

## ГРАНУЛООБРАЗОВАНИЕ В ПОРОШКООБРАЗНЫХ МАТЕРИАЛАХ ПРИ ИСПОЛЬЗОВАНИИ ТЕХНОЛОГИИ «FATTENING»

Р.В. Морозов, аспирант, Ю.А.Таран, ассистент,

А.Л. Таран, профессор

*кафедра Процессов и аппаратов химической технологии им. Н.И. Гельперина*

*МИТХТ им. М.В. Ломоносова, Москва, 119571 Россия*

*e-mail: morozovrv@list.ru*

**Р**ассмотрен процесс гранулообразования при использовании технологии «fattening» в грануляторах тарельчатого типа. Дано математическое описание различных вариантов протекания процесса, в том числе с учетом зарождения гранул и их возможного дробления.  
**Ключевые слова:** гранулирование, капсулирование, математическое моделирование.

Развитие технологии догранулирования окатыванием связано, в первую очередь, с необходимостью получения гранул более крупного размера со значительно лучшими качественными показателями, чем те, которые удается получить в грануляционных башнях [1, 2]. Догранулирование исходных гранул можно проводить расплавами, растворами, суспензиями, порошками, со связующим и без него [3]. При этом можно менять состав гранулируемого продукта или капсулировать полученные гранулы [3].

Процесс осуществляют в аппаратах с лопастными мешалками или шнеками, во вращающихся барабанах, на вращающихся тарелках с наклонной осью [3] и других типах грануляторов [2].

Fattening – процесс догранулирования исходных гранул (часто получаемых приллированием и поэтому недостаточно прочных) порошком (со связующим или без него) окатыванием в аппаратах, в том числе, тарельчатого типа [3].

При разработке процесса необходимо избегать как зарождения гранул, так и их дробления. Поскольку процесс увеличения размера гранулы является случайным, для описания распределения гранул по размерам, использовали уравнение Фоккера–Планка [4]:

$$\frac{\partial n(r, \tau)}{\partial \tau} = \frac{\partial}{\partial r} \left[ -v_+ n(r, \tau) + (D_+ + D_-) \frac{\partial n(r, \tau)}{\partial r} \right], \quad (1)$$

где  $v_+$  – средняя скорость изменения размера гранул;  $D_+$ ,  $D_-$  – коэффициенты флуктуации скорости изменения размера гранулы,  $n$  – плотность распределения гранул по размерам,  $\tau$  – время.

Начальное условие:

$$n(r, 0) = n_0(r);$$

граничное условие:

$$n(0, \tau) = 0; \quad n(\infty, \tau) = 0;$$

и условие нормировки:

$$\int_0^{\infty} n(r, \tau) dr = 1.$$

Решение можно записать в виде [5]:

$$n(r, \tau) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \int_0^{\infty} \left[ \frac{\exp \left[ -\frac{1}{2} \left( \frac{re^{(\mu_- - \mu_+) \tau} - 1}{\sigma} \right)^2 \right]}{\exp \left[ -\frac{1}{2} \left( \frac{re^{(\mu_- - \mu_+) \tau} + 1}{\sigma} \right)^2 \right]} \right] \times \times n_0(\xi) d\xi, \quad (2)$$

$$\text{где } \sigma^2 = \frac{D_+ + D_-}{\mu_- - \mu_+} \left[ e^{2(\mu_- - \mu_+) \tau} - 1 \right], \quad \mu_{\pm} = \frac{v_{\pm}}{r}$$

– частота отрыва и присоединения частиц,  $v_{\pm}$  – скорость роста (разрушения) гранул.

Уравнение (1) решается, в том числе, численно и графоаналитическим методами.

