

①⑨ RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
PARIS

①① N° de publication : **2 580 194**
(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)

②① N° d'enregistrement national : **86 05266**

⑤① Int Cl⁴ : B 02 C 23/08, 1/02; C 01 B 31/36.

①②

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②* Date de dépôt : 14 avril 1986.

③① Priorité : CA, 15 avril 1985, n° 479.149.

④③ Date de la mise à disposition du public de la
demande : BOPI « Brevets » n° 42 du 17 octobre 1986.

⑥① Références à d'autres documents nationaux appa-
rentés :

⑦① Demandeur(s) : *GOUVERNEMENT DU QUEBEC*. — CA.

⑦② Inventeur(s) : Rémi Tremblay.

⑦③ Titulaire(s) :

⑦④ Mandataire(s) : S.A. Fédit-Loriot.

⑤④ Concentration du carbure de silicium.

⑤⑦ Selon l'invention on traite une matière première à base de
carbure de silicium, après l'avoir préalablement concassée et
broyée, par séparation en milieu dense, notamment compre-
nant du ferrosilicium ou de la magnétite suspendue dans l'eau.
On obtient un concentré de carbure de silicium sans avoir à
passer par l'étape de tri manuel.

FR 2 580 194 - A1

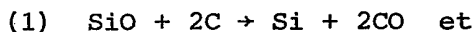
Concentration du carbure de silicium.

L'invention concerne un procédé de concentration de carbure de silicium. Plus précisément, l'invention se rapporte à un procédé de purification du carbure de silicium, par séparation de carbure de silicium en éliminant ses principales impuretés, le carbone et la silice. Cette séparation s'effectue gravimétriquement en milieu dense.

On produit normalement le carbure de silicium par voie pyrométallurgique dans des fournaies à résistance électrique. Ces dernières mesurent habituellement environ 3,65 m (12 pieds) de largeur par 10,67 m (35 pieds) de longueur. Une fournaie consiste en un mur d'environ 1,22 m (4 pieds) de hauteur en brique réfractaire. Ce mur relie deux murs perpendiculaires qui forment les deux bouts de la fournaie. Ces deux extrémités sont les électrodes. La charge, de silice, par exemple, de Saint-Canut (Indusmin), de matériel recyclé, et de coke de charbon est préparée par pesage automatique et mélangeage pour être ensuite amenée à la fournaie par convoyeurs. Quand la fournaie est remplie à moitié, le chargement est arrêté. Une dépression est façonnée dans la charge d'une électrode à l'autre. La dépression est ensuite remplie de coke de pétrole qui servira de noyau de résistance. Le chargement est alors poursuivi jusqu'à ce que la

fournaise soit remplie [environ 3,05 (environ 10 pieds)]. Il y a environ 70 tonnes par charge, ce qui donne de 6 à 12 tonnes de carbure acceptable. Une puissance électrique de 2000 kw est ensuite appliquée.

5 La réaction est en deux étapes :



10 Le chauffage dure pendant 1,5 jours. Le refroidissement se fait dans environ 2 jours. A ce stage, la charge est formée d'une couche de matériel non convertie (firesand), renfermant un cylindre compact d'environ trois pieds de diamètre reliant les deux électro-

15 des. Le cylindre est constitué, radialement à partir de la surface vers le centre, d'une couche extérieure de 5,08 cm (2 pouces) contenant 30 à 50 % SiC, d'une couche de 15,24 cm (6 pouces) de petits cristaux de carbures de 80 % à 96 % SiC, d'une couche de 15,24 cm

20 (6 pouces) de gros cristaux de carbures à 97 % SiC et d'un vide de 10,16 cm (4 pouces). Ce vide correspond à la résistance de coke de pétrole qui a brûlé.

Or, afin d'obtenir des concentrés à haute teneur en carbure de silicium, il s'agit en premier de

25 séparer la couche extérieure du noyau de carbure de silicium des couches intérieures. Cette couche grise est beaucoup moins cristallisée et ne contient qu'environ 30 % à 50 % de carbure de silicium. En second lieu, on doit séparer la partie moins pure de la deuxième couche à environ 80 % de SiC, afin de produire

30 un produit final à 97 % de SiC et moins que 0,45 % de carbone libre.

