

Abschlussbericht

Mathematische Modellierung der Partikelformulierung in Trommelgranulatoren

Jun.-Prof. Dr.-Ing. Andreas Bück, M.Sc. Christian Rieck, Thermische Verfahrenstechnik/NaWiTec,
Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Universitätsplatz 2, 39106 Magdeburg

Fördernummer: 3377

Förderzeitraum: 01.07.2014 – 30.06.2015

Einleitung

Die Granulation, in rotierenden, zylindrischen Trommeln ist ein robuster und apparativ einfacher Prozess, der vielfach in der Feststoffindustrie zum Einsatz kommt. Der Apparat besitzt einen einfachen Aufbau, der im Vergleich zu anderen Apparatetechnologien, z.B. Wirbelschichten oder Tellergranulatoren, günstig in der Anschaffung, im Betrieb und in der Wartung ist. Daher sind rotierende Trommeln eine wichtige Alternative für die Herstellung von partikulären Produkten mit niedrigen Margen und in technologisch schwierigen Umgebungen, z.B. in Schwellen- und Entwicklungsländern. Beispiele für die industrielle Anwendung im Niedertemperaturbereich finden sich z.B. in der Produktion von Wasch- und Düngemitteln [1, 2, 3], sowie bei der Trocknung verschiedener Stoffe, z.B. Zucker oder pflanzlichen Produkten [4, 5]. Im Hochtemperaturbereich wird eine Partikelformulierung z.B. zur Behandlung von Erzen [6] durchgeführt. Die in der Trommel ablaufenden Prozesse, die zur Partikelbildung führen, können hingegen sehr vielfältig sein und komplexe, wechselseitig verkoppelte Einflüsse auf die Produktqualität haben. Eine Nichtberücksichtigung dieser Zusammenhänge bei der Auslegung bzw. im Betrieb eines Trommelgranulators kann zu einer verminderten Produktivität oder Produktqualität führen.

Ziel dieses Forschungsprojektes war es, ein populationsdynamischen Modells der Partikelbildung durch schichtweises Wachstum und Agglomeration, welches sowohl die Größe als Partikeleigenschaft wie auch die örtliche Verteilung des Feststoffes in der Trommel berücksichtigt, zu entwickeln, um mit diesem die Einflüsse der Apparateigenschaften und Betriebsparameter auf wichtige Produkteigenschaften, z.B., Partikelgrößenverteilung, Schüttdichte oder chemische Zusammensetzung zu untersuchen. Diese Ergebnisse können dann zur optimierten Prozessauslegung, zur Überwachung oder modellgestützten Prozessführung eingesetzt werden.

Prozessbeschreibung

Als konkretes Fallbeispiel wurde die Herstellung von NPK-Superphosphaten betrachtet. Diese Klasse von Düngemitteln wird über bestimmte Mengenverhältnisse von Stickstoff (N), Phosphat (P) und Kalium (K) charakterisiert. Die bekanntesten Vertreter sind Monoammoniumphosphat (MAP), Diammoniumphosphat (DAP) und Diammoniumsulfat (DAS). Aus Sicht der Produktqualität sind für bestimmte Böden und Saaten unterschiedliche Zusammensetzungen erforderlich, um eine gezielte zeitgesteuerte Freisetzung der Komponenten zu erreichen, zudem wird eine spezifische Partikelgrößenverteilung benötigt.

Die Herstellung von NPK-Superphosphaten in rotierenden Trommeln besteht aus mehreren miteinander verkoppelten Teilprozessen: Slurry-Herstellung, chemische Reaktionen, Trocknung, Kristallisation und die Partikelbildung durch Schichtwachstum und Agglomeration. Am Herstellungsprozess sind im Wesentlichen zehn Komponenten in unterschiedlichen Aggregatzuständen beteiligt: NH_3 , MAP, DAP, DAS, inertes Füllmaterial, H_3PO_4 , H_2SO_4 , KCl, H_2O und Luft.

