

Tomasz GAWENDA, Tomasz NIEDOBA, Jacek KORDEK, Damian KRAWCZYKOWSKI  
Akademia Górniczo-Hutnicza, Kraków

## **ANALIZA DOKŁADNOŚCI WYNIKÓW POMIARÓW GRANULOMETRYCZNYCH RÓŻNYCH SUROWCÓW MINERALNYCH UZYSKANYCH PRZY POMOCY ANALIZATORA WIELKOŚCI CZĄSTEK (INFRARED PARTICLE SIZER)**

**Streszczenie.** W artykule omówiono metody badań ilości i wielkości skrajnie drobnych ziaren oraz niektóre formy przedstawiania wyników analiz granulometrycznych i ich interpretacji. Praca doświadczalno-badawcza obejmuje analizy granulometryczne różnych surowców mineralnych w analizatorze wielkości cząstek (Infrared Particle Sizer). Celem pracy było określenie dokładności pomiarowej tego urządzenia, a także poszukiwanie zależności pomiędzy właściwościami surowców (wynikających z ich natury) oraz wynikami z analizatora IPS (które uwzględniają naturę tej metody pomiarowej).

## **ANALYSIS OF PRECISION OF VARIOUS MINERAL RAW MATERIALS GRANULOMETRIC MEASUREMENTS RESULTS GIVEN BY INFRARED PARTICLE SIZER**

**Summary.** The methods of quantitative and size research of very fine grains, as well as some forms of granulometric analyses' results, were presented and interpreted in the paper. The explorative work contains granulometric analyses of various mineral raw materials conducted in the Infrared Particle Sizer. Its purpose is to determine the apparatus' precision and to search for the dependence of the characteristics of raw materials resulting from analyzer's work rules on the nature of materials.

## 1. Ogólne metody oznaczania wielkości ziarn skrajnie drobnych

Wśród blisko 100 sposobów wykonywania analiz granulometrycznych wyróżnić można dwie podstawowe grupy metodologiczne charakteryzowania ziarna, tzn. według rozkładu ich wielkości (pełnego rozmiaru ziarna) oraz średniej wielkości (średniego rozmiaru ziarn).

Oznaczania rozkładu wielkości ziarn najogólniej dokonuje się przesiewając materiał w zawieszynie na sitach o różnych oczkach (zakres ograniczony do kilku, kilkunastu mikrometrów), metodami sedymentacyjnymi i szlamowaniem, opartymi na wzajemnym przemieszczaniu się ziarn i ośrodka, oraz metodami zliczania ziarn w obrazie mikroskopowym lub zawieszynie. Z kolei do oznaczania średniej wielkości ziarn stosuje się pomiary rozproszenia promieniowania, dyfrakcji promieniowania rentgenowskiego, a także pomiar powierzchni właściwej. Istnieje wiele pozycji literaturowych poświęconych tym zagadnieniom i omawiających je w szerszym zakresie (Allen 1992; Bernhardt, 1994; Bolewski i in., 1979).

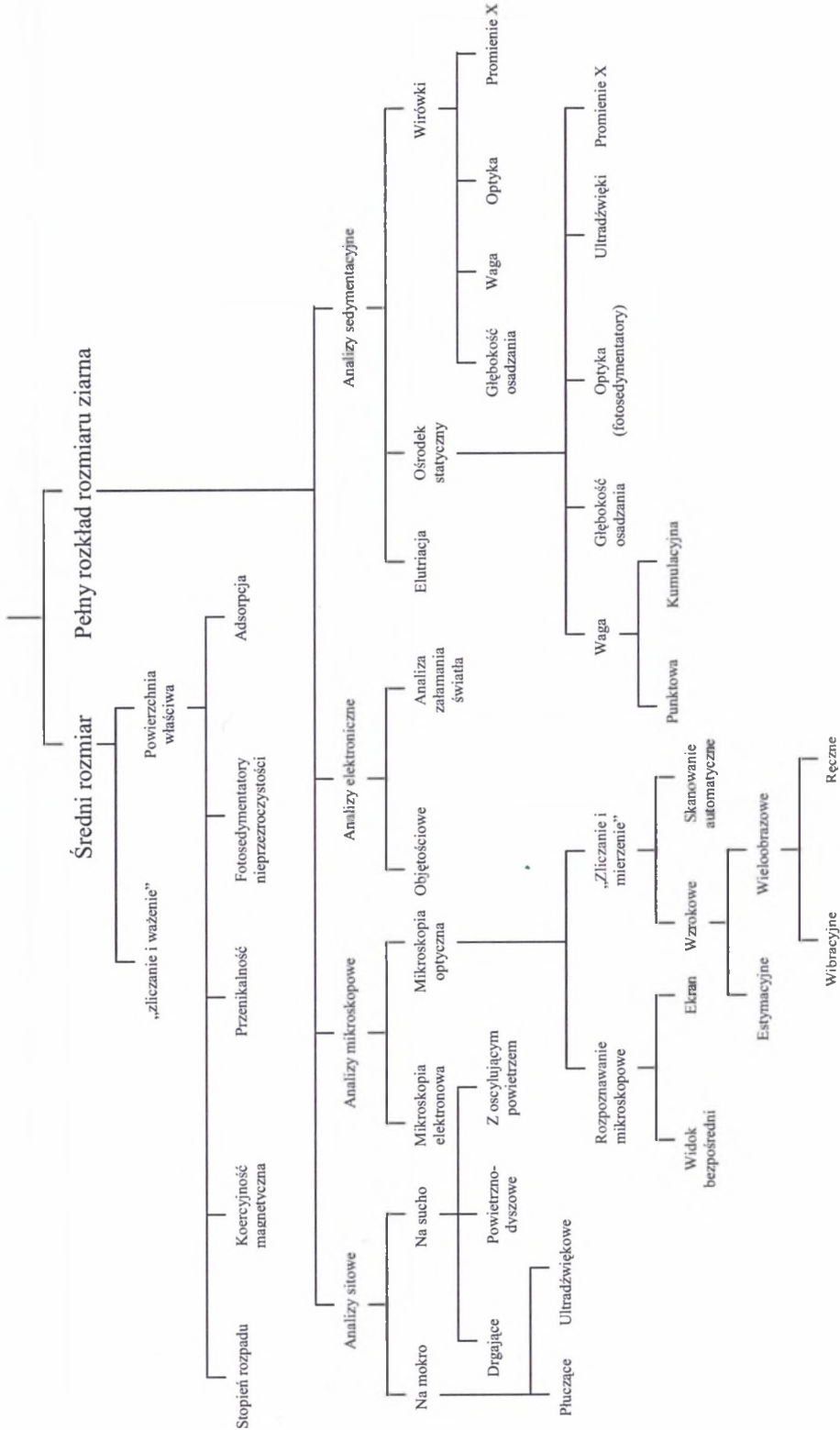
Bardziej uszczegółowioną charakterystykę metod analizy wielkości ziarn i stosowanej aparatury przedstawiono na rysunku 1 (Lowrison, 1974).