Afin d'obtenir un concentré de carbure de silicium on procède à des séparations manuelles des

35 trois couches et on ne retient que celle ou celles qui

renferme(nt) des concentrations désirées ou acceptables.

Il est évident qu'il y aurait intérêt à pouvoir avoir recours à un procédé automatique qui éliminerait les problèmes de main-d'oeuvre. En effet, 5 actuellement, la concentration du carbure de silicium est effectuée par un tri manuel dans toutes les usines qui existent dans le monde.

A la connaissance du demandeur, il n'existe 10 aucun brevet ni aucune autre référence relatif à un procédé permettant de concentrer le carbure de silicium autrement que par des étapes manuelles.

C'est donc un objet de la présente invention de faciliter la concentration du carbure de silicium 15 par un procédé soi-disant automatique.

Un objet de l'invention réside dans la concentration du carbure de silicium à partir d'un concassé de matière première, en traitant cette dernière par séparation en milieu dense.

20 Plus précisément, l'invention réside dans un procédé de concentration de carbure de silicium, caractérisé par les étapes suivantes :

- a) On concasse une matière première renfermant du carbure de silicium, dans des conditions aptes à 25 dégager le carbone libre et à libérer le SiC.
- b) On tamise le produit concassé pour enlever les particules indésirables quant à la granulométrie et on recycle les particules indésirables aux fournaies.
- 30 c) On introduit le refus du produit tamisé dans un milieu dense et, par séparation en milieu dense, on obtient une fraction lourde et une fraction légère.
- d) On récupère la fraction lourde à haute concentra- 35 tion en carbure de silicium et l'on recycle la

fraction légère aux fournaies de production de carbure de silicium.

On peut concasser la matière première par tous moyens connus, ainsi que cela est bien connu
5 chez l'expert en ce domaine. On préfère cependant concasser au concasseur à mâchoires, bien que l'on puisse effectuer cette opération par autofrotage ou tout autre moyen connu.

De préférence, mais non obligatoirement, la
10 matière première est constituée d'un cylindre obtenu par chauffage dans une fournaie à résistance électrique d'une charge comprenant de la silice, du matériel recyclé et du coke de charbon.

Selon une réalisation préférée de l'invention,
15 l'on concasse la matière première à une granulométrie d'environ 9,5 mm, 12,7 mm ou 25,4 mm (3/8", 1/2" ou 1") ou toute autre valeur jugée utile par l'expert en ce domaine.

Habituellement, la matière première utilisée
20 renferme entre environ 85 % et 95 % de carbure de silicium.

Selon une réalisation préférée de l'invention, on tamise le produit concassé à une valeur comprise entre environ 25,4 mm et 6,35 mm (1" et 1/4") de pré-
25 férence à environ 9,5 mm (3/8").

Selon une réalisation préférée de l'invention, l'on tamise le produit concassé de façon à ce que l'on obtienne un refus qui renferme entre environ 88 % et 96 % de carbure de silicium.

Habituellement, le milieu dense possède une
30 densité qui se situe entre environ 2,2 et environ 3,0, par exemple, entre environ 2,3 et environ 2,8. De préférence, la densité du milieu dense se situe à environ 2,3.

35 Le milieu dense peut être quelconque, selon

les besoins.

De préférence, ce dernier comporte de l'eau et du ferrosilicium, ou de l'eau et de la magnétite, dont la densité est ajustée en fonction de la concentration
5 désirée de carbure de silicium dans le produit concentré.

De façon habituelle, on ajuste les paramètres afin que la fraction lourde analyse environ 97 % de carbure de silicium et 0,20 % de carbone libre.

10 En fin d'opération, il est recommandé de mener séparément la fraction lourde et la fraction légère sur un tamis vibrant de drainage d'où l'on fait recycler en tête de circuit le milieu dense extrait, comportant du ferrosilicium suspendu dans l'eau.

