

Modellazione di un processo industriale di granulazione ad umido

Modellazione di un processo industriale di granulazione ad umido

Serena De Stefano

Serena De Stefano



UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI SALERNO

Dipartimento di Ingegneria Industriale

Corso di Laurea in Ingegneria Chimica

Modellazione di un processo industriale di granulazione ad umido

Tesi in

Principi di Ingegneria Chimica

Relatori:

Prof. Ing. Gaetano Lamberti

Ing. Diego Caccavo

Candidata:

Serena De Stefano

matricola 0612201737

Anno Accademico 2017/2018

Alla mia famiglia

Questo testo è stato stampato in proprio, in Times New Roman

La data prevista per la discussione della tesi è il 29/03/2019

Fisciano, 18/03/2019

Sommario

Sommario	I
Indice delle figure	III
Indice delle tabelle	IX
Abstract	XI
Introduzione.....	1
1.1 Granulometria _____	2
1.1.1 Funzioni di distribuzione numeriche	2
1.1.2 Funzioni di distribuzione massiche	4
1.1.3 Relazione tra distribuzioni numeriche e massiche	5
1.2 Definizione e scopi della granulazione _____	6
1.2.1 Tecniche di granulazione	7
1.3 Processo di granulazione ad umido _____	8
1.3.1 Granulatore	8
1.3.2 Essiccatore	10
1.3.3 Separatore	11
1.3.4 Mulino	12
1.4 Fenomenologia della granulazione ad umido [9] _____	13
1.4.1 Bagnatura e nucleazione	14
1.4.2 Crescita e consolidamento	15
1.4.3 Erosione e rottura	15
1.5 Modellazione del processo di granulazione _____	16

1.5.1 Bilanci di Popolazione [2]	17
1.5.2 Granulatore	19
1.5.3 Mulino ed essiccatore: selezione e rottura	21
1.5.4 Setacciatura	24
1.5.5 Discretizzazione dei PBE [20]	25
1.6 Obiettivi _____	27
Modellazione matematica	29
2.1 Impianto di granulazione _____	30
2.2 Granulatore _____	32
2.2.1 Fenomeno della coalescenza: PBE	32
2.3 Essiccatore _____	36
2.4 Separatore _____	41
2.4.1 Tipologia di taglio	41
2.5 Mulino _____	43
2.6 Riepilogo _____	46
2.7 Implementazione del modello matematico _____	46
2.8 Procedura di ottimizzazione _____	63
Risultati e discussione	67
3.1 Studio parametrico _____	68
3.1.1 Analisi dei parametri del granulatore	68
3.1.2 Analisi dei parametri dell'essiccatore	70
3.1.3 Analisi dei parametri del separatore	76
3.1.4 Analisi dei parametri del mulino	78
3.2 Ottimizzazione dei parametri e risultati _____	83
Conclusioni	89
4.1 Conclusioni _____	90
Bibliografia	91

Indice delle figure

Figura 1. Discretizzazione dell'intervallo dimensionale.	2
Figura 2. Funzione di distribuzione cumulativa.	3
Figura 3. Funzione di densità di distribuzione.....	4
Figura 4. Differenza tra densità numerica e densità massica.	6
Figura 5. Granulatore a letto fluidizzato.....	9
Figura 6. Granulatore high-shear.....	10
Figura 7. Allontanamento dell'umidità durante l'essiccamento dei solidi granulari.	11
Figura 8. Formazione della goccia; impatto della goccia sul letto di polveri; penetrazione della goccia nei pori; miscelazione di liquido e polvere per dispersione meccanica [10].	14
Figura 9. Schema dei meccanismi del processo di granulazione: bagnatura e nucleazione, crescita, attrito, consolidamento.	16
Figura 10. Variazione della PSD in un determinato processo [2].....	19
Figura 11. Meccanismo di coalescenza [2].....	20
Figura 12. Equazioni per determinati kernel di coalescenza [11].....	21
Figura 13. Meccanismo di rottura [2].	21
Figura 14. Differenza fra una separazione ideale e una reale.	24
Figura 15. Diagramma di flusso dell'impianto di granulazione industriale.	30
Figura 16. Schema del granulatore.	32
Figura 17. Schema del granulatore con una procedura di calcolo della portata massica in uscita.	35
Figura 18. Schema dell'essiccatore.	36
Figura 19. Andamento della <i>Selection Function</i> secondo il modello di <i>Austin</i> , al variare del parametro Si, ESS per tre valori crescenti (0.1; 0.5; 1), mantenendo $dESS = 800\mu m$ e $aESS = 2$	37
Figura 20. Andamento della <i>Selection Function</i> secondo il modello di <i>Austin</i> , al variare del parametro $dESS[\mu m]$ per tre valori crescenti (300; 800; 2500), mantenendo $Si, ESS = 0.5$ e $aESS = 2$	38

