

بهینه‌سازی فرایند گرانول کردن ذره‌های سدیم پرکربنات در بستر سیال مخروطی با افشانه بالا

سعید توکلی، فرامرز هرمزی*⁺

سمنان، دانشگاه سمنان، دانشکده مهندسی شیمی، نفت، گاز

چکیده: هدف این مطالعه، بهینه‌سازی فرایند گرانول کردن ذره‌های سدیم پرکربنات در یک بستر سیال مخروطی با افشانه از بالا بود. ذره‌های گرانول با اتصال ذره‌های سیال شده توسط محلول آبی سدیم پرکربنات، به دست می‌آیند و ویژگی‌های فیزیکی گرانول مانند اندازه ذره‌ها و توزیع اندازه آن‌ها بهبود می‌یابند. عامل‌های مورد بررسی در طراحی آزمایش، دمای هوای سیال کننده (T)، فشار پاشش (P)، مقدار محلول اتصال‌دهنده (M) و غلظت محلول اتصال‌دهنده (C) بودند. طرح آزمایش به روش پاسخ سطح (RSM) انجام شد و از نرم‌افزار *Design Expert* نسخه ۷ استفاده شد. نتیجه‌ها نشان دادند که با افزایش دمای هوای سیال کننده و فشار پاشش، اندازه ذره کاهش و با افزایش مقدار محلول و غلظت اتصال‌دهنده، اندازه ذره افزایش یافت. روش RSM توانایی تعیین بازه‌ای برای بهترین شرایط تولید اندازه قابل پذیرش گرانول دارد. در این مطالعه، رابطه‌ای تجربی برای اندازه گرانول، بر حسب متغیرها ارائه شد.

واژه‌های کلیدی: بستر سیال مخروطی؛ گرانول کردن؛ سدیم پرکربنات؛ بهینه‌سازی؛ اندازه ذره.

KEYWORDS: Conical fluidized bed; Granulation; Sodium percarbonate; Optimization; Granule size.

مقدمه

ساخت کاتالیست‌ها و تولید پودرهای شوینده از دیگر کاربردهای فرایند گرانول کردن است.

بررسی آزمایشگاهی فرایند پوشش‌دهی پودر سدیم پرکربنات با محلول سدیم سیلیکات در بستر سیال با افشانه از بالا توسط /رجمندی و همکاران [۱] مورد مطالعه قرار گرفت. مدل‌سازی و شبیه‌سازی بستر سیال گرانول‌ساز، برای ذره‌های آلومینیوم اکسید در بستر نوع ورستر با استفاده از DEM-CFD و نرم‌افزارهای Fluent و EDEM توسط فرایز و همکاران [۲] صورت گرفته است.

گرانول کردن فرایند بزرگ کردن اندازه ذره‌ها است که در طی آن ذره‌های اولیه به ذره‌های بزرگ‌تر (کلوخه) تبدیل می‌شوند (شکل ۱) و از لحاظ فیزیکی کلوخه‌های قوی ایجاد شده در میان ذره‌های اولیه قابل‌شناسایی هستند. گرانول کردن در صنایع گوناگونی مانند صنایع دارویی، غذایی، شیمیایی و ... کاربرد دارد. در صنایع دارویی برای بهبود ویژگی‌های ناخواسته پودر عامل دارویی فعال^(۱) (API) و گرانول کردن آن با سایر مواد جانبی دارویی^(۲) انجام می‌شود. در صنایع شیمیایی و پتروشیمی گرانول کردن کودها،

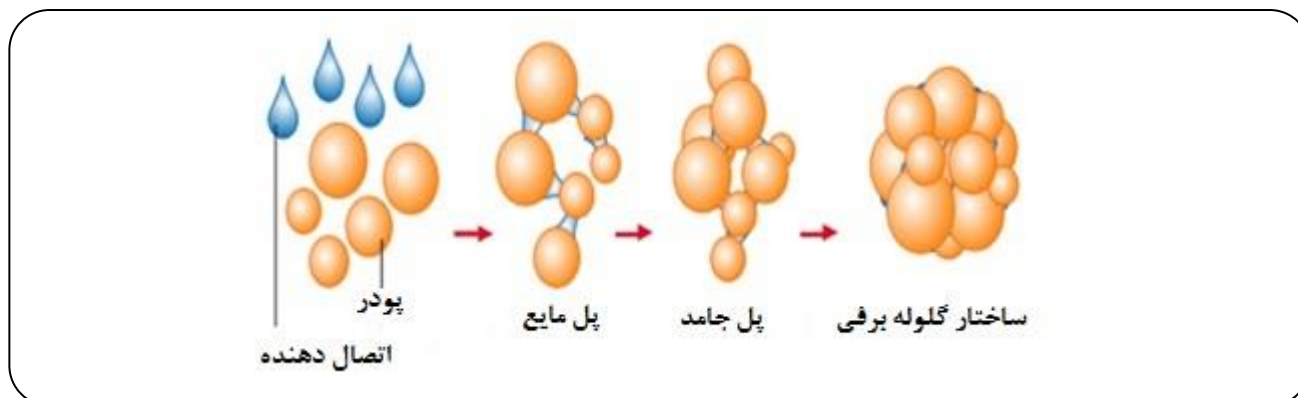
*عقد دار مکاتبات

+E-mail: fhorhozi@semnan.ac.ir

(۱) Active pharmaceutical agent

(۲) Excipients

(۳) Lennart Fries et al



شکل ۱- فرایند گرانول کردن ذره‌ها با استفاده از مایع اتصال دهنده و مرحله‌های ایجاد پل مایع، پل جامد و ساختار گرانول.

افزایش شدت جریان افشانه نازل هنگامی که غلظت اتصال دهنده و همچنین مقدار اتصال دهنده ثابت باشد، موجب اندازه میانگین بزرگ‌تر گرانول خواهد شد. افزایش غلظت اتصال دهنده درحالی که مقدار اتصال دهنده ثابت باشد و بنابراین کاهش مقدار کلی آب، موجب افزایش اندازه گرانول می‌شود. به‌کارگیری مقادیر بیش‌تر اتصال دهنده درحالی که غلظت ثابت باشد موجب افزایش اندازه گرانول می‌شود. سینتیک گرانول کردن بسترسیال با بررسی تأثیر متغیرهای فرایندی بر گرانول‌ها در بستر سیال با افشانه از بالا توسط *تان* و همکاران^(۹) [۹] مطالعه شد. آن‌ها اثر مقدار ماده اتصال دهنده را بر سینتیک رشد فرایند مطالعه کردند و فهمیدند که افزایش مقدار ماده اتصال دهنده، نرخ رشد گرانول را افزایش می‌دهد. مقدار زیاد ماده اتصال دهنده موجب افزایش نرخ برخورد بین ذره‌ها و قطره‌ها اتصال دهنده شده و بنابراین سرعت کلوخه سازی را بالا می‌برد. سپس آن‌ها پیشنهاد کردند که مقدار اتصال دهنده مرحله تعیین‌کننده در کل فرایند است. استفاده از طراحی آزمایش‌ها برای بهینه‌سازی فرایند گرانول کردن بسترسیال مالتودکسترین در بستر سیال مخروطی با افشانه از بالا توسط *زیانی*^(۱۰) و همکاران [۱۰] انجام شد. آن‌ها متغیرهای شدت جریان هوای سیال کننده، دمای هوا خشک‌کننده، فشار هوای نازل و شدت جریان محلول چسبنده را در نظر گرفتند. اندازه گرانول و توزیع اندازه ذره به‌عنوان پاسخ انتخاب شدند.