При расчете методом конечных разностей мы решали упрощенный вариант уравнения (1) [6]:

$$\frac{d\psi(x, \tau)}{d\tau} + \frac{d}{dx} [\lambda(x, \tau)\psi(x, \tau)] = 0, \quad (3)$$

$$\text{где } \psi \equiv n, \quad x \equiv r, \quad \lambda \equiv v_n, \quad (D_+ + D_-) \equiv 0.$$

В качестве начальных данных использовали распределение по размерам гранул аммиачной селитры по ГОСТ 2-85 [1]:

$d_{гр}$ , мм	0-1	1-2	2-3	3-4	4-5
$n$ , %	3	12.5	70	12.5	2

Линейную скорость роста гранул известково-аммиачной селитры брали с использованием ранее полученных экспериментальных данных по предложенной нами методике ее определения [3, 7].

Численное решение уравнения (1) в случае отсутствия дробления гранул представлено на рис. 1.

Дробление и агломерация гранул в данном случае игнорируются. Это идеальный с практической точки зрения вариант проведения процесса «fattening».

Допустим, что как и в предыдущем случае отсутствует зарождение гранул, но имеет место их частичное дробление (с долей  $\phi$ ).

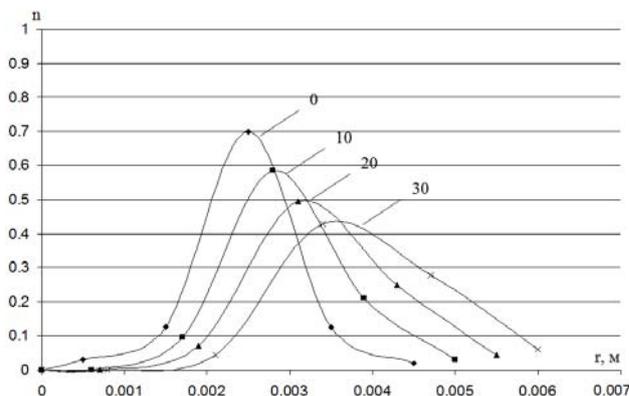


Рис. 1. Изменение плотности распределения гранул известково-аммиачной селитры по размерам  $n$  с течением времени. Цифры у кривых – время, с.

Тогда модифицируем уравнение Фоккера-Планка с учетом очевидных соотношений закона сохранения субстанции и выражения для производной по времени от интеграла искомой функции  $n(r, \tau)$  по подвижному объему  $V(\tau)$ , замыкаемому поверхностью  $S(\tau)$ , полагая, что дробление дает два осколка:

$$\begin{aligned} \frac{d}{d\tau} \int_{S(\tau)} n dV &= \int_{S(\tau)} q_{\pm} dS + \int_{S(\tau)} \varphi q_n dS + \\ &+ \int_{S(\tau)} 2\varphi q_n dS \Rightarrow \int_{V(\tau)} \left[ \frac{dn}{d\tau} + \text{div}(v_n n) \right] dV = \\ &= \int_{V(\tau)} \text{div} q_{\pm} dV + \int_{V(\tau)} \text{div} \varphi q_n dV + \int_{V(\tau)} \text{div} 2\varphi q_n dV, \end{aligned} \quad (4)$$

где  $q_{\pm} = (D_+ + D_-) \nabla n$ ,  $q_n = v_n n$ ,  $v_n$  – линейная скорость роста гранул,  $\nabla$  – оператор Гамильтона.

Переходя к дифференциальной форме уравнения (4), имеем:

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(r, \tau)}{\partial \tau} &= \frac{\partial}{\partial r} \left[ -(1 - \varphi) v_n n(r, \tau) + \right. \\ &+ (D_+ + D_-) \frac{\partial n(r, \tau)}{\partial r} \left. \right] + \frac{\partial}{\partial r'} (2\varphi v_n n(r, \tau)), \end{aligned} \quad (5)$$

где  $r$  – текущий для сферических и  $r'$  – эквивалентный для несферических радиус осколков; в общем случае, если дробление происходит на  $\xi$  осколков, то  $r' = r / \sqrt[\xi]{\xi}$ , уравнение (5) принимает вид:

$$\begin{aligned} \frac{\partial n}{\partial \tau} &= \frac{\partial}{\partial r} \left[ -(1 - \varphi)(1 - 2\sqrt[\xi]{\xi}) v_n(r) n + \right. \\ &+ [D_+(r) + D_-(r)] \frac{\partial n}{\partial r} \left. \right]. \end{aligned} \quad (6)$$