## 2. Zasada działania analizatora wielkości cząstek IPS

System IPS (Infrared Particle Sizer) wykorzystuje metodę pomiaru w świetle przechodzącym (rys. 2), które poprzez przestrzeń pomiarową sondy IPS ukształtowanej przez układ optyczny AB jest emitowane w zakresie podczerwieni. Analizowane cząstki poruszające się w ośrodku powietrza, wpadając w obszar przestrzeni pomiarowej powodują, na skutek zjawiska rozproszenia, osłabienie strumienia świetlnego odbieranego przez fotodiode.

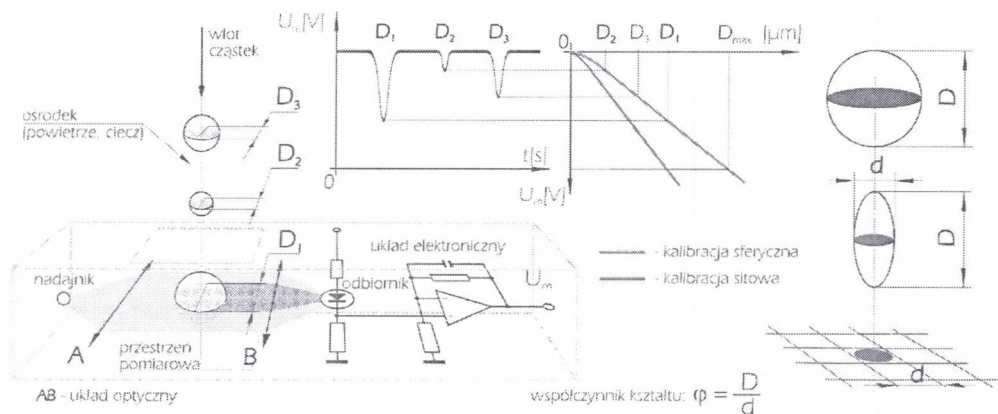
Strefa pomiaru ma wymiary prostokąta 6x3 mm o grubości około 150  $\mu\text{m}$ . Każdej cząstce przechodzącej przez strefę pomiaru, po przetworzeniu odpowiada impuls elektryczny (amplituda) uformowany przez układ elektroniczny, który jest proporcjonalny do średnicy cząstki traktowanej jako kula. W przypadku gdy cząstka nie jest kulista, amplituda impulsu zależy od sposobu ustawienia się cząstki w strefie pomiaru. W analizatorze mierzona jest więc projekcja maksymalnego wymiaru, która wynika ze sposobu oddziaływania czynnika

**Metody analizy wielkości ziarna**



Rys. 1. Metody analizy wielkości ziarna (Lowrison, 1974)  
 Fig. 1. The methods of grain size analysis (Lowrison, 1974)

unoszącego ziarna (w tym przypadku powietrza). Zbiór ziaren może być podzielony na 4096 klas ziarnowych, co daje zakresy od 0,5  $\mu\text{m}$  do 2 mm (dla maksymalnego zakresu pomiarowego) i od 0,06  $\mu\text{m}$  do 125  $\mu\text{m}$  (dla minimalnego zakresu pomiarowego).