15 Après drainage, il est aussi recommandé de laver séparément à l'eau la fraction lourde et la fraction légère sur un tamis humide pour enlever le ferrosilicium restant, lui aussi recyclé en tête de circuit, après densification avec densificateur et/ou sépara-
20 teurs magnétiques et repulpage.

Selon une réalisation particulière de l'invention, la concentration de carbure de silicium à partir d'un cylindre de matière première renfermant du carbure de silicium obtenu par chauffage dans une
25 fournaise à résistance électrique d'une charge comprenant de la silice, du matériel recyclé à base de carbure de silicium et du coke de carbone, s'effectue de la façon suivante. L'on concasse le cylindre de matière première renfermant du carbure de silicium, au concasseur à mâchoires à une granulométrie se situant entre environ 6,35 mm et 25,4 mm (1/4" et 1"), la matière première renfermant entre environ 85 % et environ
30 95 % de carbure de silicium. L'on tamise le produit concassé à une valeur comprise entre 6,35 mm et 25,4 mm
35 (1/4" et 1") de façon à obtenir un produit tamisé

renfermant entre environ 88 % et environ 96 % de carbure de silicium, l'on enlève les particules indésirables et on les recircule aux fournaies. On introduit ensuite le refus du produit tamisé dans un milieu dense comportant de l'eau et du ferrosilicium, dont la densité est ajustée en fonction de la concentration désirée de carbure de silicium dans le produit concentré et, par séparation en milieu dense à base d'eau et de ferrosilicium, on obtient une fraction lourde comprenant environ 97 % de carbure de silicium plus 0,20 % de carbone libre et une fraction légère comprenant environ 92 % de carbure de silicium et 0,50 % de carbone libre. On mène séparément la fraction lourde et la fraction légère sur un tamis vibrant de drainage d'où l'on fait recycler le milieu dense extrait comportant du ferrosilicium suspendu dans l'eau en tête de circuit. Après drainage, on lave séparément à l'eau la fraction lourde et la fraction légère sur un tamis humide pour enlever le ferrosilicium restant, qui après densification avec densificateur et/ou séparateurs magnétiques et repulpage, est recyclé en tête de circuit et l'on recycle la fraction légère aux fournaies de production de carbure de silicium.

L'invention va maintenant être décrite en référence au dessin annexé donné à titre purement illustratif mais sans caractère limitatif, dans lequel :

la figure unique est un rhéogramme illustrant un traitement du carbure de silicium selon l'invention.

En se référant au dessin de la figure unique, on se rendra compte que dans un premier temps, le minerai, en l'occurrence un cylindre de carbure de silicium produit directement des fournaies, préalablement réduit en particules grossières est acheminé dans un entonnoir 1. Par la suite, le produit concassé est

acheminé vers un ensemble tamisant. L'ensemble tamisant est constitué de deux tamis vibrants de type Sweco (marque déposée) 2 et 3. La fraction passante issue du tamis 2 de 9,5 mm d'ouverture est alimentée
5 au tamis 3 de 0,208 mm d'ouverture. Le refus au tamis d'ouverture de 0,208 mm ("65 mailles") comprenant la fraction -9,5 mm + 0,208 mm est séché et est ensuite transmis à l'alimentateur 4 à partir duquel s'effectuera la purification. Selon la flèche 12 passe le pro-
10 duit de granulométrie supérieure à 9,5 mm, et selon la flèche 13 le produit de granulométrie inférieure à 0,208 mm.

Le produit tamisé passe de l'alimentateur 4 à un bac de séparation en milieu dense 5. Le milieu
15 dense est constitué d'eau et de ferrosilicium, dont les spécifications sont données au tableau I, dans une proportion spécifique pour obtenir la densité désirée. D'autre part, ce dernier est alimenté en milieu dense au ferrosilicium au moyen d'un agitateur 7 et d'une
20 pompe 8. Le taux d'alimentation est de l'ordre de 225 kg/h et la surface du bac de séparation est de 1316 cm². La séparation des constituants en milieu dense est immédiate.