Figura 21. Confronto dell'andamento di SESS variando opportunamente entrambi i parametri Si, ESS e dESS . Grafico a. Si, ESS = 0.5 dESS = 3000μm . Grafico b. Si, ESS = 1 dESS = 4000μm	39
Figura 22. Andamento della <i>Selection Function</i> secondo il modello di <i>Austin</i> , al variare del parametro <i>aESS</i> per tre valori crescenti (1; 2; 5), mantenendo Si, ESS = 0.5 e dESS = 800μm	39
Figura 23. Schema del separatore costituito da due setacci di diverse dimensioni, il primo di 1300μm e il secondo di 192μm	41
Figura 24. Andamento della <i>Selection Function</i> secondo il modello di <i>Rogers</i> , al variare del parametro <i>aSEP</i> per tre valori crescenti (1; 3; 5).	42
Figura 25. Schema del mulino.	44
Figura 26. Diagramma di flusso del processo di granulazione, in cui sono esplicitate le <i>unit operations</i> che lo compongono e i relativi parametri di modello annessi a ciascuna di esse.	46
Figura 27. Implementazione della discretizzazione della <i>PSD</i> in ingresso.	47
Figura 28. Implementazione della funzione di distribuzione cumulativa e densità di distribuzione in ingresso.	48
Figura 29. Implementazione dei parametri fissati dall'ambiente esterno e dei parametri di modello relativi a granulatore, essiccatore, separatore, mulino (parte 1).	49
Figura 30. Implementazione dei parametri fissati dall'ambiente esterno e dei parametri di modello relativi a granulatore, essiccatore, separatore, mulino (parte 2).	49
Figura 31. Implementazione dei parametri fissati dall'ambiente esterno e dei parametri di modello relativi a granulatore, essiccatore, separatore, mulino (parte 3).	50
Figura 32. Implementazione della discretizzazione dei PBE e dei calcoli per ottenere la frazione massica in uscita dal granulatore (parte 1).	51
Figura 33. Implementazione della discretizzazione dei PBE e dei calcoli per ottenere la frazione massica in uscita dal granulatore (parte 2).	51
Figura 34. Implementazione della discretizzazione dei PBE e dei calcoli per ottenere la frazione massica in uscita dal granulatore (parte 3).	52
Figura 35. Implementazione dei calcoli per ottenere le portate massiche del granulatore a partire dalla portata massica in uscita <i>m4s</i> e le funzioni di distribuzione <i>q3, 2 e q3, 4</i>	52
Figura 36. Implementazione dell'assegnazione delle variabili solide e liquide.	53
Figura 37. Implementazione delle equazioni relative a granulatore, essiccatore, separatore e mulino (parte 1).	53
Figura 38. Implementazione delle equazioni relative a granulatore, essiccatore, separatore e mulino (parte 2).	54