مدل‌سازی گرانول کردن مذاب بسترسیال سیلیکون با افشانه از بالا با استفاده از روش پاسخ سطح توسط *الکسیک* و همکاران^(۱) [۳] انجام شد. مدل‌سازی گرانول کردن بسترسیال نوع ورستر با استفاده از حلقه مارکو^(۲) توسط *کاتاک* و همکاران^(۳) [۴] انجام شد. اثر غلظت متوسط اتصال دهنده بر اندازه میانگین گرانول‌ها در گرانول ساز بستر سیال با افشانه از بالا توسط *سو* و همکاران^(۴) [۵] مطالعه شد. آن‌ها نشان دادند که همچنان که متوسط غلظت اتصال دهنده، یعنی، مقدار پودر هیدروکسیل پروپیل متیل سلولوز^(۵) حل‌شده در محلول افزایش یابد اندازه میانگین گرانول‌ها نیز افزایش می‌یابد. پوشش دهی و گرانول کردن ذره‌های جامد به‌وسیله محلول‌های آبی پلیمرها یا نمک‌های معدنی در بستر سیال با افشانه از بالا توسط *همتی* و همکاران^(۶) [۶] مطالعه شد. آن‌ها نتیجه گرفتند که کاهش اندازه قطره ایجادشده در اثر افزایش شدت جریان جریان هوای افشانه، موجب پوشش یکنواخت سطح ذره‌های جامد می‌شود. اثر متغیرهای فرایندی همچون مقدار اتصال دهنده بر گرانول کردن پودرهای دارویی توسط *واکر* و همکاران^(۷) [۷] مورد مطالعه قرار گرفت. آن‌ها نتیجه گرفتند که افزایش مقدار ماده اتصال دهنده موجب حذف سیالیت بستر می‌شود. گرانول کردن پودرهای چسبنده گروه C در طبقه بندی گلدارت در بستر سیال با افشانه از بالا توسط *چن* و همکاران^(۸) [۸] مورد مطالعه قرار گرفت. آن‌ها نتیجه گرفتند که

(۱) Aleksic et al

(۲) Markov chain

(۳) Catak et al

(۴) Seo et al

(۵) Hydroxyl propyl methylcellulose

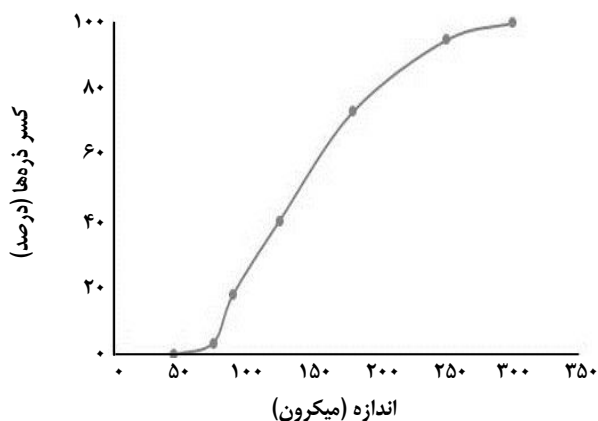
(۶) Hemati et al

(۷) Walker

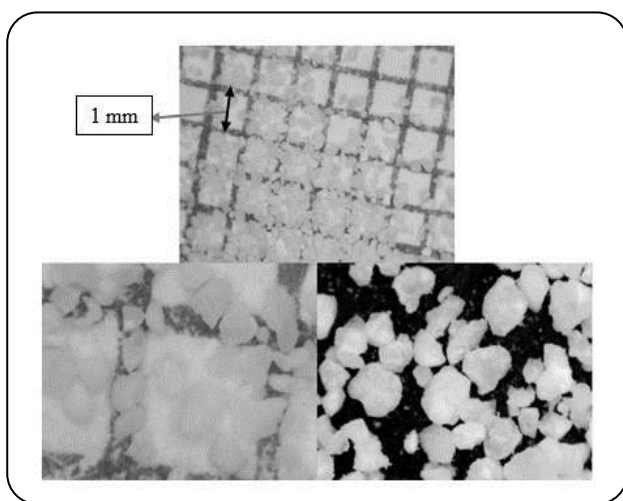
(۸) Chen et al

(۹) Tan et al

(۱۰) Ziyani



شکل ۲- نمودار توزیع اندازه پودر اولیه سدیم پرکربنات.



شکل ۳- بالا: تصویر ذره‌های سدیم پرکربنات روی کاغذ میلیمتری و پایین: تصویر ذره‌های سدیم پرکربنات با بزرگ‌نمایی گوناگون

امکان دیدن درون بستر تعبیه شده است همچنین یک ورودی دایره‌ای شکل به منظور ورود و خروج مواد در قسمت پشتی در نظر گرفته شده است. قسمت‌های موجود در این دستگاه در شکل معرفی شده است

چگونگی عملکرد سامانه

ارتفاع نازل در مقدار ۲۵ سانتی‌متر ثابت شد. سپس به مقدار ۷۰۰ گرم از ماده در بستر قرار گرفت که این مقدار برابر ارتفاع ۳ سانتی‌متر از بستر بود. محلول با درصد وزنی مشخص از پودر و آب به‌عنوان حلال تهیه شد و به‌وسیله پمپ به مخزن منتقل شد. نرم‌افزارهای دما و رطوبت به‌منظور ثبت داده‌های مربوط به آن‌ها

آن‌ها نتیجه گرفتند که بهترین شرایط عملیاتی شامل شدت جریان هوای سیال کننده کم، دمای سیال خشک‌کننده زیاد، فشار افشانه زیاد و شدت جریان محلول اتصال‌دهنده زیاد است. آن‌ها نتیجه گرفتند که تأثیر این متغیرها بر فرایند گرانول کردن بسیار مهم است.

در این مقاله به بررسی فرایند گرانول کردن ذره‌های سدیم پرکربنات با محلولی آبی از غلظت‌های گوناگون سدیم پرکربنات، در سامانه بسترسیال مخروطی با افشانه از بالا و طرح آزمایش به روش سطح پاسخ پرداخته شده است. این کار روشی نوین برای تولید پودرهای شوینده است و در صنایع پودرهای شونده کاربرد دارد. همچنین متغیرها دیگری مانند دمای هوای سیال کننده، فشار هوای نازل و مقدار محلول اتصال‌دهنده مورد بررسی قرار گرفته است.