La fraction lourde 10 et la fraction légère
25 11 vont séparément sur un tamis vibrant de drainage 6 pour recycler le ferrosilicium passant ensuite en tête du circuit par la pompe 8. Par la suite, des jets d'eau lavant la fraction lourde et la fraction légère pour enlever le ferrosilicium restant qui est
30 récupéré dans le bac 9 et recyclé en tête de circuit, après densification avec densificateur et/ou séparateurs magnétiques et repulpage. Selon la flèche 14 passe le ferrosilicium nettoyé sur tamis de 0,208 mm d'ouverture.

TABLEAU I
Caractéristiques du ferrosilicium

Densité : 6,6 g/ml

Composition chimique du ferrosilicium (selon la compagnie)

<u>Elément</u>	<u>%</u>
Fe	77
Si	16
TiO ₂	4
Al ₂ O ₃	2

Granulométrie du ferrosilicium

<u>Tamis</u>			
<u>Mailles</u>	<u>Ouverture (mm)</u>	<u>% Poids</u>	<u>% cumulatif</u>
+200	>0,074	2,8	2,8
-200 +270	0,074-0,053	9,7	12,5
-270 +325	0,053-0,043	17,9	30,4
-325 +400	0,043-0,038	12,2	42,6
-400	>0,038	57,4	100,0

Les exemples qui suivent sont donnés sans caractère limitatif.

Exemple 1

En laboratoire, on utilise un séparateur Denver
5 de milieu dense en cônes. Ce dernier contient des paniers en treillis d'ouverture de 0,417 mm ("35 mailles") dans les cônes. Le but de ces paniers est de recueillir les produits lourd et léger tout en évitant qu'ils soient recirculés par la pompe qui maintient la recirculation du milieu dense à un certain débit. L'échantillon
10 testé était une fraction de granulométrie de -6,35 mm + 0,58 mm (i.e. -1/4" ; +28 mailles).

Quatre essais ont été effectués, dont le premier, comme recherche de la densité optimale par variation de la densité du milieu dense, et les trois
15 autres à des densités fixes de 2,46 ; 2,36 et 2,24 pour évaluer la qualité du produit lourd et le taux de récupération.

Ces résultats sont présentés dans les tableaux
20 II et III.

Exemple 2

En usine-pilote, on utilise la méthode décrite en rapport avec dessin. L'échantillon reçu comprend
25 94,6 % SiC. Après tamisage la fraction -9,5 mm +0,208mm comprend 95,3 % SiC.

A des densités de 2,60 et 2,66, les fractions lourdes comportent respectivement 96,1 % et 95,7 % SiC. Après un lavage supplémentaire, pour enlever le ferrosilicium restant, la fraction lourde obtenue à une
30 densité de 2,66 passe de 95,7 à 96,4 % SiC.

Le tableau IV donne les analyses obtenues.

TABLEAU II

Bilans métallurgiques des séparations en milieu dense

Carbure de silicium Granulométrie : - 6,35 mm + 0,58 mm (-1/4" + 28 m)

Produit fourd	Densité	Poids		C total			C libre			SiC		
		g	%	Anal %	Unités	Dist %	Anal %	Unités	Dist %	Anal %	Unités	Dist %
	2,71	4,5	1,13	29,52	0,33	1,12	0,30	<0,01	0,47	97,21	1,10	1,13
	2,65	2,6	0,65	29,53	0,19	0,64	0,32	<0,01	0,29	97,51	0,63	0,65
	2,60	18,3	4,58	29,17	1,34	4,49	0,17	<0,01	1,08	96,81	4,43	4,57
	2,54	44,2	11,06	29,52	3,26	10,96	0,18	0,02	2,76	97,95	10,83	11,17
	2,46	109,6	27,43	29,61	8,12	27,27	0,22	0,06	8,36	98,11	26,91	27,74
	2,41	58,9	14,74	29,39	4,33	14,55	0,27	0,04	5,52	97,21	14,33	14,77
	2,36	33,1	8,88	29,59	2,45	8,23	0,43	0,04	4,94	97,34	8,06	8,31
	2,24	77,6	19,42	30,11	5,85	19,63	1,09	0,21	29,35	96,88	18,81	19,39
Total fourd		348,8	87,29	29,65	25,88	86,89	0,44	0,38	52,77	97,51	85,11	87,74
Léger	2,24	50,8	12,71	30,71	3,90	13,11	2,68	0,34	47,23	93,57	11,89	12,26
Total		399,6	100,00	29,78	29,78	100,00	0,72	0,72	100,00	97,00	97,00	100,00