Численное решение уравнения (6) методом конечных разностей [8] с использованием неявной схемы в случае дробления гранул на 2 частицы равного размера с долей дробящихся гранул  $\varphi$ , равной 0,5, приведено на рис. 2. По сравнению с приведенным на рис. 1 случаем, имеем «дрейф» плотности распределения во времени, заметный на рис. 2. Наблюдается увеличение полидисперсности

получаемого продукта в случае, когда технологически не предотвращается дробление обрабатываемых гранул. Это хорошо согласуется с практикой. Результаты расчетов расходились с экспериментом не более чем на  $10 \pm 2\%$  с вероятностью 95%. Рассмотрены также варианты, в которых отсутствует дробление гранул, но наблюдается их зарождение в исходном порошке.

Начнем со случая, когда гранулы зарождаются и растут, но не дробятся.

В общем виде уравнение запишется [3]:

$$\eta(\tau_k) = \int_{\tau_{инд}}^{\tau_k} \beta \left[ \int_{\tau}^{\tau_k} v_n(\tau') d\tau' \right]^n w_3(\tau) \times \times [\eta_{max} - \eta(\tau)] d\tau, \quad (7)$$

где  $\eta(\tau)$  – степень превращения порошка,  $\tau_k$  – время окончания процесса,  $\tau_{инд}$  – время образования первого зародыша,  $w_3$  – скорость зародышеобразования,  $\eta_{max}$  – максимальная степень превращения порошка.

Численный алгоритм решения задачи с шагом по времени  $\Delta\tau_1$ :

$$\begin{aligned} K(\Delta\tau_1) &= \omega_3 \Delta\tau_1; \\ \eta(\Delta\tau_1) &= \frac{4}{3} \pi \left( v_n \frac{\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3 \Delta\tau_1, \end{aligned} \quad (8)$$

где:  $K(\Delta\tau_1)$  – количество гранул,  $w_3$  – скорость зародышеобразования,  $\eta(\tau)$  – степень превращения порошка,  $v_n$  – линейная скорость роста гранулы.

На следующем шаге происходит как зарождение новых гранул, так и рост гранул, образовавшихся на предыдущем шаге:

$$\begin{aligned} K(2\Delta\tau_1) &= \omega_3 \Delta\tau_1 + \omega_3 \Delta\tau_1 [1 - \eta(\Delta\tau_1)]; \\ \eta(2\Delta\tau_1) &= \frac{4}{3} \pi \left[ \left( v_n \frac{3\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3 \Delta\tau_1 + \right. \\ &+ \left. \left( v_n \frac{\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3 \Delta\tau_1 [1 - \eta(\Delta\tau_1)] \right]. \end{aligned} \quad (9)$$

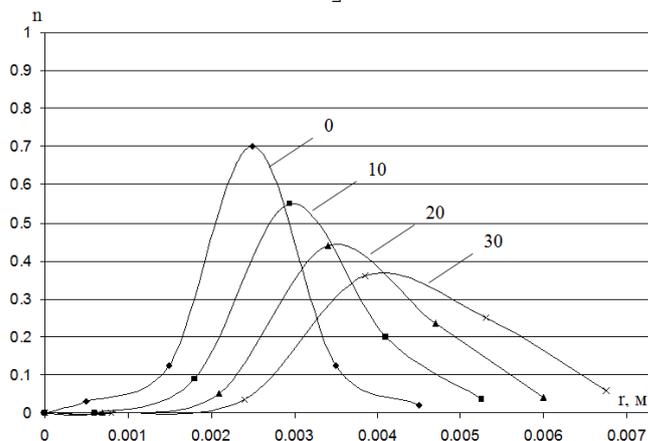


Рис. 2. Изменение плотности распределения гранул  $n$  известково-аммиачной селитры по размерам с течением времени. Цифры у кривых – время, с.