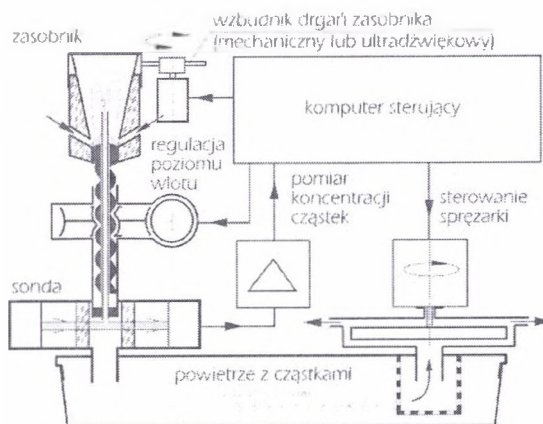
Rys. 2. Zasada działania systemu IPS (Specyfikacja systemu IPS-U, 2002)

Fig. 2. The work rule of IPS system (Specification of IPS-U system, 2002)

Jeśli cząstka ma kształt kuli, to jej masa jest jednoznacznie określona, jeżeli badany materiał jest jednorodny pod względem budowy mineralogicznej, natomiast gdy ma kształt wydłużony, obliczenie objętości (masy) jest obarczone błędem. Dla takich ziaren objętość oblicza się jako objętość kuli o średnicy równej wartości pomiarowej. Takie podejście powoduje zwiększenie obliczeniowej objętości (masy) cząstek. Należy jednak przyjąć, że ze względu na wielomilionowy zbiór cząstek mierzonych podczas każdego pomiaru próbki rozkład wielkości cząstek, wyrażony w postaci 256 klas wymiarowych, jest stabilny (powtarzalny). Wyniki analiz są czytane wg następującej kalibracji przyrządu dla cząstek o kształcie sferycznym: dla zakresu 1 ( $d_{\min}=7,2 \mu\text{m}$ ,  $d_{\max} 2101 \mu\text{m}$ ), zakresu 2 ( $d_{\min}=3,6 \mu\text{m}$ ,  $d_{\max} 529 \mu\text{m}$ ), zakresu 3 ( $d_{\min}=2,3 \mu\text{m}$ ,  $d_{\max} 220 \mu\text{m}$ ), zakresu 4 ( $d_{\min}=1,6 \mu\text{m}$ ,  $d_{\max} 128 \mu\text{m}$ ). Określenie krańcowych wartości przedziałów uziarnienia, zwłaszcza dla bardzo drobnych cząstek (do kilku mikrometrów), może wykazywać pewne niedokładności w porównaniu z innymi analizatorami (Gniadek i in., 2005).

Analizowane cząstki z zasobnika pobudzanego do drgań metodą mechaniczną lub ultradźwiękową unoszone są przez regulowany strumień powietrza wchodzącego przez szczelinę osiowosymetryczną (rys. 3). Strumień ten kierowany jest do rurki wlotowej, której położenie (poziom wlotu) jest regulowane. Cząstki zawarte w strumieniu przelatują przez obszar aktywny sondy i osiadają na filtrze pojemnika. Wieloparametrowe sterowanie:

obrotami sprężarki, amplitudą drgań zasobnika oraz poziomem wlotu odbywa się z komputera w połączeniu z ciągłym pomiarem koncentracji cząstek w aktywnym obszarze sondy.



Rys. 3. Budowa i zasada działania układu dozowania IPS (Specyfikacja systemu IPS-U, 2002)

Fig. 3. The structure and work rule of metering system IPS (Specification of IPS-U system, 2002)

### 3. Opis wykonanych eksperymentów

Do eksperymentu użyto trzech różnych surowców skalnych: diabazu z Kopalni Diabazu i Porfiru w Krzeszowicach ze złoża Niedźwiedzia Góra, dolomitu dewońskiego z Dubia (Kopalnie Odkrywkowe Surowców Drogowych Ruda) oraz wapienia karbońskiego z Kopalni Wapienia „Czatkowice”, które znacząco różnią się pod względem właściwości fizykochemicznych i chemicznych. Dokładne charakterystyki wybranych surowców zestawiono w pracy (Gawenda, 2004). Materiał rozdrobniono do klasy poniżej 5 mm w laboratoryjnej kruszarce szczękowej, a następnie 600 g próbki mielono w laboratoryjnym młynku kulowym o pojemności 10 dm<sup>3</sup> przy użyciu kul stalowych o średnicy 30-40 mm o ich łącznej masie 4 kg, w 10 różnych czasach (tabela 1) w celu otrzymania coraz większego rozdrobnienia. Zmielone próbki poddano analizie składu ziarnowego za pomocą analizatora IPS-U wykonując przy tym po 10 powtórzeń oznaczeń.