Figura 39. Implementazione delle equazioni relative a granulatore, essiccatore, separatore e mulino (parte 3).....	54
Figura 40. Implementazione delle equazioni relative a granulatore, essiccatore, separatore e mulino (parte 4).....	55
Figura 41. Implementazione delle equazioni relative a granulatore, essiccatore, separatore e mulino (parte 5).....	55
Figura 42. Implementazione dell'ottimizzazione della soluzione data dal sistema di equazioni.....	56
Figura 43. Implementazione dell'elaborazione dei risultati dati dal sistema di equazioni per la componente solida.....	56
Figura 44. Implementazione dell'elaborazione dei risultati dati dal sistema di equazioni per la componente liquida.....	56
Figura 45. Implementazione del calcolo delle densità di distribuzione massiche per ciascuna corrente del processo (parte 1).....	57
Figura 46. Implementazione del calcolo delle densità di distribuzione massiche per ciascuna corrente del processo (parte 2).....	57
Figura 47. Implementazione del calcolo delle densità di distribuzione massiche per ciascuna corrente del processo (parte 3).....	58
Figura 48. Implementazione del calcolo delle densità di distribuzione massiche per ciascuna corrente del processo (parte 4).....	58
Figura 49. Implementazione del calcolo delle densità di distribuzione massiche per ciascuna corrente del processo (parte 5).....	59
Figura 50. Implementazione del calcolo della dimensione media delle particelle per ciascuna corrente del processo.....	60
Figura 51. Implementazione del codice di esportazione dei risultati ottenuti in Excel (parte 1).....	60
Figura 52. Implementazione del codice di esportazione dei risultati ottenuti in Excel (parte 2).....	61
Figura 53. Implementazione del codice di esportazione dei risultati ottenuti in Excel (parte 3).....	61
Figura 54. Implementazione del codice di esportazione dei risultati ottenuti in Excel (parte 4).....	61
Figura 55. Implementazione del codice di esportazione dei risultati ottenuti in Excel (parte 5).....	62
Figura 56. Implementazione del vettore contenente i parametri da ottimizzare.....	63
Figura 57. Implementazione della funzione <i>sser</i>	64
Figura 58. Implementazione del codice di ottimizzazione tramite il <i>pattern search</i>	64

Figura 59. Diagramma di flusso dell'impianto di granulazione contenente i parametri di processo da analizzare, relativi a ciascuna <i>unit operation</i>	68
Figura 60. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dal granulatore (2-4) al variare di $\beta 0, GRC$ per tre valori crescenti 100E6; 220E6; 500E6 , mantenendo $mGRC = 200 \text{ kg}$	69
Figura 61. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dal granulatore (2-4) al variare di $mGRC$, per tre valori crescenti (100; 200; 300), mantenendo $\beta 0, GRC = 220E6$	70
Figura 62. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dall'essiccatore (4-5) al variare di Si, ESS , per tre valori crescenti (0. 1; 0. 5; 1), mantenendo $dESS = 3000\mu\text{m}$ e $aESS = 2$	71
Figura 63. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dall'essiccatore (4-5) al variare di $dESS$, per tre valori crescenti (1000μm; 3000μm; 10000μm), mantenendo $Si, ESS = 0. 5$ e $aESS = 2$	72
Figura 64. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dall'essiccatore (4-5) al variare di $aESS$, per tre valori crescenti (1; 2; 5), mantenendo $Si, ESS = 0. 5$ e $dESS = 3000\mu\text{m}$	73
Figura 65. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dall'essiccatore (4-5) al variare di qb, ESS , per tre valori crescenti (1; 3; 10), mantenendo $db, ESS = 750\mu\text{m}$	74
Figura 66. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dall'essiccatore (4-5) al variare di db, ESS , per tre valori crescenti (250μm; 750μm; 2000μm), mantenendo $qb, ESS = 3$	75
Figura 67. Funzioni di taglio Sg (grosso) e Sf (fine) relative alle correnti in uscita dal separatore (9,utile - 10,fine - 11,grosso) al variare di αSEP (nettezza della separazione), per tre valori crescenti (3; 5; 10).	76
Figura 68. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dal separatore (8 - 9,utile - 10, fine - 11,grosso) al variare di αSEP . Grafico a. $\alpha SEP = 3$; grafico b. $\alpha SEP = 5$; grafico c. $\alpha SEP = 10$	78
Figura 69. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dal mulino (11-12) al variare di Si, MUL , per tre valori crescenti (0. 1; 0. 5; 1), mantenendo $dMUL = 3000\mu\text{m}$ e $aMUL = 2$	79
Figura 70. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dal mulino (11-12) al variare di $dMUL$, per tre valori crescenti (1000 μm; 3000 μm; 10000 μm), mantenendo $aMUL = 2$ e $Si, MUL = 1$	80
Figura 71. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dal mulino (11-12) al variare di $aMUL$, per tre valori crescenti (1; 2; 5), mantenendo $dMUL = 3000\mu\text{m}$ e $Si, MUL = 1$	81
Figura 72. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dal mulino (11-12) al variare di qb, MUL , per tre valori crescenti (1; 3; 10), mantenendo $db, MUL = 3000\mu\text{m}$	82