TABLEAU III

Bilans métallurgiques des séparations en milieu dense

Carbure de silicium Granulométrie : - 6,35 mm + 0,58 mm (- 1/4" + 28 m)

Densité 2,46

Produit	Poids		C total				C libre				SiC		
	g	%	Anal %	Unités	Dist %		Anal %	Unités	Dist %		Anal %	Unités	Dist %
Lourd	164,2	40,74	29,35	11,96	40,35		0,17	0,07	9,45		97,41	39,68	41,13
Léger	238,8	59,26	29,83	17,67	59,65		1,12	0,66	90,55		95,84	56,79	58,87
Total	403,0	100,00	29,63	29,63	100,00		0,73	0,73	100,00		96,48	96,47	100,00

Densité 2,36

Produit	Poids		C total				C libre				SiC		
	g	%	Anal %	Unités	Dist %		Anal %	Unités	Dist %		Anal %	Unités	Dist %
Lourd	299,4	74,53	29,44	21,94	74,02		0,25	0,19	25,56		97,44	72,62	75,24
Léger	102,3	25,47	30,24	7,70	25,98		2,13	0,54	74,44		93,84	23,90	24,76
Total	401,7	100,00	29,64	29,64	100,00		0,73	0,73	100,00		96,52	96,52	100,00

Densité 2,24

Produit	Poids		C total				C libre				SiC		
	g	%	Anal %	Unités	Dist %		Anal %	Unités	Dist %		Anal %	Unités	Dist %
Lourd	351,4	87,81	29,55	25,95	87,36		0,36	0,32	49,18		97,44	85,56	88,24
Léger	48,8	12,19	30,8	3,75	12,64		2,68	0,32	50,82		93,57	11,41	11,76
Total	400,2	100,00	29,70	29,70	100,00		0,64	0,64	100,00		96,97	96,97	100,00

TABLEAU IV

Analyse des produits obtenus
aux densités de 2,60 et 2,66

	Carbone total %	Carbone libre %	SiC %
<u>Densité 2,60</u>			
Lourd	29,1	0,28	96,1
Léger	30,0	2,49	91,7
Alimentation analysée (moyenne de 2 analyses)	29,4	0,79	95,3
<u>Densité 2,66</u>			
Lourd	29,1	0,24	96,4
Léger	29,3	1,62	92,4
Alimentation analysée (moyenne de 2 analyses)	29,4	0,79	95,3

REVENDEICATIONS

1. Procédé de concentration de carbure de silicium, caractérisé par les étapes suivantes :

- 5 a) on concasse une matière première renfermant du carbure de silicium, dans des conditions aptes à dégager le carbone libre et à libérer le carbure de silicium,
- 10 b) on tamise le produit concassé pour enlever les particules de granulométries indésirables pour ensuite les recycler aux fournaies,
- c) on introduit le refus du produit tamisé dans un milieu dense et, par séparation en milieu dense, on obtient une fraction lourde et une fraction légère,
- 15 d) on récupère la fraction lourde à haute concentration en carbure de silicium et l'on recycle la fraction légère aux fournaies de production de carbure de silicium.

20 2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on concasse la matière première au concasseur à mâchoires.

3. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que la matière première est constituée d'un cylindre obtenu par chauffage dans une fournaie à résistance électrique d'une charge comprenant de la silice, du matériel recyclé et du coke de charbon.