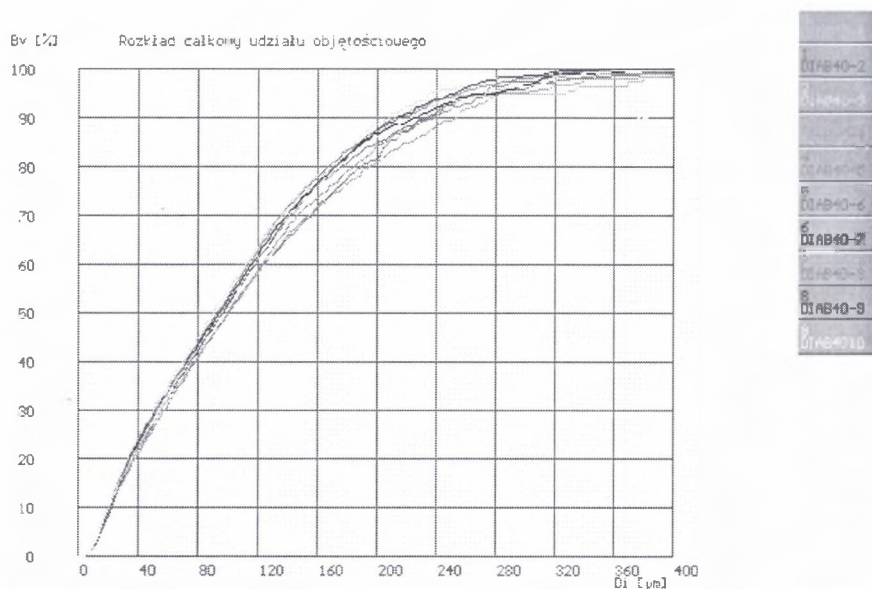
Celem takiego eksperymentu było zbadanie dokładności (powtarzalności) wyników analiz granulometrycznych użytych surowców w różnych czasach mielenia oraz określenie zmiany uziarnienia w czasie mielenia.

## 4. Interpretacja wyników

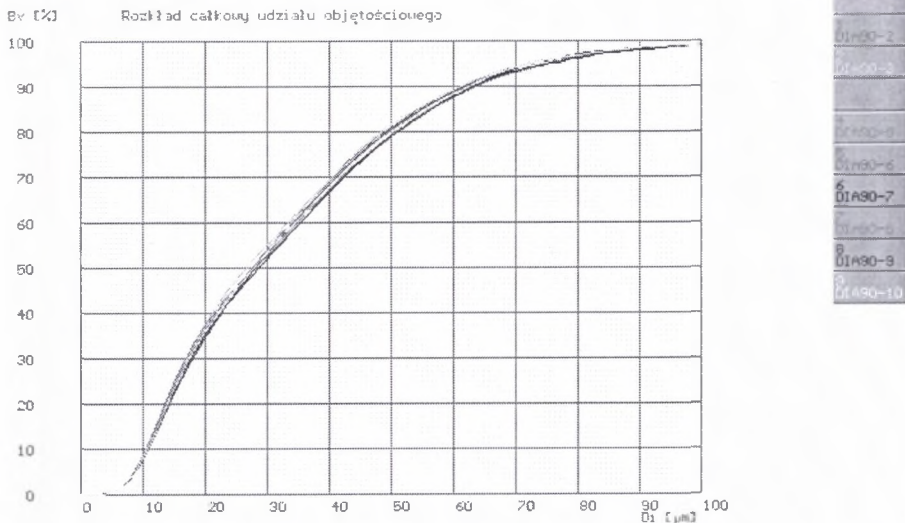
Uzyskane wyniki można opracowywać na wiele sposobów. Rozpocznijmy prezentację od programów urządzenia.

Analizator IPS-U wyposażony jest w program Compare służący do zestawiania wyników w formie tabel i wykresów krzywych (gęstości) rozkładu ziarn i kumulacyjnych krzywych składu ziarnowego oraz porównywania ich ze sobą. Program ten posiada również możliwość interpretacji wyników w postaci dystrybuanty rozkładu funkcji Rosina-Rammlera-Benetta-Sperlinga (RRBS) przyjętej do aproksymacji rozkładu wielkości ziarn drobnych proszków. Przytoczone tu wybrane wykresy stanowią wydruki z programu urządzenia, które mogą być nieczytelne, dlatego też należy je traktować jako przykładowe wyniki użyte do interpretacji zagadnienia.

W przypadku analiz diabazu, wapienia i dolomitu we wszystkich czasach mielenia wartości ziarna 50-procentowego ( $d_{50}$ ) dla dziesięciokrotnych powtórzeń były podobne (rys. 4), z wyjątkiem czasów 30 i 40 minut (rys. 5). Prawdopodobnie były to zbyt krótkie czasy mielenia, aby ziarna miały dostateczny kontakt z mielnikami.