بخش تجربی

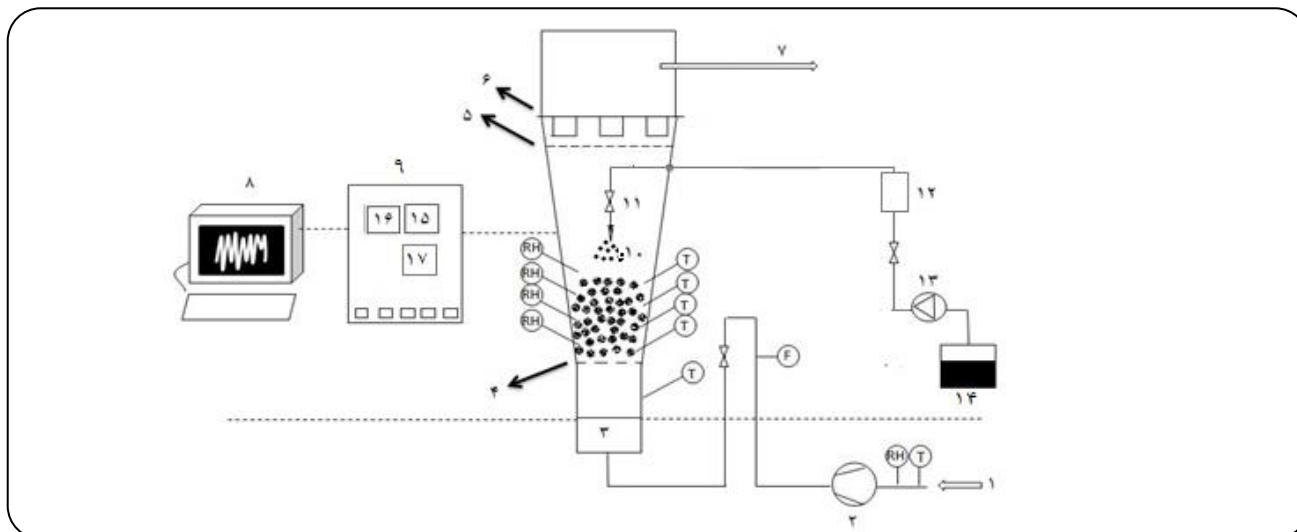
ماده

پودرهای شوینده از جمله موادی هستند که امروزه به‌شدت مورد استفاده قرار می‌گیرند و از این رو هرروزه تلاش‌های بیشتری برای افزایش کارایی آنها صورت می‌گیرد. پودرهای لباسشویی، از بیش از ۱۰ ماده اولیه تشکیل شده‌اند که در این بین از سدیم پرکربنات به‌عنوان عامل سفیدکننده استفاده می‌شود. سدیم پرکربنات با فرمول $(Na_2CO_3 \cdot 3H_2O_2)$ یک ترکیب افزایشی از سدیم کربنات و هیدروژن پراکسید است. این ترکیب به‌صورت یک شکل پایدار از هیدروژن پراکسید قلیایی است و از لحاظ محیط زیستی یک ترکیب مناسب است. در اینجا از نمونه‌های صنعتی پودر سدیم پرکربنات، برای گرانول سازی استفاده شد. توزیع اندازه پودر اولیه سدیم پرکربنات در شکل ۲ آمده است. اندازه ذره‌ها در بازه ۳۵۰-۴۵ میکرون و متوسط اندازه آنها ۱۹۵ میکرون بود. شکل ۳ تصویر ذره‌های پودر اولیه سدیم پرکربنات را با بزرگ‌نمایی‌های گوناگون نشان داده است.

دستگاه

در این کار، فرایند گرانول کردن به‌وسیله یک گرانول‌ساز بسترسیال مخروطی انجام شد. این سامانه از نوع افشانه از بالا است. شمای دستگاه در شکل ۴ نشان داده شده است. بدنه مخروطی شکل آن از جنس فولاد ضدزنگ^(۱) است. قطر قسمت انتهایی آن ۲۰ سانتی‌متر، قطر قسمت ابتدایی ۴۰ سانتی‌متر و ارتفاع بستر ۸۰ سانتی‌متر است. بر روی بدنه دو قسمت شیشه‌ای به‌منظور

(۱) Stainless steel



شکل ۴- شمای گرانول ساز بسترسیال مخروطی (۱) ورودی هوای، (۲) دمنده، (۳) گرم کن، (۴) صفحه توزیع کننده هوای ورودی، (۵) لامپ LED، (۶) صافی، (۷) خروجی هوا، (۸) رایانه، (۹) تابلو برق، (۱۰) نازل، (۱۱) شیر برقی، (۱۲) سامانه یکنواخت کننده مایع، (۱۳) پمپ، (۱۴) ظرف دارنده اتصال دهنده، (۱۵) ثبت کننده رطوبت، (۱۶) ثبت کننده دما، (۱۷) کنترل کننده دمای هوای ورودی به بستر.

تعداد آزمایش‌ها با در نظر گرفتن ۵ سطح برای هر متغیر و با ۶ تکرار در نقطه مرکزی، طبق معادله‌ی (۱)، ۳۰ آزمایش شد.

$$N = 2^K + 2K + C_p \quad (1)$$

در اینجا K تعداد متغیرها و C_p تعداد نقاط معادل نقطه مرکزی است. به منظور بررسی متغیرهای یاد شده، سایر مشخصه‌های عملیاتی در یک مقدار ثابت نگه‌داشته می‌شوند. در جدول ۱ عامل‌های ثابت مربوط به فرایند گرانول کردن و مقادیرهای آن‌ها معرفی شده‌اند. جدول ۲ عامل‌ها و مقادیرهای آن‌ها را در نرم‌افزار Design Expert 7.0.0 ترکیب فرآوری به دست آمده از نرم‌افزار برای انجام آزمایش را نمایش می‌دهد. بازه آغازین و پایانی سطوح پیشنهادی، با مطالعه مقاله‌ها و اختراع‌های ثبت شده^(۱) در همین زمینه، تخمین زده شده است.

نتیجه‌ها و بحث

اندازه گرانول‌های سدیم پرکربنات به دست آمده از آزمایش‌های ۱ تا ۳۰ به همراه اندازه پودر اولیه سدیم پرکربنات و پودر شوینده در شکل ۵ نشان داده شده است.

بررسی آماری نتیجه‌ها با استفاده از تحلیل واریانس ANOVA

به منظور مدل کردن نتیجه‌های آزمایش‌ها، نرم‌افزار در ابتدا

در کامپیوتر اجرا شد. گرم‌کن روشن شد و دمای ورودی به بستر به وسیله کنترلر تنظیم شد. دمنده هوا روشن شد و شدت جریان آن در بازه ۹۰-۱۲۰ مترمکعب بر ساعت تنظیم شد. فشار مخزن محلول اتصال‌دهنده نیز تنظیم شد. با شروع آزمایش به آن زمان داده شد تا دمای ورودی به بستر به مقدار تعیین شده برسد و ثابت بماند که متناسب با آن رطوبت داخل بستر کاهش یافت. پس از ثابت شدن دمای ورودی اولین پاشش انجام گرفت. پاشش محلول اتصال‌دهنده به مدت ۳۰ ثانیه انجام گرفت که این زمان با توجه به آزمایش‌ها مقدماتی و دیدن چگونگی سیالیت پودر در زمان پاشش انتخاب شد. با پاشش بیش از این زمان، سیالیت بستر حذف می‌شد. سپس زمان کافی برای خشک شدن به آن داده شد.

طرح آزمایش

طرح آزمایش با استفاده از فن طراحی آزمایش‌ها و روش سطح پاسخ تهیه شد. این روش نسبت به سایر روش‌ها دقت بیشتری دارد؛ بنابراین با استفاده از روش RSM و با نرم‌افزار Design Expert نسخه ۷، آزمایش‌هایی برای خشک کردن و گرانول کردن ذره‌های سدیم پرکربنات انجام شد. متغیرهای مورد بررسی دمای هوای ورودی به بستر (T)، فشار هوای نازل (P)، مقدار محلول اتصال‌دهنده (M) و غلظت محلول اتصال‌دهنده (C) بودند. طراحی به کار برده شده در این پروژه Central Composite است.