- Figura 73. Funzioni di densità di distribuzione in entrata e uscita dal mulino (11-12) al variare di db, MUL , per tre valori crescenti ($1000\mu m; 3000\mu m; 10000\mu m$), mantenendo $qb, MUL = 3$83
- Figura 74. Andamenti modellistico e sperimentale della densità di distribuzione della corrente in uscita dal granulatore $q3log, 4$ e $q3log, 4(exp)$. Dimensioni medie basate sulla distribuzione massica modellistica e sperimentale $X13, 4 = 4240\mu m$ e $X13, 4(exp) = 4800\mu m$85
- Figura 75. Andamenti modellistico e sperimentale della densità di distribuzione della corrente in al mulino $q3log, 11$ e $q3log, 11(exp)$. Dimensioni medie basate sulla distribuzione massica modellistica e sperimentale $X13, 11 = 3500\mu m$ e $X13, 11(exp) = 2300\mu m$86
- Figura 76. Andamenti modellistico e sperimentale della densità di distribuzione della corrente in uscita dall'essiccatore $q3log, 5$ e $q3log, 5(exp)$. Dimensioni medie basate sulla distribuzione massica modellistica e sperimentale $X13, 5 = 1500\mu m$ e $X13, 5(exp) = 1600\mu m$87
- Figura 77. Andamenti modellistico e sperimentale della densità di distribuzione della corrente in uscita dal processo (prodotto utile) $q3log, 9$ e $q3log, 9(exp)$. Dimensioni medie basate sulla distribuzione massica modellistica e sperimentale $X13, 9 = 1060\mu m$ e $X13, 9(exp) = 1200\mu m$88
-

Indice delle tabelle

Tabella 1. Tabella dei valori dei parametri di modello ottimizzati, risultanti dall'ottimizzazione effettuata dal *pattern search*.84

Abstract

This work thesis is part of a research project that has as object the study of an industrial wet granulation process, which is used to produce particulate material, increasing its dimensions compared to the initial ones. This process is widely used in the industrial sector, because the size growth is advantageous in terms of material handling and workability. The overall process takes place starting from the granule formation mechanism from the fine powders, with a subsequent drying of the wet solids and the final crushing of the coarse material, in order to uniform the useful product. Therefore, the process is made of four fundamental unit operations: granulation, drying, separation and milling. These unit operations have been described by mass balances on the solid and water, considering the dimensional distribution of the solid fraction (PSD).

In particular, the granulator was modeled through discrete one-dimensional population balances, considering the system as "perfectly mixed" and including only the coalescence phenomenon. The dryer was described only through mass balances, fixing the humidity of the dried solids to the design value and describing the breakage phenomenon involving the granules during the drying phase. The separation of the currents leaving the dryer by vibrating screens was described by semi-empirical equations, taking into account the non-ideality of the separation. Finally, the action of the mill, in which the breakage phenomenon is maximized, was described by a semi-empirical equation, as it was done in the dryer. This model, composed of 617 algebraic equations (11 currents per 55 classes to describe solids and 12 currents for the liquid) was used to perform a parametric study to understand the effect of the 13 modeling parameters on the response. This analysis, useful to emphasize the importance of the individual parameters, allowed to reduce them to 9. With the aid of a pattern search based optimization algorithm, the reduced parameters

model was used to describe the experimental data coming from the facility. The description was more than satisfying and made it possible to state that this model has good descriptive characteristics. Future developments may be aimed at linking the model parameters to the experimental ones, aiming at formulating a predictive model.