Rys. 4. Dystrybuanty składu ziarnowego dla diabazu mielonego w czasie 40 min (dla 10 powtórzeń)  
 Fig. 4. The grain composition distribution functions for diabase grinded during 40 min (for 10 repetitions)



Rys. 5. Dystrybuanty składu ziarnowego dla diabazu mielonego w czasie 90 min (dla 10 powtórzeń)  
 Fig. 5. The grain composition distribution functions for diabase grinded during 90 min (for 10 repetitions)

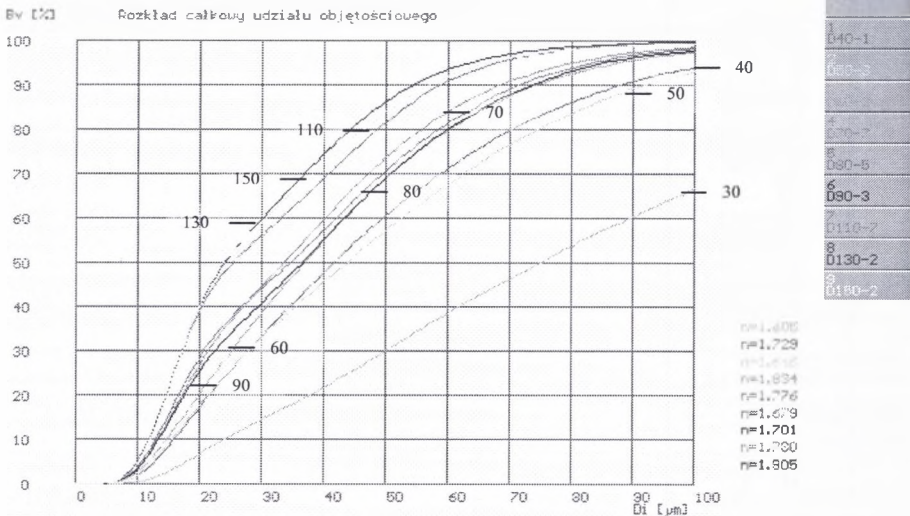
W tabeli 1 zestawiono uśrednione mediany i mody rozkładu wielkości ziarn produktów dla poszczególnych surowców. W przypadku diabazu i wapienia wartości ziarna 50-procentowego maleją zgodnie ze wzrostem czasu mielenia. Odmienne charakterystyki ma dolomit, dla którego wartości ziarna  $d_{50}$  nie mają wyraźnego spadku wraz ze wzrostem czasu mielenia. Również na rysunku 6 zestawiono reprezentatywne dystrybuanty analiz składu ziarnowego dolomitu mielonego w 10 różnych czasach, których kształt świadczy o nierównomiernym rozdrabnianiu się materiału. O takim zjawisku mogą decydować właściwości fizykochemiczne surowca, np. łączenie się drobnych pojedynczych cząstek w większe aglomeraty wskutek sił adhezji, mimo iż urządzenie jest wyposażone w ultradźwiękowy dozownik służący do rozbijania sklejonnych proszków. Należy wykluczyć niedokładności urządzenia analizującego, czy niedokładność pobierania próbek do analiz, ze względu na to, że wszystkie próbki dolomitu (analizowane 10-ciokrotnie) wykazywały wysokie zgodności co do powtarzalności, tak samo jak w przypadku pozostałych materiałów.

Takie wyniki dla dolomitu zmusiły autorów do zbadania tego materiału w innym urządzeniu (laserowy miernik cząstek). Rezultaty nie potwierdziły się, co sugeruje potrzebę innej formy przygotowywania próbek do analiz, np. w roztworach zawieszinowych oraz wyklucza mierzenie dolomitu w IPS-U w stanie powietrzno-suchym próbki.

Tabela 1

Zestawienie surowców skalnych mielonych w różnych czasach  
wraz z uśrednioną medianą i modą dla dziesięciu powtórzeń

Czas, min	Diabaz		Dolomit		Wapień	
	mediana	moda	mediana	moda	mediana	moda
30	128,14	320,18	77,18	205,62	104,00	205,62
40	95,82	18,50	95,82	18,50	89,54	205,62
50	61,77	13,20	44,11	17,43	65,82	167,67
60	47,97	13,48	36,96	18,20	51,85	16,50
70	34,98	13,48	33,43	16,23	45,76	15,89
80	28,70	13,48	34,15	16,06	43,49	16,06
90	27,92	13,48	35,74	16,06	39,96	16,23
110	24,12	13,48	25,98	15,97	35,48	16,06
130	22,37	13,48	23,95	16,31	36,91	15,35
150	20,60	13,48	25,04	16,31	30,65	15,46