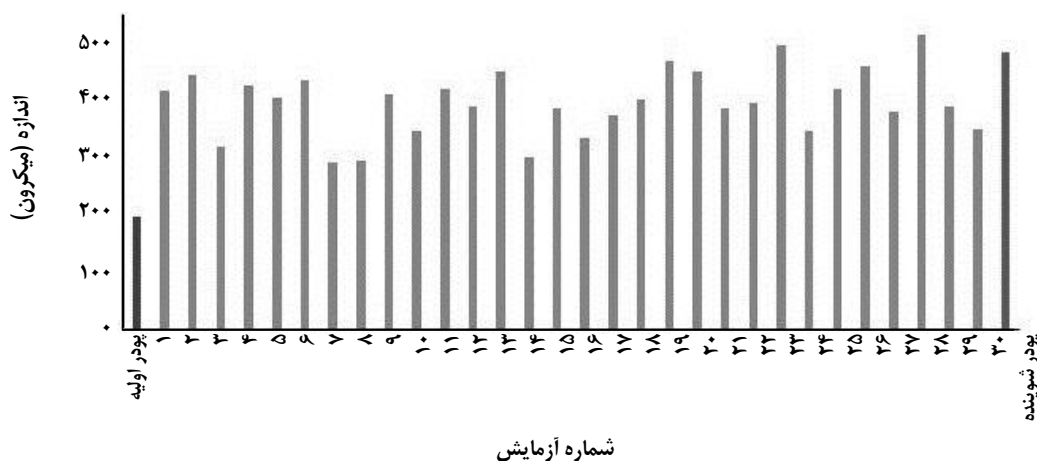
(1) Patents

جدول ۱- عامل‌های ثابت گرفته شده.

عامل	شدت جریان هوا (m ³ /h)	مقدار بارگذاری (g)	ارتفاع بستر (cm)	ارتفاع نازل (cm)
مقدار	۱۲۰-۹۰	۷۰۰	۳	۲۵

جدول ۲- عامل‌ها و مقدارهای آن‌ها در نرم‌افزار Design Expert.

سطوح کدبندی شده متغیر					نماد	عامل
+α	+1	۰	-1	-α		
۹۰	۸۰	۷۰	۶۰	۵۰	A	دما (T-C)
۶	۵	۴	۳	۲	B	فشار (P-bar)
۱۰۰	۹۰	۸۰	۷۰	۶۰	C	مقدار محلول (M-ml)
۴۰	۳۰	۲۰	۱۰	۰	D	غلظت محلول (C-% w/w)



شکل ۵ - نمودار تغییرهای اندازه ذره - شماره آزمایش به همراه پودر اولیه و پودر شوینده.

مقدار $F^{(۲)}$ که نشان‌دهنده مجموع مربعات تقسیم بر مقدار خطا است، نیز هرچه قدر بیشتر باشد نشان‌دهنده تأثیر بیش‌تر آن متغیر بر پاسخ است. با توجه به این دو معیار متغیرهای مهم و تأثیرگذار بر پاسخ در معادله خطی در جدول ۵ آمده است. بنابراین با توجه به مقدارهای F ، مشخص می‌شود که غلظت محلول اتصال‌دهنده مهم‌ترین متغیر تأثیرگذار بر رشد ذره‌ها است. درجه اهمیت سایر متغیرها به ترتیب: فشار هوای نازل، دمای هوای ورودی به بستر و مقدار محلول اتصال‌دهنده است. مقدارهای مجموع مربع‌ها و میانگین مربع‌های مربوط به هر متغیر نیز مؤید این ترتیب اهمیت متغیرها است.

مدل خطی را پیشنهاد داد. تحلیل واریانس^(۱) که روشی برای بررسی اثرهای متغیرها بر پاسخ است، تکمیل کننده نتیجه‌های به‌دست‌آمده از بررسی‌های تجربی و مقدارهای به‌دست‌آمده در جدول‌ها و نمودارها می‌باشد. در این حالت، دو متغیر برای تحلیل نتیجه‌های به‌دست‌آمده از ANOVA، مورد استفاده قرار می‌گیرد. علامت P نشان‌دهنده میزان اهمیت متغیر است. درجه اهمیت متغیر به‌صورت زیر تعیین می‌شود:

اگر $0.01 \leq P \leq 0.10$ متغیر خیلی مهم است.

اگر $0.05 \leq P \leq 0.10$ متغیر مهم است.

اگر $0.1 \leq P \leq 0.05$ متغیر شاید مهم باشد.

اگر $0.1 \leq P \leq 0.01$ متغیر مهم نیست.

(۱) Analysis of Variance (ANOVA)

(۲) F value

جدول ۳- ترکیب فراوری به دست آمده از نرم افزار Design Expert 7.0.0 برای انجام آزمایش.

Std	Run	Block	A:T	B:P	C:M	D:C
۱۱	۱	Block ۱	۶۰	۵	۷۰	۳۰
۱۹	۲	Block ۱	۷۰	۲	۸۰	۲۰
۲۰	۳	Block ۱	۷۰	۶	۸۰	۲۰
۱۰	۴	Block ۱	۸۰	۳	۷۰	۳۰
۳۰	۵	Block ۱	۷۰	۴	۸۰	۲۰
۱۷	۶	Block ۱	۵۰	۴	۸۰	۲۰
۴	۷	Block ۱	۸۰	۵	۷۰	۱۰
۲۳	۸	Block ۱	۷۰	۴	۸۰	۰
۱	۹	Block ۱	۶۰	۳	۷۰	۱۰
۱۸	۱۰	Block ۱	۹۰	۴	۸۰	۲۰
۱۶	۱۱	Block ۱	۸۰	۵	۹۰	۳۰
۱۲	۱۲	Block ۱	۸۰	۵	۷۰	۳۰
۱۵	۱۳	Block ۱	۶۰	۵	۹۰	۳۰
۸	۱۴	Block ۱	۸۰	۵	۹۰	۱۰
۶	۱۵	Block ۱	۸۰	۳	۹۰	۱۰
۷	۱۶	Block ۱	۶۰	۵	۹۰	۱۰
۲۷	۱۷	Block ۱	۷۰	۴	۸۰	۲۰
۲۸	۱۸	Block ۱	۷۰	۴	۸۰	۲۰
۱۴	۱۹	Block ۱	۸۰	۳	۹۰	۳۰
۵	۲۰	Block ۱	۶۰	۳	۹۰	۱۰
۲۶	۲۱	Block ۱	۷۰	۴	۸۰	۲۰
۲۵	۲۲	Block ۱	۷۰	۴	۸۰	۲۰
۹	۲۳	Block ۱	۶۰	۳	۷۰	۳۰
۳	۲۴	Block ۱	۶۰	۵	۷۰	۱۰
۲۲	۲۵	Block ۱	۷۰	۴	۱۰۰	۲۰
۲۴	۲۶	Block ۱	۷۰	۴	۸۰	۴۰
۲	۲۷	Block ۱	۸۰	۳	۷۰	۱۰
۱۳	۲۸	Block ۱	۶۰	۳	۹۰	۳۰
۲۹	۲۹	Block ۱	۷۰	۴	۸۰	۲۰
۲۱	۳۰	Block ۱	۷۰	۴	۶۰	۲۰

جدول ۴- تحلیل واریانس (ANOVA) برای اندازه ذره‌ها.

منبع	مجموع مربعات	درجه آزادی	میانگین مربعات	F	P
مدل	۸۸۶۳۷٫۵	۴	۲۲۱۵۹٫۳۷	۹۰٫۸۷	<۰٫۰۰۰۱
A-T	۱۲۱۵۰	۱	۱۲۱۵۰	۴۹٫۸۲	<۰٫۰۰۰۱
B-P	۲۸۰۱۶٫۶۷	۱	۲۸۰۱۶٫۶۷	۱۱۴٫۸۹	<۰٫۰۰۰۱
C-M	۴۲۶۶٫۱۷	۱	۴۲۶۶٫۱۷	۱۷٫۵	۰٫۰۰۰۳
D-C	۴۴۲۰۴٫۱۷	۱	۴۴۲۰۴٫۱۷	۱۸۱٫۲۶	<۰٫۰۰۰۱

جدول ۵- ضریب‌های همبسته مدل "خطی" اختصاص داده شده به اندازه ذره.