То же на третьем шаге:

$$\begin{aligned}
 K(3\Delta\tau_1) &= \omega_3\Delta\tau_1 + \omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(\Delta\tau_1)] + \\
 &+ \omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(2\Delta\tau_1)], \\
 \eta(3\Delta\tau_1) &= \frac{4}{3}\pi \left[ \left( v_{л} \frac{5\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3\Delta\tau_1 + \right. \\
 &+ \left( v_{л} \frac{3\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3\Delta\tau_1 [1-\eta(\Delta\tau_1)] + \\
 &+ \left. \left( v_{л} \frac{\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3\Delta\tau_1 [1-\eta(2\Delta\tau_1)] \right].
 \end{aligned}
 \tag{10}$$

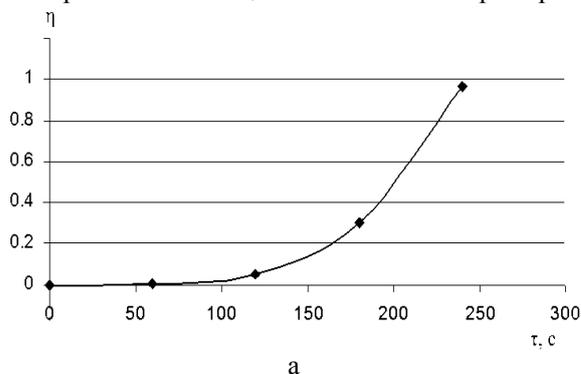
Поскольку дробления не происходит, то в конечном итоге число «сортов» гранул совпадает с числом шагов:

$$\begin{aligned}
 K(4\Delta\tau_1) &= \omega_3\Delta\tau_1 + \omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(\Delta\tau_1)] + \\
 &+ \omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(2\Delta\tau_1)] + \omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(3\Delta\tau_1)], \\
 \eta(4\Delta\tau_1) &= \frac{4}{3}\pi \left[ \left( v_{л} \frac{7\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3\Delta\tau_1 + \right. \\
 &+ \left( v_{л} \frac{5\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3\Delta\tau_1 [1-\eta(\Delta\tau_1)] + \\
 &+ \left( v_{л} \frac{3\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3\Delta\tau_1 [1-\eta(2\Delta\tau_1)] + \\
 &+ \left. \left( v_{л} \frac{\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3\Delta\tau_1 [1-\eta(3\Delta\tau_1)] \right].
 \end{aligned}
 \tag{11}$$

и т.д.

В результате расчетов по приведенным формулам получили зависимости степени превращения порошка от времени и распределения частиц по размерам в случае отсутствия процесса дробления, приведенные на рис. 3 а, б.

Вышеизложенный вариант процесса, но с дроблением, рассматривали для случаев: распада на мелкую и крупную частицу, распада на две одинаковых частицы и, когда треть частиц распадается на 1/3 и 2/3 объема, треть распадается на 3 равных частицы. В качестве примера



приведена часть формул для случая, когда на каждом шаге по времени половина гранул дробится на две равные по объему части, а половина – продолжает расти без изменений.

$$\begin{aligned}
 K(\Delta\tau_1) &= \omega_3\Delta\tau_1, \\
 \eta(\Delta\tau_1) &= \frac{4}{3}\pi \left( v_{л} \frac{\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3\Delta\tau_1.
 \end{aligned}
 \tag{12}$$

$$\begin{aligned}
 K(2\Delta\tau_1) &= \frac{3}{2}\omega_3\Delta\tau_1 + \\
 &+ \omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(\Delta\tau_1)], \\
 \eta(2\Delta\tau_1) &= \frac{4}{3}\pi \left[ \left( v_{л} \frac{3\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \frac{\omega_3\Delta\tau_1}{2} + \right. \\
 &+ \left( v_{л} \frac{\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \frac{2\omega_3\Delta\tau_1}{2} + \\
 &+ \left. \left( v_{л} \frac{\Delta\tau_1}{2} \right)^3 \omega_3\Delta\tau_1 [1-\eta(\Delta\tau_1)] \right]
 \end{aligned}
 \tag{13}$$