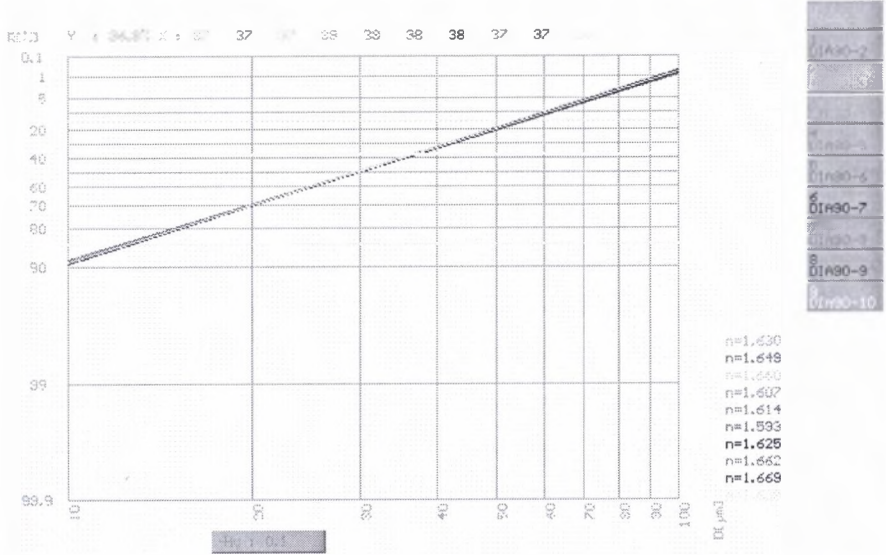


Rys. 6. Zestawienie dystrybucji analiz składu ziarnowego dolomitu mielonego w różnych czasach  
Fig. 6. The juxtaposition of grain composition distribution functions grinded during various times

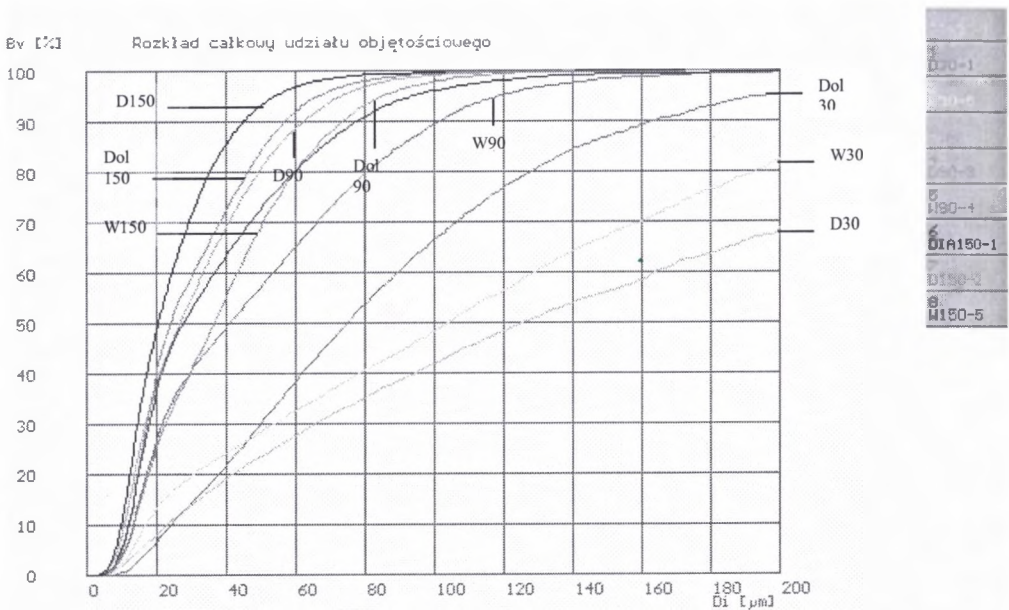
Na podstawie rozkładu funkcji RRBS i ich parametrów (ziarna charakterystycznego  $d_0$  oraz współczynnika nachylenia prostej  $n$ ) można określić zgodność wyników. Na rysunku 7 proste opisujące diabaz mielony przez 90 min posiadają bardzo zbliżone parametry, tzn.  $n$  wynosi w przybliżeniu 1,6, a  $d_0$  37-38 µm. Takie charakterystyki uzyskano dla wszystkich materiałów.

Kolejnym zagadnieniem, związanym z użyciem programu Compare, było porównanie krzywych składu ziarnowego trzech materiałów mierzonych w czasach 30, 90 i 150 min.





Rys. 7. Dystrybuanty (proste) rozkładu RRBS diabazu mielonego w czasie 90 min (dla 10 powtórzeń)  
 Fig. 7. The distribution functions (straight lines) of RRBS for diabase grinded during 90 min (for 10 repetitions)



Rys. 8. Zestawienie dystrybant składu ziarnowego dla diabazu, wapienia i dolomitu w czasach mielenia 30, 90 i 150 min  
 Fig. 8. The juxtaposition of grain composition distribution functions for diabase, limestone and dolomite in grinding times 30, 90 and 150 min

Z układu krzywych na rysunku 8 wynika, że w czasie 30 minut mielenia diabaz wykazywał się największą odpornością na rozdrabnianie w porównaniu z wapieniem i dolomitem. Dla czasów większych (90 i 150 min) podatność na mielenie diabazu uległa znacznej zmianie w stosunku do obu materiałów, wobec czego wzrosły wychody ziarn drobnych. Zgodnie z literaturą (Chodyniecka i in., 1993) diabaz z Niedźwiedziej Góry posiada zbitą strukturę drobnodziarnistą (0,03 – 0,15 mm) zbudowaną z plagioklasty zasadowego (anartytu), i mimo iż wykazuje się największą twardością i zwięzłością w stosunku do pozostałych materiałów, to jednak w kinetyce procesu mielenia najbardziej decydujące są struktura, tekstura i spójność materiału.