ضریب همبستگی تنظیم شده ^(۱) (Adj-R ²)	ضریب همبستگی پیش‌بینی شده ^(۲) (Pred-R ²)	ضریب همبستگی (R ²)
۰٫۹۲۵۳	۰٫۹۰۳۱	۰٫۹۳۵۶

(۱) Adjusted correlation coefficient

(۲) Predicted correlation coefficient

جدول ۶- ضریب‌های معادله خطی.

مقدار	ضریب	نماد متغیر	نماد متغیر در فرمول
+۴۹۷٫۸۳	β_0		
-۲٫۲۵	β_1	T	X1
-۳۴٫۱۷	β_2	P	X2
+۱٫۳۳	β_3	M	X3
+۴٫۲۹	β_4	C	X4

یک متغیر وابسته یا پاسخ مدل، تجزیه و تحلیل بهتری به دست می‌آید. شکل ۷ نشان‌دهنده یک توزیع نرمال برای نمودار احتمال است و نیازی به تابع انتقال نیست.

نمودار مانده‌ها در مقابل مقدارهای پیش‌بینی شده

در شکل ۷ نمودار مقدار مانده‌ها برحسب مقدارهای پیش‌بینی شده پاسخ (اندازه ذره - میکرون) توسط مدل نشان داده شده است. همان‌گونه که دیده می‌شود نمودار دارای پراکندگی تصادفی است که نشان‌دهنده طیف ثابت مانده در سراسر نمودار است. الگوهایی به شکل > نیاز به استفاده از یک تابع انتقال توانی را نشان می‌دهد.

نمودار مقدارهای واقعی در مقابل مقدارهای پیش‌بینی شده

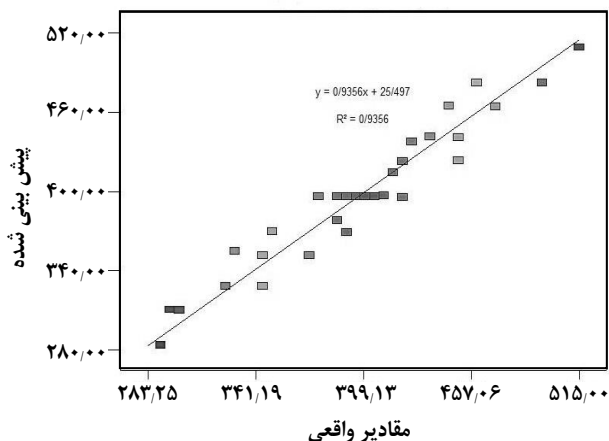
در شکل ۸ نمودار مقدارهای پیش‌بینی شده اندازه گرانول

مقدارهای ضریب همبستگی^(۱) در جدول ۶ آمده است. معادله خطی با مقدار ضریب همبستگی برابر ۰٫۹۳۵۶ نشانگر دقت دلخواه معادله به دست آمده است. ضریب همبستگی تنظیم شده (Adj-R²) برای سنجش میزان کیفیت قابلیت پیش‌بینی مدل مناسب‌تر است.

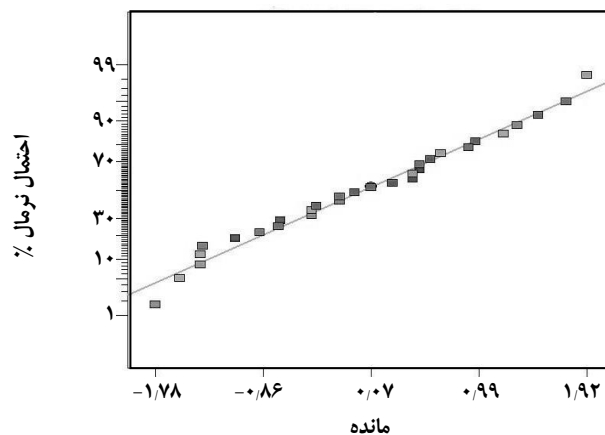
نمودار احتمال نرمال

نمودار احتمال نرمال داده‌ها در شکل ۶ نشان داده شده است. تفاوت بین مقدار پیش‌بینی شده و دیده شده برای پاسخ، به عنوان مانده تعریف می‌شود و توزیع نرمالی برای آن‌ها مورد انتظار است. نمودار احتمال نرمال نشان می‌دهد که مانده‌ها چگونه از یک تابع توزیع نرمال پیروی می‌کنند. شکل ۶ نشان‌دهنده S شکل است بنابراین یک تابع انتقال (توانی، کسری، لگاریتمی و...) بر روی

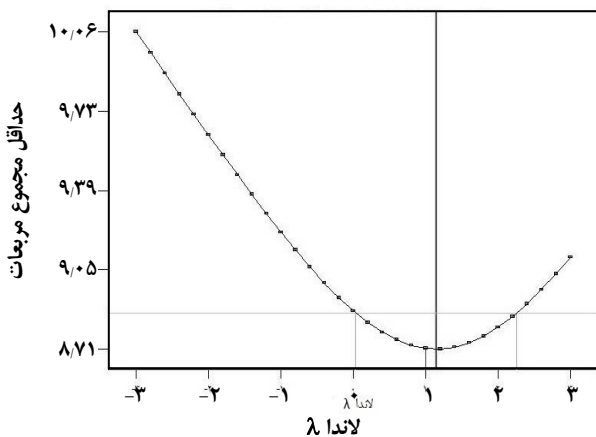
(۱) Correlation coefficient



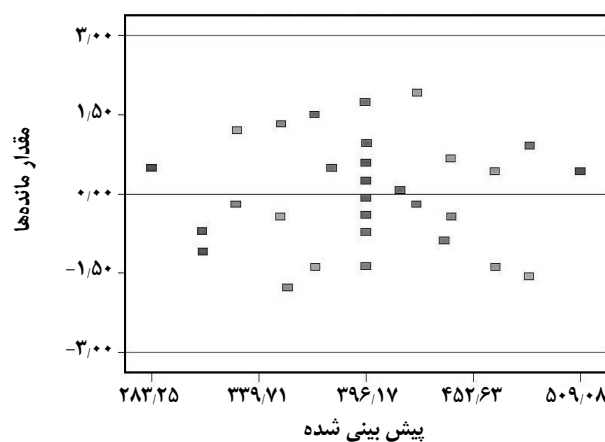
شکل ۸ - نمودار مقادیرهای پیش‌بینی شده در مقابل مقادیرهای واقعی.



شکل ۶ - نمودار احتمال نرمال در مقابل مانده‌ها منحنی S شکل از میان داده‌ها رسم شد.



شکل ۹ - نمودار باکس-کاکس.



شکل ۷ - نمودار مقدار مانده‌ها در مقابل مقادیرهای پیش‌بینی شده اندازه ذره-میکرون.

توانایی پیش‌تری در بهبود مدل با استفاده از تابع توانی وجود خواهد داشت. با توجه به شکل ۹ بهترین مقدار لاندا برابر ۱/۱۵ است. به‌منظور داشتن معادله ساده‌تر لاندا برابر ۱ در نظر گرفته می‌شود.

