

УДК 66.099.2

ТЕОРЕТИКО-ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ГРАНУЛИРОВАНИЯ ВО ВЗВЕШЕННОМ СЛОЕ РАСТВОРОВ ДИАММОНИЕВЫХ СОЛЕЙ СЕРНОЙ КИСЛОТЫ

© 2024 г. О. М. Флисюк^{a,*}, Н. А. Марцулевич^a, В. П. Мешалкин^{b,c}, И. Г. Лихачев^a

^aСанкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет),
Санкт-Петербург, Россия

^bРоссийский государственный химико-технологический университет им. Менделеева, Москва, Россия

^cИнститут физической химии и электрохимии им. Фрумкина РАН, Москва, Россия

*e-mail: flissiyk@mail.ru

Поступила в редакцию 20.02.2024 г.

После доработки 30.05.2024 г.

Принята к публикации 10.06.2024 г.

В статье представлена математическая модель процесса гранулирования во взвешенном слое растворов диаммониевых солей серной кислоты. Получены выражения для расчета прироста гранул, а также для расчета плотности функции распределения гранул на выходе из аппарата и выражения для расчета дисперсии распределения в зависимости от характеристики внешнего рецикла и параметров процесса. Показана адекватность представленного математического описания реальному процессу.

Ключевые слова: гранулирование, математическая модель, внешний рецикл, плотность функции распределения, дисперсия распределения

DOI: 10.31857/S0040357124030081 **EDN:** BVXFQR

ВВЕДЕНИЕ

Сушка растворов, как правило, осуществляется в распылительных сушилках [1–3], в которые раствор подается с помощью пневматических или механических форсунок. При этом продукт получается в виде тонкодисперсного порошка или мелких гранул, как в производстве синтетических моющих средств. Недостатком такого метода сушки является большое количество образующейся пыли, которая содержится как в основном продукте, так и улавливается в циклонах и рукавных фильтрах. Эта пылевидная фракция, как правило, затем снова возвращается в процесс и используется для приготовления раствора. Наряду с распылительной сушкой для растворов применяются и сушильные аппараты со взвешенным слоем. В отечественной литературе одними из первых монографий, посвященных этой проблеме, были работы О.М. Тодеса с учениками [4] и П.Г. Романкова с Н.Б. Рашковской [5]. В настоящее время сушке растворов и суспензий во взвешенном слое посвящено много работ как в нашей стране, так и за рубежом [6–16]. В аппаратах со взвешенным слоем можно получать более крупный гранулированный продукт при не-

высоком образовании пылевой фракции. В этом случае подача жидкой фазы осуществляется не в полую емкость, как при распылительной сушке, а на слой сухих гранул, которые интенсивно перемешиваются, благодаря чему жидкая фаза равномерно распределяется по поверхности гранул в виде тонкой пленки и быстро высыхает, не давая слипаться гранулам. В этом случае процесс сушки совмещается с процессом гранулирования, а в аппарат наряду с подачей жидкой фазы осуществляется и подача внешнего рецикла в виде мелких некондиционных гранул, на поверхность которых и распыляется высушиваемый раствор. Высушенный продукт не содержит пылевой фракции и имеет дисперсный состав от 2 до 5 мм. Так, например, сушат растворы сульфата аммония, хлорида кальция и др. [15]. Дисперсный состав гранул зависит от конструктивных параметров аппарата, гидродинамической интенсивности работы слоя, способа ввода раствора в аппарат и т.д. [6].

Математическое описание изменения дисперсного состава получаемого продукта из раствора во взвешенном слое представляет собой трудную задачу, так как в общем случае это

сложный процесс, включающий в себя такие процессы, как агломерация, непрерывный рост, истирание и дробление. Поэтому математическая модель обычно разрабатывается для каждого конкретного случая с учетом его специфики. На сегодняшний день в научной литературе появились работы с использованием для моделирования химико-технологических процессов, в том числе гранулирования, искусственной нейронной сети и CFD-DEM методов [17–29]. Однако практическая реализация этих методов для решения таких сложных задач требует больших вычислительных ресурсов, что сдерживает их широкое применение.

ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

Гранулирование из растворов в общем случае рассматривается как сложный процесс, представляющий собой совокупность одновременно протекающих процессов непрерывного роста, агломерации, дробления и истирания частиц. Обобщенное уравнение, описывающее такой процесс при гранулировании в псевдооживленном слое, имеет вид [26–27]:

$$\frac{\partial F}{\partial t} + \text{div}(\vec{v} - D\vec{\nabla})F + \frac{\partial}{\partial m}\left(u - \frac{1}{2}\frac{\partial}{\partial m}b\right)F = I^+ - I^-, \quad (1)$$

где $F(m, r, t)$ — плотность функции распределения числа частиц по их массам; ∇ — оператор Гамильтона; $\vec{r} = \{x_i, i = \overline{1,3}\}$, x_i — пространственные координаты; m — координата, связанная с массой частицы; D — эффективный коэффициент диффузии (коэффициент перемешивания частиц); $0.5b$ — коэффициент квазидиффузии в пространстве масс частиц m , учитывающий стохастическую неравномерность изменения массы частицы; $\vec{v} = \{v_i, i = \overline{1,3}\}$, v_i — компоненты вектора скорости движения частиц слоя массой m ; u — суммарная массовая скорость непрерывного роста частиц, t — время, I^+ и I^- — суммарные источники и стоки частиц массой m за счет агломерации и дробления.