Dokładniejsze badania, które powinny pójść w kierunku analiz mikroskopowych, mogłyby przynieść odpowiedzi dotyczące związków pomiędzy budową surowca a czasem (energiją) potrzebnym na otrzymanie pożądanego uziarnienia (np. pęknięcia międzykrystaliczne i śródkrystaliczne ziarn).

Dla porównania stałości wyników w danych klasach ziarnowych obliczono przedziały ufności dla wartości oczekiwanej wychodu dla każdej klasy ziarnowej (16 klas dla każdego pomiaru). Założono, że rozkład wyników z każdego pomiaru w danej klasie jest rozkładem normalnym. Zgodnie z tym założeniem oszacowano przedział ufności według wzoru:

$$P\left\{\bar{x} - t_{\alpha} \frac{s}{\sqrt{n-1}} < m < \bar{x} + t_{\alpha} \frac{s}{\sqrt{n-1}}\right\} = 1 - \alpha \quad (1)$$

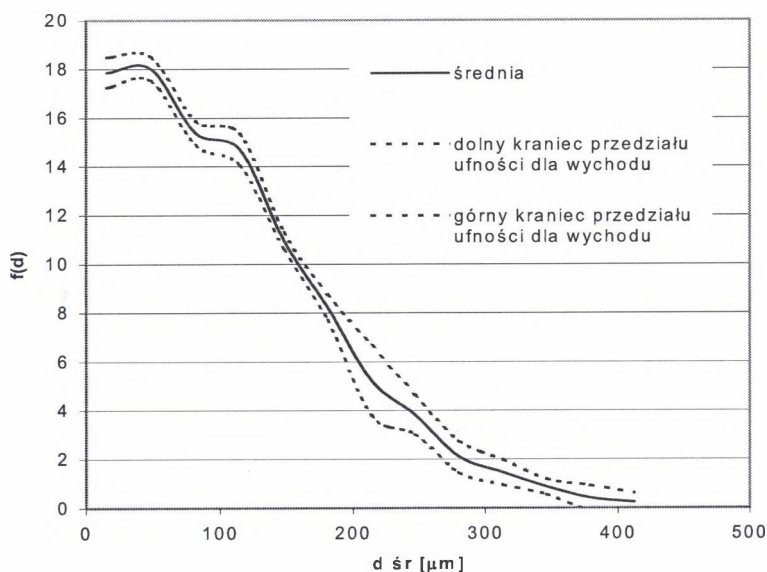
gdzie:  $\bar{x}$  – średnia arytmetyczna wychodu danej klasy ziarnowej obliczona z  $n$  pomiarów,

$s$  – odchylenie standardowe liczone wg wzoru:  $s = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}$ ,

$n$  – liczba pomiarów,

$t_{\alpha}$  – kwantyl odczytany z rozkładu  $t$ -Studenta dla  $n-1$  stopni swobody oraz założonego poziomu istotności  $\alpha=0,05$  ( $t_{0,05,9}=2,262$ ).

Na podstawie uzyskanych przedziałów ufności dla każdego materiału zaobserwowano, że dla krótkich czasów mielenia (30, 40 minut) wartości średnie w danej klasie ziarnowej wykazują dużo większy zakres zmienności niż w przypadku pozostałych czasów mielenia. Przykładowo, na rysunku 9 przedstawiono wykres empirycznej funkcji gęstości dla diabazu (40 min) wraz z odpowiadającymi jej wartościami krańcowymi przedziałów ufności dla wartości oczekiwanej.



Rys. 9. Przedziały ufności dla diabazu mielonego w czasie 40 min  
 Fig. 9. The confidence intervals for diabase grinded during 40 min

Analiza dokładności pracy urządzenia IPS-U oparta na przedziałach ufności możliwa jest tylko w ograniczonym zakresie, ponieważ szerokość przedziału ufności zależy od średniej wartości wychodu, która decyduje o dopuszczalnej wariancji. Z tego powodu znacznie lepszą interpretację daje współczynnik zmienności oparty na szerokości przedziału ufności lub odchyleniu standardowym wychodu.

W tabeli 2 zamieszczono współczynniki zmienności ( $w = \frac{s}{\bar{x}} 100$ ) [%] dla wychodów klas materiałów mielonych w czasie 40 minut. Zarówno w przypadku diabazu, dolomitu, jak i częściowo wapienia okazało się, że bardzo duże współczynniki zmienności występują w klasach grubych, co jest spowodowane charakterem analizy (w tych klasach notuje się bardzo małe liczby ziarn). Dla diabazu (prezentowanego też na rysunku 9) występują podwyższone wartości tego współczynnika dla klas pośrednich (zwłaszcza klasa 7 – poszerzenie wykresu na rysunku 9), co oznacza, że klasa ta powinna być zbadana pod względem kształtu ziarn (ich odstępstwa od przeważających kształtów). Generalnie rzecz biorąc, współczynniki kształtu powinny być używane dla wskazania klas, które powinny być badane bardziej kompleksowo.