توسط روش سطح پاسخ برحسب مقادیرهای واقعی که در آزمایش‌های تجربی به‌دست آمده را نشان داده می‌دهد. نشان می‌دهد که مدل ارائه شده با ضریب تبیین ۹۴٪ به داده‌های به‌دست آمده نزدیک می‌باشد.

معادله مدل

اندازه ذره با یک معادله خطی به متغیرهای مستقل مرتبط می‌شود.

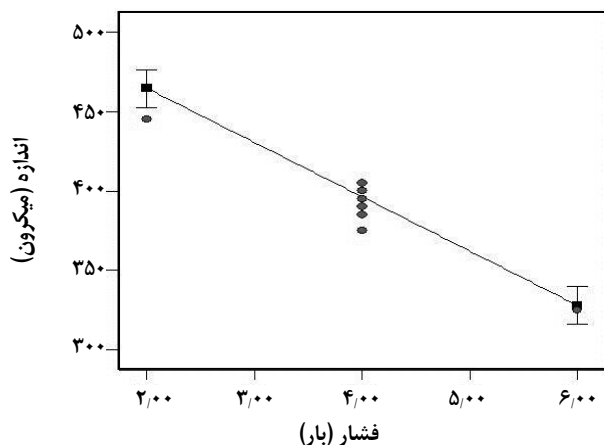
$$Y = \beta_0 + \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \beta_3 x_3 + \beta_4 x_4 \quad (2)$$

در معادله (۲) ضرایب‌های برازش^(۱) برای اثرهای مستقیم (تکی) می‌باشند که توسط نرم‌افزار محاسبه شد (جدول ۶).

نمودار باکس-کاکس

در شکل ۹ نمودار باکس - کاکس نشان داده شده است. نمودار باکس کاکس ابزاری برای کمک به تشخیص مناسب‌ترین تابع انتقال توانی به‌منظور اعمال بر پاسخ است. پایین‌ترین نقطه در این نمودار بهترین مقدار لاندا را که در آن کم‌ترین مجموع مربعات مانده در مدل تبدیل شده ایجاد می‌شود را نشان می‌دهد. هنگامی که نسبت بیش‌ترین به کم‌ترین مقدار پاسخ، بزرگ‌تر از ۳ باشد

(1) Regression coefficients



شکل ۱۱ - نمودار تغییرهای اندازه ذره-فشار هوای نازل.

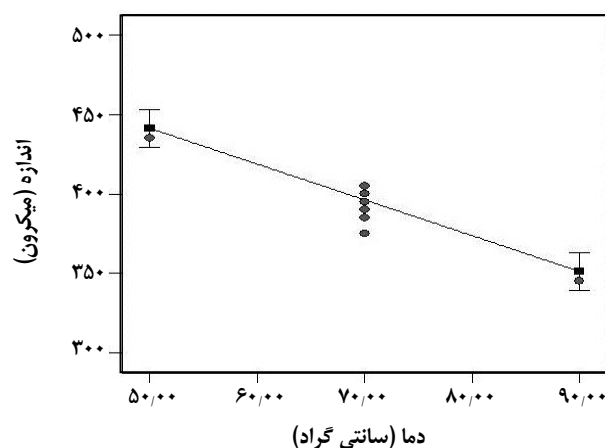
اعمال‌شده‌ی بر مخزن محلول کنترل می‌شود. در شکل ۱۱ نمودار تغییرهای اندازه ذره برحسب فشارهای ۲، ۳، ۴، ۵ و ۶ بار نشان داده‌شده است. نتیجه‌های نشان داده‌شده در شکل ۱۱، کاهش اندازه ذره از ۴۴۵ تا ۳۲۰ میکرون با افزایش فشار را نشان می‌دهد. این می‌تواند به علت ریزتر شدن قطره‌های محلول اتصال‌دهنده در اثر افزایش فشار نازل باشد [۹]. برای یک محلول اتصال‌دهنده، اندازه قطره بزرگ‌تر، نفوذ رطوبت به داخل گرانول را افزایش می‌دهد، بنابراین مانع تبخیر می‌شود و با افزایش فشار هوا، قطره‌های محلول اتصال‌دهنده ریزتر شده و تبخیر سریع‌تر آنها رخ می‌دهد [۱۳].

تأثیر مقدار محلول اتصال‌دهنده بر اندازه گرانول

در شکل ۱۲ نمودار تغییرهای اندازه ذره برحسب مقدار محلول اتصال‌دهنده نشان داده‌شده است. این شکل نشان داد که با افزایش مقدار محلول اتصال‌دهنده از ۶۰ تا ۱۰۰ میلی‌لیتر مستقل از غلظت محلول، اندازه ذره از ۳۴۵ تا ۴۲۰ میکرون افزایش یافت. افزایش مقدار این محلول، موجب نفوذ بیشتر مایع به داخل ذره‌ها می‌شود که باعث ایجاد پیوند بیش‌تر بین ذره‌ها می‌شود [۱۳].

تأثیر غلظت محلول اتصال‌دهنده بر اندازه ذره

در شکل ۱۳ نمودار تغییرهای اندازه ذره برحسب غلظت محلول اتصال‌دهنده نشان داده‌شده است. با افزایش مقدار غلظت محلول اتصال‌دهنده از ۰ تا ۴۰ درصد وزنی، اندازه ذره از ۲۹۵ تا ۴۴۰ میکرون افزایش یافت. افزایش غلظت اتصال‌دهنده، مقدار حلالی (آب) که باید تبخیر شود را کاهش می‌دهد و موجب افزایش مقدار حل‌شونده پوشش‌شونده روی ذره‌ها می‌شود [۱۴].



شکل ۱۰ - نمودار تغییرهای اندازه-دما هوای ورودی.

معادله (۳) نشان‌دهنده یک رابطه خطی بین اندازه ذره و متغیرهای دمای هوای ورودی به بستر، فشار هوای نازل، مقدار محلول اتصال‌دهنده و غلظت محلول اتصال‌دهنده است.

بررسی تأثیر متغیرها بر اندازه

مقدار ۱۰۰ گرم از هر یک از نمونه‌ها روی یک سری الک آزمایشگاهی منتقل و به مدت ۳ دقیقه تحت تکان و لرزش قرار گرفتند. برای گرانول‌ها از الک‌های به اندازه ۷۵، ۱۲۵، ۳۰۰، ۵۰۰، ۶۰۰ و ۷۱۰ میکرون استفاده شد. با توزین مقدار نمونه زیر هر الک، منحنی توزیع اندازه ذره‌ای رسم شد.

تأثیر دمای هوای ورودی بر اندازه گرانول

در شکل ۱۰ نمودار تغییرهای اندازه ذره برحسب دماهای هوای ورودی به بستر ۵۰، ۶۰، ۷۰، ۸۰ و ۹۰ درجه سلسیوس نشان داده‌شده است. نتیجه‌های نشان داده‌شده در شکل، کاهش اندازه ذره‌ها از ۴۳۵ تا ۳۴۵ میکرون با افزایش دما را نشان می‌دهد. این می‌تواند به علت تبخیر سریع‌تر مایع در دماهای بالاتر باشد. هرچند که دماهای بالا از فروکش مرطوب بستر جلوگیری می‌کند [۱۱]، با این حال با افزایش دما نرخ تبخیر حلال محلول اتصال‌دهنده افزایش می‌یابد، بنابراین مقدار رطوبت و نفوذ آن به داخل پودر بستر کاهش می‌یابد [۱۲]. دمای هوای سیال کننده در طی گرانول کردن یک عامل خیلی مهم برای عملیات خوب و موفق گرانول کردن است.