$$\begin{aligned}
 K(3\Delta\tau_1) &= \frac{9}{4}\omega_3\Delta\tau_1 + \frac{3}{2}\omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(\Delta\tau_1)] + \\
 &+ \omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(2\Delta\tau_1)], \\
 \eta(3\Delta\tau_1) &= \frac{4}{3}\pi \left[ \left( v_{л} \frac{15\Delta\tau_1}{6} \right)^3 \frac{\omega_3\Delta\tau_1}{4} + \right. \\
 &+ \left( v_{л} \frac{9\sqrt{\frac{1}{2}+6}}{6} \Delta\tau_1 \right)^3 \frac{2\omega_3\Delta\tau_1}{4} + \\
 &+ \left. \left( v_{л} \frac{9\sqrt{\frac{1}{2}+6}}{6} \Delta\tau_1 \right)^3 \frac{2\omega_3\Delta\tau_1}{4} + \right. \\
 &+ \left. \left( v_{л} \frac{9\sqrt{\frac{1}{2}+6}}{6} \Delta\tau_1 \sqrt{\frac{1}{2}} \right)^3 \frac{4\omega_3\Delta\tau_1}{4} \right].
 \end{aligned}
 \tag{14}$$

$$\begin{aligned}
 K(3\Delta\tau_1) &= \frac{9}{4}\omega_3\Delta\tau_1 + \frac{3}{2}\omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(\Delta\tau_1)] + \\
 &+ \omega_3\Delta\tau_1[1-\eta(2\Delta\tau_1)], \\
 \eta(3\Delta\tau_1) &= \frac{4}{3}\pi \left[ \left( v_{л} \frac{15\Delta\tau_1}{6} \right)^3 \frac{\omega_3\Delta\tau_1}{4} + \right. \\
 &+ \left( v_{л} \frac{9\sqrt{\frac{1}{2}+6}}{6} \Delta\tau_1 \right)^3 \frac{2\omega_3\Delta\tau_1}{4} + \\
 &+ \left. \left( v_{л} \frac{9\sqrt{\frac{1}{2}+6}}{6} \Delta\tau_1 \sqrt{\frac{1}{2}} \right)^3 \frac{4\omega_3\Delta\tau_1}{4} \right].
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 &+ \left( v_{л} \frac{9\sqrt{\frac{1}{2}+6}}{6} \Delta\tau_1 \right)^3 \frac{2\omega_3\Delta\tau_1}{4} + \\
 &+ \left( v_{л} \frac{9\sqrt{\frac{1}{2}+6}}{6} \Delta\tau_1 \sqrt{\frac{1}{2}} \right)^3 \frac{4\omega_3\Delta\tau_1}{4} \right].
 \end{aligned}
 \tag{14}$$

$$\begin{aligned}
 &+ \left( v_{л} \frac{9\sqrt{\frac{1}{2}+6}}{6} \Delta\tau_1 \right)^3 \frac{2\omega_3\Delta\tau_1}{4} + \\
 &+ \left( v_{л} \frac{9\sqrt{\frac{1}{2}+6}}{6} \Delta\tau_1 \sqrt{\frac{1}{2}} \right)^3 \frac{4\omega_3\Delta\tau_1}{4} \right].
 \end{aligned}$$

и т.д.

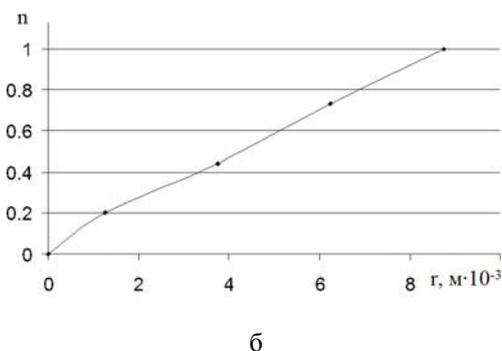


Рис. 3. Зависимости степени превращения η порошка мела, обрабатываемого связующим, от времени (а) и плотности распределения гранул мела n по радиусу в случае отсутствия дробления (б).

Результаты расчетов для вышеуказанного продукта приведены в качестве примера на рис. 4 а, б.

