

DISTRIBUIÇÃO DE TAMANHOS DE PARTÍCULAS POR DIFRATÔMETRO A LASER

Claudio Luiz Schneider ⁽¹⁾

Alan Sampaio de Souza ⁽²⁾

Resumo

Uma equação de transformação estereológica é postulada para o cálculo da distribuição de tamanhos de peneira a partir da medição da distribuição de tamanhos de esferas equivalentes medida em difratômetro a LASER. A função de transformação para um minério de ferro é medida experimentalmente, e modelada. A transformação é testada contra a função de transformação medida, bem como contra amostras artificiais de distribuição de tamanhos de peneira conhecidas, e uma distribuição de tamanhos natural, obtida a partir de uma amostra de fluxo, medida por peneiramento e *cyclosizer*. Os resultados obtidos, em todos os casos, são bastante encorajadores. Os resultados obtidos nas amostras artificiais mostram que a distribuição de tamanhos de peneira pode ser obtida com acuracidade razoável para distribuições de alta entropia, que representam o caso mais difícil para técnicas de transformação estereológica. Para a amostra de fluxo, onde a distribuição é de baixa entropia (suave), os resultados obtidos foram excelentes.

Palavras-chave: estereologia, difratômetro, tamanho

Particle Sieve Size Distribution from Laser Diffractometer

Abstract

A stereological transformation equation is postulated for the calculation of sieve size distributions from measurement of equivalent sphere size distributions on a LASER diffractometer. A transformation function for an iron ore is measured experimentally, and modeled. The solution is tested against the measured transformation function, as well as artificially prepared samples, and from a fine particle stream sample, measured by sieve analysis coupled with *cyclosizer* analysis. The results obtained are, in all cases, encouraging. The results obtained on the artificial samples, prepared by careful sieving, show that reasonable accuracy can be obtained for high entropy distributions, which represent the most difficult cases for stereological transformation. For the flow sample, where the distribution is smooth, the results were excellent.

Key-words: *stereology, diffractometer, size*

1. INTRODUÇÃO

Difratômetros a LASER são vendidos comercialmente para a medição da distribuição de tamanhos de partículas. Estes equipamentos encontram grande aplicação na caracterização de materiais, em particular na indústria farmacêutica. Devido à natureza irregular das partículas, as distribuições de tamanhos medidas são definidas como uma distribuição de tamanhos equivalentes de esferas. Este tipo de distribuição é largamente aceita como uma medida relativa de tamanhos, principalmente devido ao fato de que a grandeza relativa ao tamanho é definida sem qualquer ambiguidade pelo diâmetro da esfera.

Na indústria mineral, a distribuição de tamanhos de peneira é a grandeza de praxe, principalmente pelo fato de que esta medição pode ser obtida facilmente e com grande precisão, em laboratório, para tamanhos maiores que 44 micrômetros. Abaixo de 44 micrômetros, esta medida torna-se mais difícil, e a acuracidade

diminui proporcionalmente ao tamanho. Abaixo de 20 micrômetros, medições com peneiras de laboratório ou micro-peneiras são imprecisas.

O *cyclosizer* tem sido utilizado na indústria mineral para a análise de partículas menores do que 44 micrômetros. O tamanho das partículas nas distribuições medidas com o *cyclosizer* é definido como um tamanho equivalente de Stokes. Estes tamanhos podem ser facilmente convertidos para tamanhos equivalentes de peneira, quando a densidade das partículas é conhecida.

O sedígrafo pode ser considerado como um instrumento de medição similar ao *cyclosizer*, tanto no que diz respeito ao tamanho medido, como na dependência das densidades das fases presentes.

⁽¹⁾ *Tecnologista Sênior, CETEM/MCT*

⁽²⁾ *Engenheiro, GADEN/DIFN/CVRD*

Dentro deste contexto, medições com um difratômetro a LASER apresentam pelo menos três vantagens importantes. Primeiro, a medida é largamente independente do espectro de composições e da distribuição de densidades de fases na população de partículas, contanto que cada partícula na população tenha igual probabilidade de difratar o feixe de LASER. Uma segunda vantagem é a rapidez da análise. Uma amostra pode ser medida em questão de vários segundos. A terceira vantagem é a relativa facilidade com que uma análise pode ser obtida, em comparação ao *cyclosizer* e ao peneiramento.