Bibliografia

1. *Solid-Solid Operations and Processing*, Perry's chemical engineers' handbook 8th edition, 21, MacGraw-Hill.
2. J.Litster, B.Ennys, *The Science and Engineering of Granulation Processes*, Springer Science+Business Media Dordrecht (2004).
3. D.M.Parikh, *Handbook of Pharmaceutical Granulation Technology* 3th edition, DPharma Group Inc. Ellicott City, Maryland, USA (2010).
4. A. Faure et al., *Process control and scale-up of pharmaceutical wet granulation processes: a review*, *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, 52 269–277 (2001).
5. J.D. Litster, *Scale up of wet granulation processes: science not art*, *Powder Technology*, 130 (19), 35-40 (2003).
6. *Principles of size reduction*, Perry's chemical engineers' handbook 8th edition, 21-45, MacGraw-Hill.
7. M.Stieß, *Mechanic process engineering* 2, Springer, Norimberga (1994)
8. R.P. King, *Modeling and simulation of mineral processing systems*, Butterworth & Heinemann, Oxford (2001).
9. S. M. Iveson, J.D.Litster, K.Hapgood, B.J.Ennis, *Nucleation, growth and breakage phenomena in agitated wet granulation processes: a review*, *Powder Technology* 117,3-39 (2001).
10. J.Litster, K.Hapgood et al., *Liquid distribution in wet granulation: dimensionless spray flux.*, *Powder Technology*, 114 (1) 32-38 (2001).
11. Armenante M., *Analisi e modellazione del processo di granulazione ad umido*, Tesi di Laurea in Ingegneria Chimica, Università degli studi di Salerno (2017).
12. *Drugs and the Pharmaceutical Sciences*, *Handbook of Pharmaceutical Granulation Technology*, third edition, 198, 10, James Swarbrick editor.

13. F.J.S.Nieuwmeijer, K.van der Voort Maarschalk, H.Vromans, *Granule breakage during drying processes*, International Journal of Pharmaceutics, 329, 81-87 (2007).
14. Plitt L.R., The analysis of solid-solid separations in classifiers, CIM Bulletin, 64 (708), 42-27 (1971).
15. Rogers R.C.S., A classification function for vibrating screens, Powder Technology 31, 135-137 (1982).
16. Molerus O., Hoffmann H., Darstellung von Windsichtertrennkurven durch ein stochastisches Modell, Chemie Ingenieur technik, 41 (5+6), 340-344 (1969).
17. Lynch A.J., Mineral Crushing and grinding circuits: their simulations, optimisation, design and control, Elsevier (1977).
18. Vogel L., Peukert W., Breakage behavior of different materials-construction of a mastercurve for the breakage probability, Powder Technology, 129, 101-110 (2003).
19. Gotsis C, Austin L, Luckie PT, Shoji K, Modeling of a grinding circuit with a Swing-Hammer Mill and Twin-Cone classifier, Powder Technology, 42, 209-216 (1985).
20. Hounslow M.J., Ryall R.L., Marshall V.R., A discretized population balance for nucleation, growth and aggregation, AIChE Journal 1988; 34, 11 (1821–1832).

Desidero ringraziare il prof. Gaetano Lamberti per avermi dato la possibilità di conoscere e collaborare con il gruppo di ricerca TPP, permettendomi di applicare nel migliore dei modi le conoscenze fin'ora acquisite, e per l'infinita disponibilità e interessamento mai mancati durante questi mesi. Desidero inoltre ringraziare l'Ing. Diego Caccavo che, attraverso insegnamenti giornalieri, un'infinita pazienza ed entusiasmo mostrati sin dal primo momento, mi ha permesso di raggiungere una sempre maggiore consapevolezza nello studio e di affrontare al meglio quest'esperienza. Desidero ringraziare Sara e Giovanni, che ho avuto la fortuna di conoscere durante il tirocinio e da cui ho sempre ricevuto appoggio, condiviso momenti divertenti fra cui le indimenticabili e uniche pause pranzo.