Разработана программа для реализации алгоритма, позволяющего учесть влияние дробле-

ния и агломерации в произвольных соотношениях. Этот алгоритм теоретически описан в [3]. Разработанная блок-схема программы реализации этого алгоритма представлена ниже.

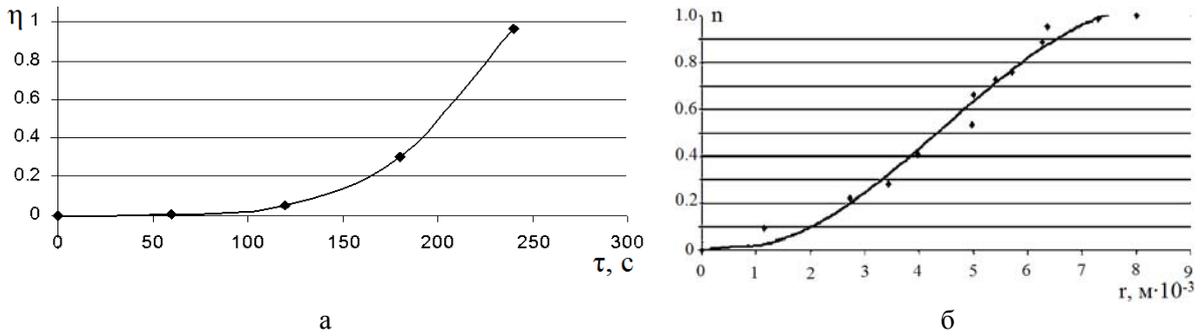


Рис. 4. Зависимости степени превращения  $\eta$  порошка мела, обрабатываемого связующим, от времени (а) и плотности распределения гранул мела  $n$  по радиусу (б) в случае дробления на две равные части половины имеющихся гранул (сплошная линия – расчет, точки – эксперимент).