A distribuição de tamanhos equivalentes de esferas produzida pelo difratômetro a LASER é perfeitamente válida para cálculos metalúrgicos, e pode ser utilizada rotineiramente em plantas de tratamento de minérios. Existe, no entanto, uma importante limitação. A grande maioria, se não a totalidade, dos cálculos rotineiros envolvidos na operação de plantas de tratamento de minérios, bem como modernos sistemas de controle operacional, e simuladores de plantas e de operações unitárias foram desenvolvidos com base na distribuição de tamanhos de peneiras, e isto deve-se, principalmente, à disponibilidade de análise granulométrica acurada, por peneiramento, desde os primórdios do desenvolvimento da área de tratamento de minérios. Com isto, as distribuições granulométricas medidas no difratômetro não podem ser utilizadas diretamente nos sistemas existentes, uma vez que isto acarretaria erros de proporções desconhecidas. Apesar das vantagens inerentes do difratômetro a LASER como instrumento de medição de granulometria, a tendência é a de que os tamanhos de peneira permaneçam como padrão tecnológico no tratamento de minérios. Isto ocorre porque difratômetros a LASER são limitados a tamanhos relativamente pequenos, digamos abaixo de 250 micrômetros, enquanto que peneiras podem ser utilizadas em um espectro de tamanhos muito mais abrangente, desde várias dezenas de milímetros, até pelo menos 44 micrômetros. Ainda, grande parte das operações unitárias no tratamento de minérios envolve partículas maiores do que 44 micrômetros. Uma segunda desvantagem importante do difratômetro a LASER é a de que as amostras não são fisicamente separadas, e análises químicas e mineralógicas, frequentemente necessárias, não podem ser realizadas com este tipo de equipamento.

Levando-se em consideração os argumentos aqui expostos, pode-se concluir que os tamanhos de peneira são, e permanecerão sendo, a medida padrão de tamanhos de partículas irregulares, no âmbito do tratamento de minérios. Com isto, é importante que seja desenvolvida uma metodologia de conversão das distribuições medidas em difratômetro a LASER, para uma distribuição equivalente de tamanhos de peneiras. Uma metodologia baseada na conversão estereológica entre estas distribuições é apresentada neste trabalho.

2. METODOLOGIA

A distribuição de tamanhos de esferas equivalentes, medida em difratômetro a LASER, não é uma medida direta. As distribuições reportadas pelos equipamentos são derivadas a partir de uma medida mais fundamental, resultante da interação das partículas com a luz. O fenômeno é mais corretamente conhecido como o espalhamento de luz LASER de baixo ângulo. Equipamentos modernos usam a teoria completa de Mie para resolver as equações da interação da luz com a matéria. Assim, uma distribuição de tamanhos de esferas equivalentes é calculada, onde a equivalência diz respeito à distribuição de tamanhos de esferas que geram um padrão de espalhamento angular de luz LASER idêntico ao medido nas partículas testadas. A vantagem principal desta medida é a de que a solução é completamente independente da forma das partículas medidas, sejam estas partículas regulares ou irregulares. Isto significa que a relação entre a distribuição de tamanhos de peneira $f(D)$ e a distribuição de tamanhos medida pelo difratômetro a LASER $p(M)$ têm tão somente duas dependências, sendo a mais importante a forma das partículas. A segunda dependência é quanto a probabilidade de uma partícula ser amostrada, e isto é denominado de *bias* de medição. Postula-se portanto, que uma equação do tipo estereológica pode ser utilizada para relacionar os dois tipos de medidas. A forma geral da equação estereológica para distribuições de tamanhos foi publicada por King, em 1982,⁽¹⁾ e na sua forma simplificada, pode ser escrita como:

$$p(M) = \mu \int_0^{\infty} p(M|D) \frac{f(D)}{M_D} dD \quad (1)$$

Na equação (1) o termo $p(M|D)$ representa a distribuição de tamanhos medida, gerada por partículas de tamanho D . Aqui, D representa o tamanho de peneira e M representa o tamanho equivalente de esferas, gerado pelo difratômetro a LASER. μ é o tamanho médio da distribuição medida, enquanto M_D é tamanho médio gerado por partículas de tamanho D . Estas grandezas podem ser facilmente calculadas a partir das distribuições medidas, por simples integração. A solução da equação (1) requer o conhecimento antecipado da distribuição condicional $p(M|D)$.