In einem *Preneutraliser* genannten Rührkessel wird zunächst eine flüssige Mischung der Komponenten vorgelegt. Dabei kommt es im Rührkessel bereits zu ersten chemischen Reaktionen in der Flüssigphase, sowie zur Kristallisation von Feststoffkeimen, so dass insgesamt eine dünnflüssige Slurry erzeugt wird, die als Reaktionsprodukt hauptsächlich MAP enthält. Die Slurry wird dann in die rotierende Trommel gepumpt, in der sich bereits Füllmaterial, sowie teilweise im Kreislauf gefahrenes Produkt befinden. Die Slurry benetzt die Partikel in der Trommel und durch Verdampfung der Flüssigkeit kommt es zum Abscheiden von Feststoffschichten bzw. zur Ausbildung von Feststoffbrücken, die zu einem schichtweisen Größenwachstum oder der Bildung von Agglomeraten führen. Innerhalb der Trommel laufen weitere chemische Reaktionen ab, insbesondere durch die Zugabe flüssigen Ammoniaks zur Einstellung des Stickstoffanteiles. Weiterhin kommt es zu Bildung von DAP und DAS bzw. je nach Massenanteil und Zusammensetzung des Füllmaterials zu weiteren NPK-Produkten. Die zur Verdampfung des Wassers benötigte Energie wird durch die exothermen Bildungsreaktionen bereitgestellt. Am Austritt der Trommel werden die Partikel in eine Produktfraktion und Ober- und Unterkorn klassiert. Ober- und Unterkorn werden, ggf. nach Mahlung, in den Einlass der Trommel zurückgeführt. Dabei können Rücklaufverhältnisse, bezogen auf den Produktstrom, von bis zu 7:1 entstehen. Eine Verringerung dieser Verhältnisse würde somit zu kleineren Apparaten und höherem Produktdurchsatz führen.

Mathematische Modellierung und numerische Implementierung

Die mathematische Beschreibung der ablaufenden Prozesse erfolgte mit Hilfe von Massen- und Energiebilanzen für das Reaktionssystem und den daran beteiligten Komponenten, sowie auf Basis von Populationsbilanzen [7]. Dabei wurde als interne Eigenschaftskordinate das Partikelvolumen betrachtet, als externe Koordinate die Apparatelänge um auch die örtliche Verteilung der Partikel berücksichtigen zu können. Die Kristallisation wurde als Fällungskristallisation auf Basis aus Literaturdaten extrahierten Sättigungskurven der Lösung modelliert. Der Agglomerationsprozess kann zur Zeit wahlweise durch eine größenunabhängige oder eine größenabhängige Kinetik (Summen-, Produktkern) beschrieben werden; das Schichtwachstum wird über das etablierte Modell nach [8] abgebildet.

Das entstehende Gleichungssystem zur Beschreibung der Partikelbildung besteht neben algebraischen Gleichungen und gewöhnlichen Differentialgleichungen zur Beschreibung des Reaktions- und Kristallisationssystems, auch aus partiellen Integrodifferentialgleichungen zur Beschreibung der Partikelbildung. Zur numerischen Simulation des Gesamtgleichungssystems wurden die partiellen Integrodifferentialgleichungen in gekoppelte Systeme von gewöhnlichen Differentialgleichungen mit Hilfe von Finite-Volumen-Methoden [9, 10] und der Cell-Average-Methode [11] umgewandelt.

Simulationsergebnisse

Mit dem abgeleiteten Modell wurden verfahrenstechnisch relevante Parameterstudien durchgeführt, unter anderem um Beziehung zwischen Produktqualität (mittlerer Partikeldurchmesser und Schüttporosität am Trommelaustritt) und den Betriebsparametern abzuleiten. Alle Berechnungen wurden dabei dynamisch durchgeführt, ausgehend von an praktischen Anlagen orientierten nominellen Prozessparametern. Die Ergebnisse der Parameterstudien wurden für den stabilen stationären Betriebszustand ausgewertet, dazu konnte auf Daten einer Industrieanlage zurückgegriffen werden. Das entwickelte Prozessmodell ist dabei nicht nur in der Lage die Komponentenmassen und Produktzusammensetzungen zu berechnen, sondern auch die stationäre (Produkt-)Größenverteilung der NPK-Partikel.

Auf Basis des entwickelten Modells konnten auch erste Untersuchungen zum dynamischen Verhalten extern klassierender, kontinuierlicher Agglomerationsprozesse durchgeführt werden, d.h. eine Unterteilung des Prozessparameterraumes in Gebiete in denen ein stabiler kontinuierlicher Betrieb möglich ist, oder in denen

nicht stabiles Prozessverhalten vorliegt. Die Ergebnisse zeigen eine vielfältige Dynamik in Abhängigkeit der Produktspezifikationen und Prozessparameter.

