dans l'interaction dans **Select Columns** et cliquez sur le bouton **Cross**. Pour sélectionner plusieurs facteurs en même temps, maintenez appuyée la touche Control (Windows et Linux) ou (Macintosh) puis cliquez sur le nom des facteurs.

– Après avoir introduit les facteurs, les réponses, défini le modèle et choisi l'analyse statistique, cliquez sur le bouton **Run Model** pour lancer les calculs de l'analyse statistique.

Voici quelques conseils supplémentaires pour utiliser au mieux la boîte de dialogue *Fit Model* :

– Pour enlever un facteur du modèle, double-cliquez sur ce facteur. Vous pouvez aussi sélectionner le facteur et cliquer sur le bouton **Remove**.

– Contrairement à beaucoup de boîtes de dialogue de JMP, la boîte *Fit Model* ne disparaît pas après avoir cliqué sur **Run Model**. Cela vous permet d'examiner successivement plusieurs modèles. Les résultats d'un premier modèle guident votre analyse vers un autre modèle peut-être meilleur. Par exemple, si vous constatez qu'un modèle de plan complet possède des termes d'interaction qui sont négligeables, vous pouvez les retirer du modèle et relancer l'analyse en utilisant le bouton **Run Model**.

– Certains modèles sont fréquemment utilisés. Par exemple, si vous avez trois facteurs A, B et C, et si vous désirez faire l'analyse avec le modèle ayant toutes les interactions, il serait pénible d'entrer toutes les interactions car il faudrait sélectionner beaucoup de colonnes et effectuer de nombreux clics. Ces manœuvres sont simplifiées par l'utilisation du menu **Macros** qui propose les modèles les plus courants. Par exemple, pour entrer un modèle polynomial complet pour trois facteurs, commencez par sélectionner les trois facteurs dans la plage **Select Columns** et cliquez sur **Macros > Full Factorial** ou sur **Macros > Factorial Sorted**. Vous obtiendrez directement un modèle comprenant les facteurs principaux, toutes les interactions d'ordre deux et l'interaction d'ordre trois. De même, **Factorial to degree** fournit un modèle avec tous les facteurs et toutes les puissances jusqu'à celle spécifiée dans le champ **Degree** situé sous le menu **Macros**. Par défaut le degré est 2.

– Le menu **Attributes** permet de définir la nature des facteurs. Dans le livre, nous avons rencontré deux facteurs de natures différentes : les facteurs de mélanges (**Mixture**) (la somme des

ANNEXE IV

concentrations est égale à l'unité) et les facteurs pour surface de réponse (**Response Surface**) dont les valeurs sont utilisées pour découvrir des maxima et/ou des minima de la réponse. Le moyen le plus simple de construire les modèles correspondants est d'employer le menu **Macros**. Si vous avez des facteurs qui doivent être analysés comme ceux des modèles pour surface de réponse, sélectionnez-les et cliquez sur **Response Surface** du menu **Macros**. Tous les termes principaux, toutes les interactions d'ordre 2 et tous les termes de puissance seront automatiquement ajoutés. Cela est également vrai pour les facteurs de mélanges.

– Par défaut, JMP centre tous les facteurs. Ce centrage est utile pour certaines analyses statistiques. Cependant, dans le domaine des plans d'expériences, il est préférable d'employer des données non centrées. Pour lancer une analyse avec des variables non centrées, cliquez sur le triangle rouge situé à gauche de **Model Specification** et décochez **Center Polynomials**. Pour être sûr de toujours obtenir des analyses avec des facteurs non centrés, à partir du menu principal, suivez le chemin **File/Preferences/Platforms/Model Dialog** et, dans les options, décochez **Center Polynomials [default on]**.

En haut et à droite de la boîte de dialogue *Fit Model*, il y a deux listes déroulantes dénommées **Personality** et **Emphasis**. Si vous obtenez un rapport d'analyse qui ne vous convient pas lorsque vous cliquez sur le bouton **Run Model**, vérifiez les indications de ces deux listes :

– Les indications de **Personality** indiquent les méthodes d'analyses statistiques qui vont être effectuées par JMP. Il apparaît, par défaut, des sélections basées sur le type des facteurs. Dans ce livre, la plupart des exemples utilisent des variables continues et l'analyse correspondante est la régression basée sur le critère des moindres carrés, soit une personnalité **Standard Least Squares**. D'autres options comme **Stepwise** ou **Manova** sont également prévues pour des variables continues et peuvent être choisies à l'aide de cette liste déroulante. Les analyses **Nominal Logistic** (régression logistique pour variables discrètes) et **Ordinal Logistic** (régression logistique pour variables ordinales) sont des choix par défaut d'autres types de variables. Elles ne sont pas abordées ici.

– Les indications de **Emphasis** indiquent les résultats d'analyses qui seront présentés. Le choix effectué ne modifie pas les calculs mais la présentation et le type de sorties. Il y a trois genres de présentation : **Effect Leverage** qui fournit les graphiques et les rapports concernant les coefficients et l'influence de chaque facteur sur la réponse, **Effect Screening** qui est conçu pour les plans ayant beaucoup de facteurs et pour lesquels l'intérêt réside dans la découverte des facteurs influents, **Minimal Report** qui sert quand on souhaite n'obtenir que des résultats numériques sans graphiques. Dans toutes les situations, il est possible de demander à JMP des analyses supplémentaires quelle que soit la personnalité choisie.