Esta função é dependente da forma das partículas, e representa a distribuição de tamanhos de esferas equivalentes que é medida em uma população de partículas que tem tamanhos de peneira exatamente igual a D . Isto é conhecido, no jargão estereológico, com uma função de transformação, ou kernel. Felizmente, para esta aplicação, a função de transformação pode ser facilmente medida, contanto que seja possível preparar amostras em faixas estreitas de tamanhos, por peneiramento, e que estas amostras sejam passíveis de análise no difratômetro, e que a forma das partículas seja igual ou equivalente à forma das partículas a serem medidas. Ou seja, o kernel pode ser medido em partículas relativamente grosseiras e aplicado em partículas relativamente pequenas, contanto que a morfologia das partículas permaneça constante em todos os tamanhos.

A solução da equação (1) implementada neste trabalho é idêntica à solução proposta por King e Schneider, 1998. Nesta solução, um algoritmo de otimização baseado em programação sequencial quadrática é utilizado para encontrar valores de $f(D)$ que satisfazem a equação (1), tendo como função objetivo a norma das diferenças entre as funções $p(M)$ medida e calculada, e a entropia da distribuição $f(D)$ calculada.

2.1 Determinação experimental do kernel para um minério de ferro de Carajás

Para a determinação do kernel de transformação, uma amostra de *Sinter Feed*, designada SPL I, foi coletada no circuito de processamento de minério de ferro de Carajás. Esta amostra foi peneirada, cuidadosamente, em sete frações granulométricas estreitas, de 250x150, 150x106, 106x75, 75x53, 53x45, 45x38 e 38x20 micrômetros. Embora um intervalo constante de $\sqrt{2}$ seja recomendável, a primeira e a última fração foram preparadas em faixas mais largas, por não haver disponibilidade de peneiras apropriadas. Para calibrações mais precisas, seria ideal preparar-se amostras em intervalos de tamanhos ainda mais estreitos, tal como $\sqrt[4]{2}$. Cada uma das amostras preparadas foi analisada em um difratômetro a LASER modelo Malvern™ Mastersizer Micro, via úmida. Este difratômetro é especificado para partículas entre 300 e 0.3 micrômetros, mas deve-se levar em conta que quanto maior a densidade das partículas, menor o tamanho máximo de partícula que pode ser analisada neste equipamento. Isto se deve a problemas hidrodinâmicos, e o peso das partículas é a grandeza mais apropriada a ser levada em consideração. Os resultados da análise do Malvern™ são mostrados na Figura 1.

Com os dados da Figura 1, é possível construir-se um kernel de transformação se as distribuições individuais puderem ser modeladas com precisão por alguma forma funcional, e se as distribuições forem, de fato, auto-replicas (*self-similar*), demonstrando-se assim que o kernel é uma função somente da forma das partículas, e que a forma não varia com o tamanho. Foram testadas algumas formas funcionais, e concluiu-se que o modelo log-logístico é o mais apropriado para todas as distribuições medidas neste minério.

$$P(M) = \frac{1}{1 + \left(\frac{M_{50}}{M}\right)^\lambda} \quad (2)$$

Os resultados da interpolação de cada amostra com o modelo log-logístico são mostrados na Tabela I.

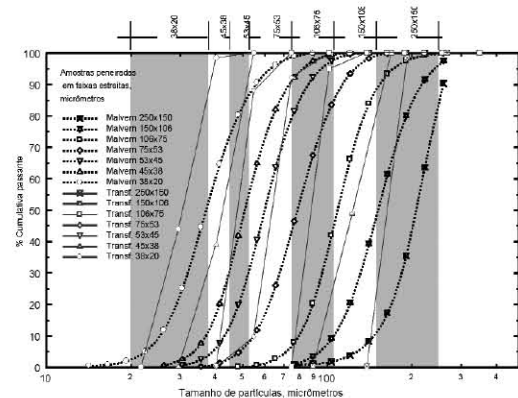


Figura 1: Distribuições de tamanhos equivalentes de esferas para amostras em faixas estreitas de tamanhos (linhas pontilhadas), e resultados da transformação estereológica (linhas contínuas). As áreas retangulares representam o domínio das amostras com respeito ao tamanho das partículas.