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieses Forschungsvorhabens konnte ein populationsdynamisches Modell entwickelt werden, das die Partikelformulierung von NPK-Superphosphaten in rotierenden Trommeln beschreibt. Dabei werden neben den Reaktionen, die für die Einstellung einer benötigten Zusammensetzung ablaufen, auch die räumliche Ausdehnung des Apparates, sowie die partikelbildenden Prozesse Schichtwachstum und Agglomeration berücksichtigt. Mit Hilfe des Modells können die Einflüsse der Apparate- und Betriebsparameter auf die Partikel- bzw. Produkteigenschaften untersucht werden. Diese Ergebnisse können dann zur optimierten Prozessauslegung, zur Überwachung oder modellgestützten Prozessführung eingesetzt werden.

Teile der erzielten Ergebnisse dienen als Grundlage für die Beantragung eines DAAD-Austauschprogramms (PROBRAL) zur Herstellung von Enzymen in Festbettfermentatoren unter Beteiligung der Universitäten Sao Paulo (UNESP) und Uberlandia (UFU), sowie des ATB Potsdam-Bornim.

Veröffentlichungen

Ausgewählte Ergebnisse dieser Forschungsarbeit wurden auf der ProcessNet-Fachgruppentagung „Agglomerations- und Schüttguttechnik“ 2015 in Magdeburg vorgestellt: A. Bück, C. Rieck, „*Mathematische Modellierung der Partikelbildung in Trommelgranulatoren*“ (Vortrag).

Eine Publikation befindet sich momentan bei *Chemie Ingenieur Technik* (CIT) in der Begutachtung: A. Bück, C. Rieck, „*Mathematische Modellierung der Partikelbildung in Trommelgranulatoren*“, eingereicht am 18.02.2015.

Ein Beitrag zur Dynamik der kontinuierlichen Agglomerationsprozesse wurde auf der PARTEC 2016 eingereicht und als Vortragspräsentation angenommen: M. Wegner, C. Neugebauer, S. Palis, A. Bück: *Analysis of the process behaviour of continuous agglomeration with external product classification*. Eine Einreichung zu diesem Thema ist für die ProcessNet-Fachgruppentagung „Agglomerations- und Schüttguttechnik“ 2016 in Vorbereitung.

Literaturliste

- [1] J. Degève, J. Baeyens, M. Van de Velden, S. De Laet, *Powder Technol.* **2006**, 163, 188.
- [2] K. Flores, M. Schönherr, H. Feise, *Powder Technol.* **2009**, 189, 327.
- [3] A. Bück, E. Tsotsas, K. Sommer, *Size Enlargment*, in: B. Elvers (Ed.) *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*, VCH-Wiley, Weinheim, **2014**.
- [4] A. Iguaz, A. Esnoz, G. Martínez, A. López, P. Vírveda. *Journal of Food Engineering* **2003**, 59, 151.
- [5] S.M. Savaresi, R.R. Bitmead, R. Peirce, *Control Engineering Practice* **2001**, 9, 249.
- [6] P.A.L. Wauters, R. van de Water, J.D. Litster, G.M.H. Meesters, B. Scarlett, *Powder Technol.* **2002**, 124, 230.
- [7] D. Ramkrishna, *Population balances: Theory and application to particulate systems in engineering*, Academic Press, New York, USA, **2000**.
- [8] L. Mörl, S. Heinrich, M. Peglow, in: *Granulation* (Eds. A.D. Salman, M.J. Hounslow, J.P.K. Seville), Elsevier B. V., Amsterdam, NL, **2007**.
- [9] T.J.R. Hughes, *The finite element method: linear static and dynamics finite element analysis*, Dover Publications, Mineola, US, **2000**.
- [10] R.J. LeVeque, *Numerical Methods for Conservation Laws*, Birkhäuser-Verlag, Basel, **1990**.
- [11] J. Kumar, M. Peglow, G. Warnecke, S. Heinrich, L. Mörl, *Chem. Eng. Sci.* **2006**, 61, 3327.