Tabela 2

Współczynniki zmienności w poszczególnych klasach uziarnienia dla diabazu, dolomitu i wapienia mielonych w czasie 40 minut

	Diabaz	Dolomit	Wapień
Klasa 1	4,62	3,52	11,79
Klasa 2	3,58	2,45	12,25
Klasa 3	4,25	6,65	5,73
Klasa 4	5,92	1,92	3,18
Klasa 5	4,29	3,61	4,15
Klasa 6	8,34	4,82	5,82
Klasa 7	36,44	3,53	6,60
Klasa 8	27,82	6,17	7,62
Klasa 9	40,50	13,10	6,18
Klasa 10	46,91	15,21	6,86
Klasa 11	47,25	19,37	5,99
Klasa 12	161,02	37,25	6,28
Klasa 13	191,05	88,09	8,51
Klasa 14		79,09	10,18
Klasa 15		66,78	11,22
Klasa 16		81,87	39,56

## 5. Podsumowanie

W wyniku przeprowadzonych badań stwierdzono, że analizator wielkości cząstek IPS-U wykazuje się wysoką dokładnością pomiarową dla określonych 4 zakresów. Świadczą o tym podobne wartości ziarna 50-procentowego dla wszystkich materiałów, które zostały przebadane dziesięciokrotnie.

Na podstawie programu Compare potwierdzono również zgodność rozkładu RRBS (Weibulla) z rozkładami wielkości ziarn uzyskanymi empirycznie.

W wyniku badań stwierdzono, że nie wszystkie materiały mogą być analizowane w takim urządzeniu z dozownikiem ultradźwiękowym w stanie powietrzno-suchym. Przykładem jest drobnouziarniony dolomit, który wymaga przygotowania próbki w zawieszynie dla analiz wykonywanych inną aparaturą.

Ocena powtarzalności wyników na zasadzie porównywania przedziału ufności dla wartości oczekiwanej w poszczególnych klasach ziarnowych jest nieuzasadniona, ze względu na to, że szerokości tych przedziałów zależą od wielkości wariancji w danej klasie, a te są zwykle dużo wyższe dla klas o większych wychodach. Dlatego też zaleca się porównywanie wyników w klasach za pomocą współczynników zmienności.

## LITERATURA

1. Allen T.: *Particle Size Measurement*. Chapman & Hall, 1992.
2. Bernhardt C.: *Particle Size Analysis, Classification and sedimentation methods*. Chapman & Hall, 1994.
3. Bolewski A., Żabiński W.: *Metody badań mineralów i skal*. Wyd. Geologiczne, Warszawa 1979.
4. Chodyniecka L, Gabzdyl W., Kapuściński T.: *Mineralogia i petrografia dla górników*. Śląskie Wydawnictwo Techniczne, Katowice 1993.
5. Gniadek M., Gawenda T., Krawczykowski D., Tumidajski T.: *Porównanie wyników analiz składu ziarnowego produktów rozdrabniania wykonywanych różnymi metodami za pomocą rozkładów złożonych i funkcji rozmycia*. Zeszyty Naukowe Politechniki Śląskiej, seria Górnictwo, 2005 (w tym wydaniu).
6. Kordek J.: *Współczesne podejście do pomiarów granulometrycznych ziarn skrajnie drobnych*. Technika i technologia w procesach wzbogacania surowców mineralnych i odpadowych, XXVI Krakowska Konferencja Naukowo-Techniczna Przeróbki Kopalni – Ustroń 1994, Oficyna Wydawnicza Jaxa, Kraków 1994.
7. Lowrison G.C.: *Crushing and Grinding*. Butterworths, London 1974.
8. Specyfikacja systemu IPS-U nr 1061 – analizatora wielkości cząstek, materiały firmy Kamika Instruments, Warszawa 2002.

Recenzent: Prof. dr hab.inż. Stanisław Cierpisz

**Abstract**

The paper concerns the investigation into very fine materials' granulation, as well as the interpretation and substantiation of the results given by the measurements conducted by the Infrared Particle Sizer.

The purpose of this paper was to determine the measurements' preciseness of this device, as well as to investigate the correlation between the materials' properties (resulting from their nature) and the results from analyzer IPS (which take the nature of measuring method into consideration).

The construction and the work rule of the Infrared Particle Sizer were presented in the paper. The method of grain size measurement applied in this device and the detailed characteristics of grain size analyzing methods were described too.

The experimental part of work contained granulometric analyses of the following mineral raw materials which were dolomite, limestone and diabase. Their physical, mechanical and chemical properties were significantly different. In purpose to prepare the samples to analysis, the materials were grinded during different times, so the changes in granulation might be investigated dependently on grinding time.

The methodology of the research included the comparison of characteristic for each material grain sizes  $d_{50}$  in relation with their various grinding time. It was ascertained that the Infrared Particle Sizer gives very precise measurements for the selected four ranges. To compare the stability of results in certain grain classes, the confidence intervals for the yield mean value were calculated for every grain class (sixteen classes for each measurement). However, the authors recommend the comparison of results in classes by changeability coefficients founded on the confidence interval's width and yield standard deviation. The research also confirmed that not every material may be analyzed in air-dry state. Furthermore, in base of Compare program, the compatibility of RRBS distribution function parameters  $n$  and  $d_0$  was proved.