Tabela I: Parâmetros do modelo log-logístico, calculados por interpolação, e tamanhos representativos de peneira das amostras, definidos como $\sqrt{D \max x D \min}$

Amostra	Tamanho representativo d_p , micrômetros	M_{50} , micrômetros	λ
250x150	193,64	204,1	7,61
150x106	126,10	151,3	6,09
106x75	89,16	109,1	6,66
75x53	63,05	78,3	6,02
53x45	48,84	60,0	6,42
45x38	41,35	51,2	6,44
38x20	27,57	37,2	5,60

O gráfico dos tamanhos representativos d_p , plotados contra os valores medianos M_{50} de cada amostra, é mostrado na Figura 2(a). A linha contínua representa a regressão que leva à relação entre as distribuições de tamanhos equivalentes de esferas, e os tamanhos de peneira. Na Figura 2(b), as distribuições medidas são plotadas contra os tamanhos normalizados. Pode-se observar que as distribuições medidas são auto-replicas, com exceção das amostras correspondentes às frações 250x150, e 38x20 micrômetros. Dois fatores contribuem para esta

inconsistência. Primeiramente, o Malvern™ Mastersizer Micro produz erros de amostragem internos nas partículas maiores. Embora o fabricante especifique este equipamento para partículas até 300 micrômetros, esta especificação é provavelmente derivada de uma calibração com padrões esféricos de vidro, que tem densidade significativamente menor do que as partículas de minério de ferro. Uma estimativa grosseira pode ser feita da seguinte forma. A densidade de um vidro tipo soda cal é aproximadamente 2,45 g/cc enquanto que uma partícula porosa de minério de ferro pode ter uma densidade tão baixa quanto 3,6 g/cc. Para condições hidrodinâmicas semelhantes, e desconsiderando-se todos os fatores relativos à sedimentação, inclusive a forma, o tamanho máximo para análise de partículas deste minério seria $300 \times 2,45 / 3,6 = 204$ micrômetros. Portanto, uma boa parte das partículas no intervalo 250x150 micrômetros podem estar além da faixa recomendada para a operação do equipamento. O outro fator é a extensão da faixa de tamanhos das amostras em questão, e nos dois casos, as faixas de tamanho são maiores do que as das amostras que geram curvas auto-replicas. Se os resultados medidos nestas amostras são desconsiderados, interpolação não linear com a equação (2) para o cálculo do parâmetro λ resulta na linha contínua mostrada na Figura 2(b).

Substituindo na equação (2), a forma funcional do kernel de transformação é obtida, e a forma final do kernel de transformação para as partículas deste minério de ferro é mostrada na equação (3).

$$P(M|D) = \frac{1}{1 + \left(\frac{1.27D}{M}\right)^{6.7}} \quad (3)$$

2.2 Verificação em amostras artificiais de entropia média a alta

A verificação da aplicação da técnica foi feita através da preparação de oito amostras artificiais, preparadas a partir do *Sinter Feed* de Carajás. As amostras com distribuições de tamanho bem definidas, foram analisadas no difratômetro a LASER. Os resultados do difratômetro foram então submetidos à transformação estereológica. Esta

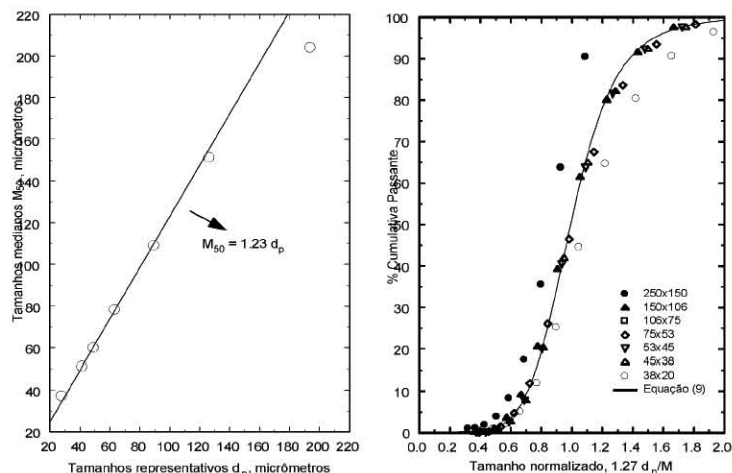


Figura 2. (a) tamanhos representativos das amostras de monotamanho, plotados contra o tamanho mediano das distribuições de tamanhos de esferas equivalentes, (b) distribuições de tamanhos equivalentes de esferas, normalizadas (pontos) e o modelo da equação (2) (linha contínua).

experiência está sumarizada na Tabela 2. As amostras artificiais são amostras de entropia relativamente alta, se comparadas às entropias de amostras de fluxo, onde as distribuições de tamanhos são consideravelmente mais naturais. Pode-se observar na Tabela 2 que os resultados do difratômetro a LASER são muito pouco correlacionados com a distribuição de tamanhos de peneiras das amostras artificiais, e isto é um comportamento absolutamente previsível, uma vez que o difratômetro mede distribuições de tamanhos de esferas equivalentes. Já os resultados da transformação estereológica são altamente correlacionados às distribuições de tamanhos das amostras artificiais.