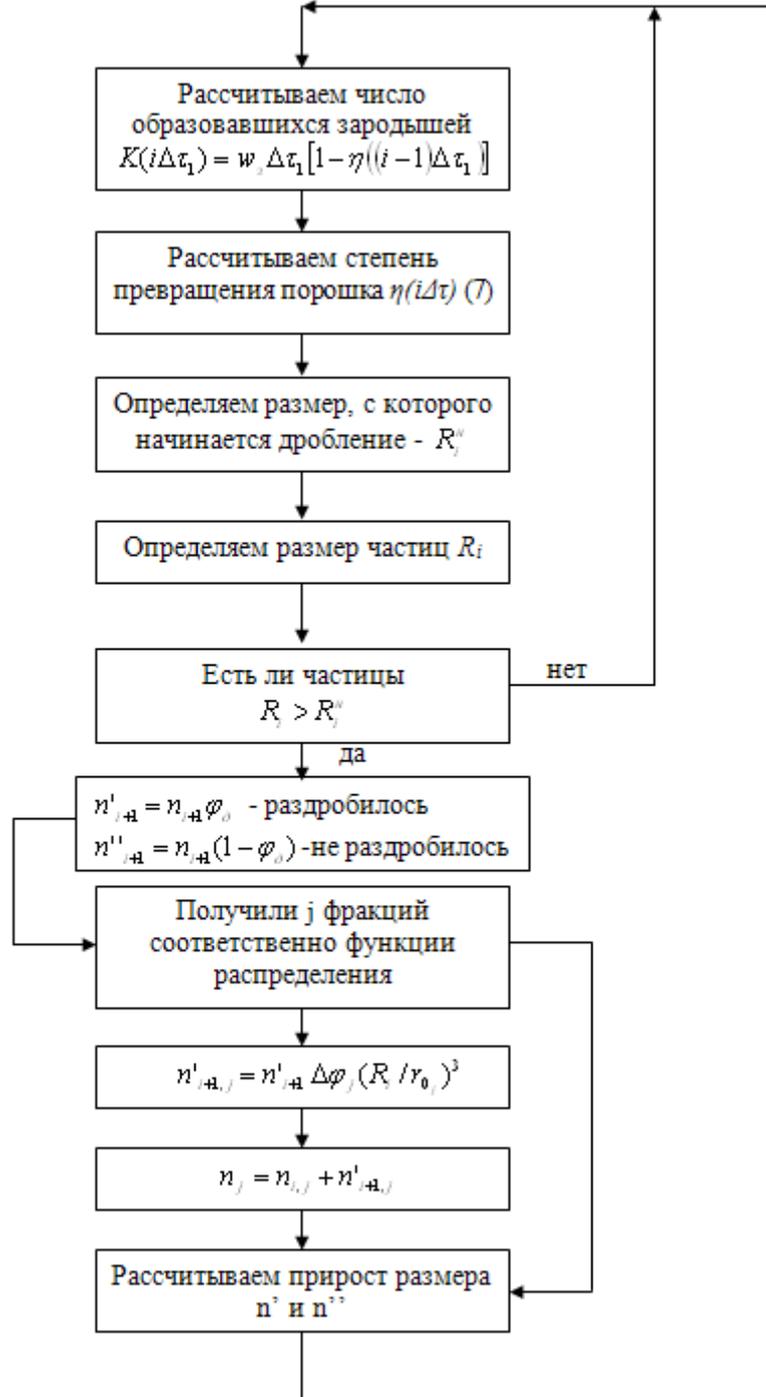


Рис. 4. Блок-схема программы реализации алгоритма расчета.

#### ЛИТЕРАТУРА:

1. Производство аммиачной селитры в агрегатах большой единичной мощности / Под ред. В.М. Олевского. – М.: Химия, 1990. 285 с.
2. Классен П.В., Гришаев И.Г. Основные процессы технологии минеральных удобрений. – М.: Химия, 1990. 304 с.
3. Таран А.Л. Теория и практика процессов гранулирования расплавов и порошков : дис. ... д-ра техн. наук. – М.: МИТХТ, 2001. 487 с.
4. Бейбалаев В.Д. Обобщенное уравнение Фоккера–Планка и его применение к задачам тепло-массопереноса // Современ. проблемы науки и образования. 2007. № 1. С. 7–12.
5. Васенин Н.В., Кузнецов А.А., Сирота И.С. Кинетика гранулирования сыпучих материалов в барабанном грануляторе-окатывателе // Хим. пром. 1992. № 12. С. 33–37.
6. Одинцов А.В. Капсулирование гранул минеральных удобрений в гетерофазные оболочки : дис. ... канд. техн. наук. – Иваново: ИГХТУ, 2010. 129 с.
7. Таран Ю.А. Разработка и анализ процессов гранулирования расплавов с использованием экологически безопасных энергосберегающих схем : дис. ... канд. техн. наук. – М.: МИТХТ, 2011. 254 с.
8. Самарский А.А. Теория разностных схем. – М.: Наука, 1983. 616 с.

## GRANULATION OF POWDER MATERIALS WHEN USING «FATTENING» TECHNOLOGY

R.V. Morozov<sup>@</sup>, Yu.A. Taran, A.L. Taran

*M.V. Lomonosov Moscow University of Fine Chemical Technologies, Moscow, 119571 Russia*

<sup>@</sup> *Corresponding author e-mail: morozovrv@list.ru*

*In this paper we considered the granules formation process using the "fattening" technology in a granulation bowl. Development of rolling overgranulation technology primarily due to the need to obtain granules of larger size with much better quality indicators than those that can be attained in granular towers. Also, this technology gives granules with a complex chemical composition. Fattening is the process of overgranulation of an initial pellet by powder (with or without binding) by rolling in different devices, including bowls. The mathematical description of various embodiments of the process: with or without the birth of pellets. Besides, the process of fragmentation of the granules is considered separately. Fragmentation is usually an undesirable process, but sometimes it is not possible to get rid of it. The calculation results obtained by the models are represented as a series of graphic dependencies. We also develop algorithms that allow for the effect of fragmentation and agglomeration in arbitrary ratios. A block diagram of the implementation of the algorithm is also presented in the paper.*

**Key words:** *granulation, encapsulation, mathematical modeling.*