25

4. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on concasse la matière première à une granulométrie de 12,7 mm.

5 5. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on concasse la matière première à une granulométrie de 25,4 mm.

6. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on concasse la matière première à une granulométrie de 9,5 mm.

10 7. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on concasse la matière première à une granulométrie de 6,35 mm.

8. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que la matière première renferme entre environ 85 % et 95 % SiC.

9. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on tamise le produit concassé à une valeur comprise entre 25,4 mm et 0,208 mm.

20 10. Procédé selon la revendication 9, caractérisé en ce que l'on tamise le produit concassé à environ 9,5 mm.

11. Procédé selon la revendication 9, caractérisé en ce que l'on tamise le produit concassé de façon à ce que l'on obtienne un refus qui renferme entre environ 88 % et 96 % SiC.

12. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que le milieu dense possède une densité qui se situe entre environ 2,2 et environ 3,0.

30 13. Procédé selon la revendication 12, caractérisé en ce que la densité du milieu dense se situe entre environ 2,3 et 2,8.

14. Procédé selon la revendication 13, caractérisé en ce que la densité du milieu dense se situe à environ 2,3.

35 15. Procédé selon la revendication 1, carac-

térisé en ce que le milieu dense comporte de l'eau et du ferrosilicium, dont la densité est ajustée en fonction de la concentration désirée de carbure de silicium dans le produit concentré.

5 16. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que le milieu dense comporte de l'eau et de la magnétite, dont la densité est ajustée en fonction de la concentration désirée de carbure de silicium dans le produit concentré.

10 17. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que la fraction lourde comprend environ 97 % SiC et 0,20 % C libre.

15 18. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que l'on mène séparément la fraction lourde et la fraction légère sur un tamis vibrant de drainage d'où l'on fait recycler le milieu dense extrait comportant du ferrosilicium suspendu dans l'eau en tête de circuit.

20 19. Procédé selon la revendication 18, caractérisé en ce qu'après drainage, on lave séparément à l'eau la fraction lourde et la fraction légère sur un tamis humide pour enlever le ferrosilicium restant, qui, après densification avec densificateur et/ou séparateurs magnétiques et repulpage, est recyclé en tête
25 du circuit.

30 20. Procédé de concentration de carbure de silicium à partir d'un cylindre de matière première renfermant du carbure de silicium obtenu par chauffage dans une fournaise à résistance électrique d'une charge comprenant de la silice, du matériel recyclé à base de carbure de silicium et du coke de carbone, caractérisé en ce que l'on concasse ledit cylindre de matière première renfermant du carbure de silicium, au concasseur à mâchoires à une granulométrie se situant entre environ 6,35 et 25,4 mm, ladite matière
35

première renfermant entre environ 85 % et environ 95 % de carbure de silicium, l'on tamise le produit concassé à une valeur comprise entre 9,5 mm et 0,208 mm de façon à obtenir un produit tamisé renfermant entre environ 88 % et environ 96 % de carbure de silicium, l'on enlève les particules de granulométries indésirables que l'on recycle aux fournaies, on introduit le refus du produit tamisé dans un milieu dense comportant de l'eau et du ferrosilicium, dont la densité est ajustée en fonction de la concentration désirée de carbure de silicium dans le produit concentré, et, par séparation en milieu dense à base d'eau et de ferrosilicium, on obtient une fraction lourde comprenant environ 97 % de carbone de silicium et une fraction légère comprenant environ 92 % de carbure de silicium, en ce que l'on mène séparément ladite fraction lourde et ladite fraction légère sur un tamis vibrant de drainage d'où l'on fait recycler le milieu dense extrait comportant du ferrosilicium suspendu dans l'eau en tête de circuit, et en ce que, après drainage on lave séparément à l'eau la fraction lourde et la fraction légère sur tamis humide pour enlever le ferrosilicium restant, qui, après densification avec densificateur et/ou séparateurs magnétiques et repulpage, est recyclé en tête de circuit, et l'on recycle la fraction légère à une fournaise de production de carbure de silicium.