Tabela 2. Amostras artificiais, preparadas por peneiramento, resultados do difratômetro a LASER, e resultados da transformação estereológica.

	Tamanho, μ	Porcentagem na faixa de tamanho							
		1	2	3	4	5	6	7	8
Amostras artificiais	-150+106	50	25	25	50	50	0	60	10
	-106+75	25	50	25	0	50	50	30	30
	-75+53	25	25	50	50	0	50	10	60
Malvern™	+150	25	15	8	20	25	5	26	4
	-150+106	40	34	25	27	50	24	43	23
	-106+75	21	30	32	23	20	36	22	34
	-75+53	10	15	25	19	4	25	8	28
	-53	4	6	10	11	1	10	1	11
Transformação estereológica	+150	0	1	0	0	1	0	1	0
	-150+106	52	18	14	37	51	0	52	2
	-106+75	30	53	27	23	48	53	36	32
	-75+53	17	28	59	40	0	47	11	66
	-53	1	0	0	0	0	0	0	0

De um modo geral, os resultados mostrados na Tabela 2 são bastante encorajadores. O erro de maior significância foi verificado no caso da amostra #4, e isto provavelmente é devido ao fato de que a solução requer uma certa quantidade de regularização, com a minimização da entropia. A faixa intermediária, onde não haviam partículas, implica que a

solução tem dois picos localizados nas faixas de tamanho adjacentes. Este tipo de resultado é muito similar ao problema da regularização com amostras mono-tamanho.

2.3 Verificação com uma amostra de fluxo

Esta verificação foi realizada com uma amostra do *underflow* da deslamagem da planta de *pellet feed* moído de Carajás. A amostra foi peneirada até 45 micrômetros, e a fração menor que 45 analisada no *cyclosizer*. Uma amostra da alíquota menor do que 45 micrômetros foi analisada no Malvern™ Mastersizer Micro e este resultado submetido à transformação estereológica. Os resultados destas análises são mostrados na Figura 3.

A distribuição corrigida confere perfeita-mente com a distribuição medida no *cyclosizer*, enquanto que a distribuição equivalente de esferas mede, sistematicamente, frações maiores de partículas nos tamanhos menores.

3. CONCLUSÕES

Pode-se concluir que é possível adotar-se uma estratégia baseada em técnicas de transformação estereológica para converter distribuições de esferas equivalentes em distribuições de tamanhos de peneiras. A metodologia para o levantamento do kernel de transformação, que é necessário para a aplicação correta da técnica, pode ser aplicada facilmente, e o cálculo dos parâmetros da função de transformação é bastante simples, não requerendo *software* especializado.

A solução implementada neste trabalho produz resultados bastante encorajadores. Existe a necessidade de testar-se outros tipos de partículas, e de outros minérios, para entender-se as relações entre forma e função de transformação. Com o tempo, espera-se que um aplicativo capaz de gerar resultados positivos para a maioria dos tipos de partículas, possa ser desenvolvido nestas bases.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. KING, R.P. Determination of the distribution of size of irregularly shaped particles from measurements on sections or projected areas. **Powder Technology**, v. 32, n.1, p. 87-100, May 1982.
2. KING, R.P.; SCHNEIDER, C.L. Stereological correction of linear grade distributions for mineral liberation. **Powder Technology**, v. 98, n.1, p. 21-37, July 1998.

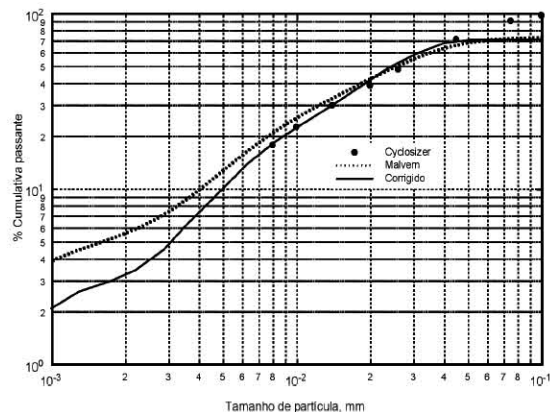


Figura 3: amostra do *underflow* da deslamagem da planta de *pellet feed* moído de Carajás, medida por peneiramento e *cyclo-sizer* (pontos), distribuição de tamanhos de esferas equivalentes, medida no Malvern™ e resultados da transformação estereológica (linhas contínuas).