تأثیر فشار هوای نازل بر اندازه گرانول

ریز شدن محلول اتصال‌دهنده در نوک نازل اتفاق می‌افتد. درجه ریز شدن محلول اتصال‌دهنده به وسیله فشار هوای

تعیین مجموعه شرایط لازم برای رسیدن به اندازه هدف

به منظور بهینه‌سازی فرایند، مقدار اندازه در نرم‌افزار به عنوان هدف اندازه پودر شوینده (۴۸۵ میکرون) قرار داده شده. در پایان با بهینه‌سازی فرایند و تعیین شرایط مورد نیاز در هر عامل برای رسیدن به اندازه پودر شوینده به تعدادی از ترکیب‌های فراوری مورد نظر به دست آمد. (جدول ۸).

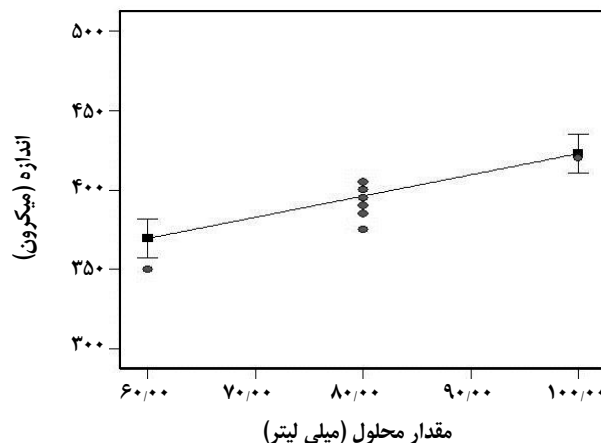
با توجه به جدول ۸، نزدیک‌ترین شرایط آزمایش انجام شده به شرایط بهینه پیشنهاد شده توسط مدل، آزمایش شماره ۲۳ است که در آن دما برابر ۶۰، فشار برابر ۳، مقدار محلول برابر ۷۰ و غلظت محلول برابر ۳۰ است که همانند مورد ۱ پیشنهاد شده است. در شکل ۱۴ نمودار توزیع اندازه پودر اولیه، آزمایش شماره ۲۳ و پودر شوینده آورده شده است.

اندازه ذره‌های اولیه برابر ۱۹۵ میکرون است. همان‌گونه که از شکل ۱۵ دیده می‌شود، اندازه گرانول‌ها در آزمایش شماره ۲۳ برابر ۴۹۵ میکرون شده است که به اندازه ذره‌های پودر شوینده (۴۸۵ میکرون) نزدیک است. در شکل ۱۶ نمایی از ذره‌های سدیم پرکربنات به دست آمده از آزمایش ۲۳ نشان داده شده است.

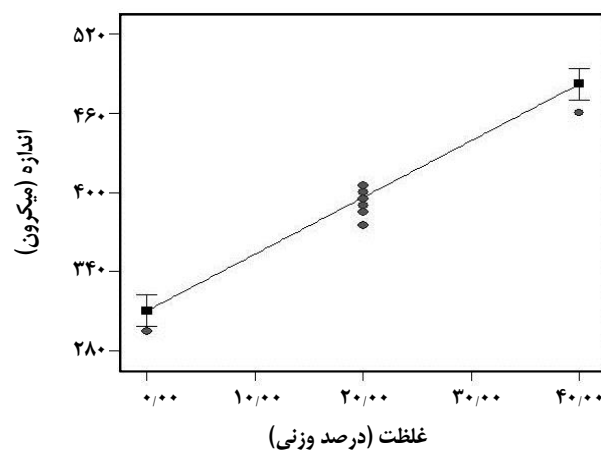
نتیجه‌گیری

فرایند گرانول کردن برای تهیه ذره‌های بزرگ‌تر و باکیفیت‌تر از اهمیت زیادی در صنایع غذایی، شیمیایی، دارویی و غیره برخوردار است. یکی از ابزارهای مفید برای این فرایند استفاده از راکتور بسترسیال مخروطی است که در حال حاضر بیش‌تر مورد توجه قرار گرفته است. یکی از برتری‌های اصلی این سامانه انجام هم فرایند گرانول کردن و هم خشک شدن در یک دستگاه واحد است.

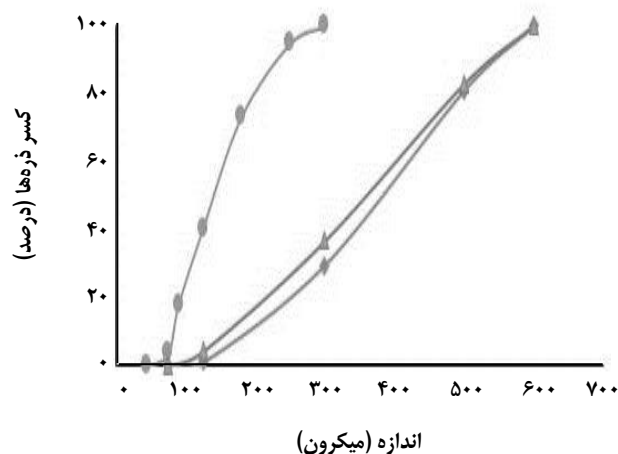
آزمایش‌های گرانول‌سازی ذره‌های سدیم پرکربنات توسط روش سطح پاسخ طرح شد. چهار متغیر مهم، یعنی دمای هوای ورودی به بستر، فشار هوای نازل، مقدار محلول اتصال‌دهنده و غلظت محلول اتصال‌دهنده بررسی شد. پس از بررسی‌های به عمل آمده مشخص شد که با افزایش دمای ورودی به بستر و فشار هوای نازل، اندازه گرانول کاهش یافت و با افزایش مقدار و غلظت محلول اتصال‌دهنده اندازه گرانول افزایش یافت. بهترین عملکرد در دمای ورودی پایین، فشار هوای پایین، مقدار محلول اتصال‌دهنده بالا و غلظت محلول اتصال‌دهنده بالا دیده شد.



شکل ۱۲ - نمودار تغییرهای اندازه ذره-مقدار محلول اتصال‌دهنده.



شکل ۱۳ - نمودار تغییرهای اندازه ذره-غلظت محلول اتصال‌دهنده.



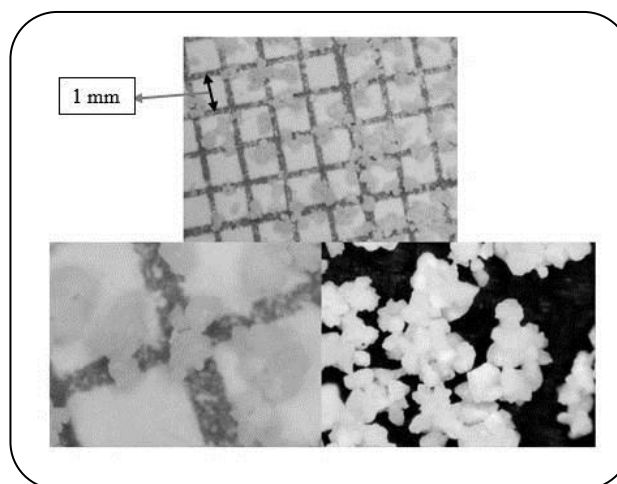
شکل ۱۴ - مقایسه توزیع اندازه ماده اولیه، آزمون ۲۳ و پودر شوینده.

جدول ۷- نقطه‌های بهینه فرایند گرانول کردن.