Un infinito grazie va alla mia famiglia: ai miei genitori, miei esempi di vita, per essere sempre stati disposti a tutto pur di realizzare i miei sogni e le mie aspettative durante questi anni. A mia sorella Alessandra, per l'affetto che mi dimostra illimitatamente, i suoi consigli incomparabili mi hanno fatto sempre affrontare qualsiasi complicazione incontrata e capire che ho ed avrò sempre bisogno di lei al mio fianco per poter essere completamente felice. Ai miei fratelli: Dario, che rappresenta per me il dono più prezioso che mi sia mai stato regalato, perché ogni giorno imparo dalle sue mille qualità, il suo coraggio, la sua determinazione e l'incredibile forza che mette in tutto ciò che fa; ringrazio Salvatore, per l'affetto che sa darmi sempre al momento giusto, per la sua personalità inimitabile, grazie alla quale capisco costantemente come vivere la vita con quella leggerezza che a volte mi è mancata. Ringrazio mia nonna, per la sua infinita comprensione e per essersi sempre preoccupata della mia salute e stato d'animo ogni giorno, e anche subito dopo ogni esame, tanto "l'importante è che ho mangiato!"; ringrazio mio nonno e i miei zii Nunzio e Marcello, per l'interessamento che hanno sempre mostrato nei confronti delle mie esperienze universitarie e l'incoraggiamento ricevuto nei momenti difficili. Desidero ringraziare Laura, la mia anima gemella: insieme a te ho affrontato questi tre anni come non è mai successo nel passato, ti ringrazio infinitamente per avermi supportato, supportato come nessun altro ha saputo fare e offerto tutto ciò che era nelle tue possibilità durante questo mio percorso, tendendomi sempre la mano quando mi sono sentita intimidita dai problemi, per aver condiviso con me ogni singolo momento bello o brutto senza farmi sentire mai sola o rassegnata, ma sempre con la

sicurezza che tu fossi al mio fianco, grazie per avermi fatto vivere questa esperienza in modo unico, sei il mio punto di riferimento.

Ringrazio la mia migliore amica Paola, su cui so di poter contare senza alcun dubbio. Grazie perché è sempre riuscita a capirmi senza il bisogno di troppe parole e mi è stata vicina in qualsiasi mio momento buio o di scoraggiamento, anche quando le mie possibilità fisiche erano limitate, offrendomi il massimo supporto, incoraggiandomi sempre a trovare la sicurezza giusta quando ho dovuto mettermi alla prova. Ringrazio Dada, un'amica più unica che rara, per la sua compagnia e il suo spirito deciso, che mi hanno stimolato a fare sempre meglio e a calpestare le mie insicurezze, guardando le difficoltà da un diverso punto di vista, nonché per tutti i viaggi di andata e ritorno dall'università, in cui ho potuto apprezzare musica che forse senza di lei non avrei mai ascoltato! Ringrazio mio cugino Roberto, per la sua infinita disponibilità e l'affetto dimostratomi costantemente, anche quando sono scomparsa per giorni sommersa dai libri e dall'ansia per gli esami. Ringrazio Fabiana, per la nostra amicizia che nel tempo è rimasta sincera e duratura, per tutti i momenti memorabili trascorsi in compagnia, per il supporto e l'ascolto quando ne ho avuto bisogno. Desidero ringraziare Anna, Antonella, Lois, Tonio, Roberta e Vincenzo (RobEnzo), Simone, senza la loro presenza questi anni sarebbero stati più noiosi e non così indimenticabili. Ovviamente ringrazio anche tutti gli altri componenti del meraviglioso, unico ed inimitabile gruppo IUPAC, perché ognuno di loro mi ha regalato momenti straordinari condivisi durante questi anni, siete mitici e rimarrete tutti nel mio cuore! Desidero ringraziare Michele, senza il quale mi sentirei incompleta, per essere stato sempre e comunque al mio fianco e per il supporto morale che ho ricevuto, superando insieme qualsiasi difficoltà, spronandomi a credere in me stessa e ad affrontare i momenti difficili in questi anni. Rappresenti la mia metà, sei un punto cardine della mia vita su cui poter sempre contare, insieme al quale poter sognare, con cui sono cresciuta e grazie al quale ho imparato ad amare incondizionatamente.