شماره آزمایش	دما	فشار	مقدار محلول	غلظت	اندازه	شاخص رضایتمندی
۱	۶۰،۰۰	۳،۰۴	۷۲،۹۴	۳۰،۰۰	۴۸۵	۱
۲	۶۳،۷۱	۳،۱۰	۸۱،۹۶	۲۹،۶۵	۴۸۵	۱
۳	۶۰،۷۹	۳،۳۷	۸۸،۴۴	۲۸،۲۶	۴۸۵	۱
۴	۶۰،۰۱	۳،۷۰	۸۹،۹۹	۲۹،۹۸	۴۸۵	۱
۵	۶۰،۱۹	۳،۰۱	۸۰،۸۶	۲۷،۳۸	۴۸۵	۱
۶	۶۱،۶۶	۳،۴۹	۸۹،۲	۲۹،۳۹	۴۸۵	۱
۷	۶۰،۱۱	۳،۲۶	۷۹،۲۴	۲۹،۸۷	۴۸۵	۱
۸	۶۰،۱۶	۳،۳۵	۸۲،۲۱	۲۹،۷۱	۴۸۵	۱
۹	۶۰،۵۰	۳،۰۱	۷۵،۷۷	۲۹،۱۳	۴۸۵	۱
۱۰	۶۰،۷۵	۳،۰۲	۷۵،۲۷	۲۹،۵۲	۴۸۵	۱
۱۱	۶۰،۰۳	۳،۶۳	۸۶،۶۸	۲۹،۸۲	۴۸۵	۱
۱۲	۶۰،۴۶	۳،۰۲	۷۵،۲۸	۲۹،۳۵	۴۸۵	۱
۱۳	۶۰،۳۱	۳،۰۷	۷۹،۴۶	۲۸،۳۴	۴۸۵	۱
۱۴	۶۹،۷۵	۳،۰۲	۸۹،۸۱	۲۹،۷۳	۴۸۵	۱
۱۵	۶۹،۹۶	۳،۰۵	۸۷،۶۱	۲۹،۶۷	۴۸۵	۱
۱۶	۶۷،۵	۳،۰۱	۸۹،۹۲	۲۸،۴۰	۴۸۵	۱
۱۷	۶۷،۶۸	۳،۰۶	۸۸،۵۶	۲۹،۳۲	۴۸۵	۱
۱۸	۶۰،۱۲	۳،۶۵	۸۹،۳۹	۲۹،۸۳	۴۸۵	۱
۱۹	۶۰،۴۱	۳،۰۵	۸۵،۷۸	۲۶،۳۰	۴۸۵	۱
۲۰	۶۰،۷۴	۳،۰۱	۸۹،۴۹	۲۵،۰۳	۴۸۵	۱
۲۱	۶۴،۲۹	۳،۳۴	۸۸،۲۰	۲۹،۸۷	۴۸۵	۱
۲۲	۶۴،۵۸	۳،۱۲	۸۳،۵۳	۲۹،۷۴	۴۸۵	۱
۲۳	۶۰،۰۰	۳،۷۰	۸۹،۸۴	۳۰،۰۰	۴۸۵	۱
۲۴	۶۰،۱۱	۳،۵۷	۸۷،۷۱	۲۹،۶۷	۴۸۵	۱
۲۵	۶۰،۰۰	۳،۳۱	۷۹،۰۰	۳۰،۰۰	۴۷۲	۱

قدردانی

این پژوهش در قالب پایان‌نامه کارشناسی ارشد (با عنوان بررسی آزمایشگاهی فرایند گرانول کردن و خشک‌کردن در بسترسبیل مخروطی) در دانشگاه سمنان انجام شده است. از خانم مهندس صنایع مقدم که در راه‌اندازی این سامانه و انجام پروژه کمال همکاری را داشتند، تشکر و قدردانی می‌شود.



شکل ۱۵- نمایی از ذره‌های پودر سدیم پرکربنات در آزمون ۲۳.

تاریخ دریافت: ۱۳۹۴/۱۲/۱۷ ؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۶/۲/۴

مراجع

- [۱] ارجمندی، مهدی؛ الحسینی، سید حسن؛ سیدین، سیدهادی، بررسی آزمایشگاهی فرایند پوشش دهی پودر سدیم پرکربنات با محلول سدیم سیلیکات در بسترسیتال، نشریه شیمی و مهندسی شیمی ایران، (۴) ۳۲: ۴۵ تا ۵۸ (۱۳۹۲).
- [2] Fries L., Antonyuk S., Heinrich S., Palzer S., [Dem-Cfd Modeling of a Top-Spray Fluidized Bed Granulator and a Wurster-Coater](#), *Chemical Engineering Science*, **66**(11): 2340–2355(2011).
- [3] Aleksic I., Duris J., Ilicb I., Ibrica S., Parojcica J., Srcic, S., [In Silico Modeling of in Situ Fluidized Bed Melt Granulation](#), *International Journal of Pharmaceutics*, **466**(1-2): 21–30(2014).
- [4] Catak M., Bas N., Cronin K., [Markov Chain Modelling of Fluidised Bed Granulation](#), *Chemical Engineering Journal*, **164**(2-3): 403–409(2010).
- [5] Seo A., Holm P., Schæfer T., [Effects of Droplet Size and Type of Binder on the Agglomerate Growth Mechanisms by Melt Agglomeration in a Fluidised Bed](#), *European Journal of Pharmaceutical*, **16**(3): 95–105(2002).
- [6] Hemati M., Cherif R., Saleh K., Pont V., [Fluidized Bed Coating and Granulation: Influence of Process-Related Variables and Physicochemical Properties on the Growth Knetics](#), *Powder Technology*, **130**(1): 18–34(2003).
- [7] Walker G. M., Andrews G., Jones D., [Effect of Process Parameters on the Melt Granulation of Gharmaceutical Powders](#), *Powder Technology*, **165**(3): 161–166(2006).
- [8] Chen Y., Yang J., Dave R. N., Pfeffer R., [Granulation of Cohesive Geldart Group C Powders in a Mini-Glatt Fluidized Bed by Pre-Coating with Nanoparticles](#), *Powder Technology*, **191**(1–2): 206–217(2009).
- [9] Tan H. S., Salman A. D., Hounslow M. J., [Kinetics of Fluidised Bed Melt Granulation I: The Effect of Process Variables](#), *Chemical Engineering Science*, **61**(5): 1585–1601(2006).
- [10] Ziyani L., Fatah N., [Use of Experimental Designs to Optimize Fluidized Bed Granulation of Maltodextrin](#), *Advanced Powder Technology*, **25**(3): 1069–1075(2014).
- [11] Srinivasakannan C., Balasubramaniam N., [Particle Growth in Fluidised Bed Granulation](#), *Chem. Biochem. Eng.*, **17**(3): 201–205(2003).
- [12] Davies W.L., Gloor W.T., [Batch Production of Pharmaceutical Granulations in a Fluidized Bed I: Effects of Process Variables on Physical Properties of Final Granulation](#), *J. Pharm. Sci.*, **60**(12):1869–1874(1971).
- [13] Patel T. B., Patel L. D., Patel T. B., Makwana S. H., Patel T. R., [Influence of Process Variables on Physicochemical Properties of the Granulation Mechanismo of Diclofenac Sodium in Fluid Bed Granulation](#), *International Journal of Pharmaceutical Review and Research*, **3**(1): 61–65(2010).

- [14] Patnaik K.S.K.R., Sriharsha K., [Granule Growth Mechanism Studies in a Fluidized Bed Granulation](#), *Int. J. Chem. Eng. Appl.*, **1**(3): 282-286(2010).