$$I^+ = \frac{1}{2} \int_0^\infty k(t, \vec{r}, m-s, s) F(\vec{r}, m-s, t) F(\vec{r}, s, t) ds + \int_m^\infty g(t, \vec{r}, s; s-m, m) F(\vec{r}, s, t) ds, \quad (2)$$

$$I^- = \left[\int_0^\infty k(t, \vec{r}, m, s) F(\vec{r}, s, t) ds + \frac{1}{2} \int_0^m g(t, \vec{r}, m; m-s, s) ds \right] F(\vec{r}, s, t). \quad (3)$$

Здесь $k(t, \vec{r}, m, s)$ — ядро интегрального преобразования, характеризующее вероятность агломерации двух частиц массой m и s в системе, $\vec{r} = \{x_i, i = \overline{1,3}\}$, x_i — пространственные координаты, $g(t, \vec{r}, m; m-s, s)$ — плотность вероятности дробления частицы массой m на два осколка $m-s$ и s за единицу времени.

Если в процессе гранулирования агломерация мелких частиц отсутствует и увеличение массы гранул происходит только за счет их непрерывного роста, то выражения (2) и (3) упрощаются:

$$I^+ = \int_x^\infty g(t, \vec{r}, s; s-m, m) F(\vec{r}, s, t) ds, \quad (4)$$

$$I^- = \frac{1}{2} F(\vec{r}, s, t) \int_0^m g(t, \vec{r}, m; m-s, s) ds. \quad (5)$$

Кроме того, проведенный теоретический анализ в работах [18, 19] показал, что при выполнении соотношения $\tau u \gg m_p$, здесь m_p — масса частицы минимального размера, а τ — среднее время пребывания гранул в аппарате, диффузионным членом в пространстве m , учитывающим стохастическую неравномерность изменения массы частицы, можно пренебречь.

В качестве источника центров гранулообразования могут быть мелкие частицы, подаваемые в аппарат в виде внешнего рецикла, или мелкие частицы, образующиеся в аппарате в результате сушки мелких капель раствора или дробления более крупных частиц. Механизм дробления также может быть различным — за счет возникающих в частице термических напряжений [4] или за счет столкновений крупных гранул друг с другом или со стенкой аппарата.

Предварительные экспериментальные исследования процесса гранулирования из раствора диаммониевых солей серной кислоты в аппарате со взвешенным слоем показали, что в процессе гранулирования дробление гранул внутри аппарата не происходит. Поэтому для проведения устойчивого процесса необходим внешний рецикл, т.е. подача в слой мелких частиц, являющихся центрами гранулообразования. Кроме того, экспериментально установлено, что при гранулировании раствора диаммониевых солей серной кислоты во взвешенном слое агломерация гранул внутри аппарата также не происходит. Тогда, пренебрегая истиранием, уравнение для плотности функции распределения гранул по массам $F(m, t)$ будет иметь вид:

$$\frac{\partial F}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial m}(uF) + \frac{1}{\tau_2} F = \frac{1}{\tau_2} F_0(m). \quad (6)$$

Аналогичное уравнение для описание такого процесса получено и в работе [28].

Так как рост гранул происходит за счет налипания на гранулы капель раствора, то это уравнение необходимо дополнить уравнением для изменения концентрации капель раствора в аппарате при контакте с гранулами слоя.

Таким образом, система уравнений, описывающая рост крупных частиц за счет капель раствора, примет вид:

$$\frac{dc}{dt} + \frac{1}{\tau_1} c + c \int_0^\infty \gamma(s) F(s, t) ds = \frac{1}{\tau_1} c_o(t), \quad (7)$$

$$\frac{\partial F}{\partial t} + \frac{1}{\tau_2} F + \frac{\partial}{\partial x}(uF) = \frac{1}{\tau_2} F_o(m, t), \quad (8)$$

где $c = m_p v_1 / v$ – концентрация капель раствора в единице объема аппарата, v – объем рабочей части аппарата; τ_1 – среднее время пребывания капель раствора в аппарате; m_p – средняя масса частицы пылевидной фракции, $u(m, t) = c(t)\gamma(m)v$.

Решение данной системы уравнений для установившегося режима дает следующие выражения:

$$F(m) = \frac{N_o}{\tau_2 u(m)} \int_{x_o}^x \Phi_o(\xi) d\xi \exp \left[- \int_{\xi}^x \frac{ds}{\tau_2 u(s)} \right], \quad (9)$$

$$\Phi_o(m) = F_o(m) / N,$$

$$c = c_o / (1 + \tau_1 \bar{\gamma} N), \quad (10)$$

$$\text{или } c = c_o - \frac{\tau_1 u N}{v}.$$

В процессах гранулирования и укрупнения частиц часто удобнее определять функцию распределения частиц не по массам, а по радиусу. Уравнение (9) инвариантно относительно замены m на r – радиус частицы, следовательно, инвариантно будет и его решение, только в этом случае $u(r)$ будет не массовая, а линейная скорость роста частиц.

Тогда для проточного аппарата идеального перемешивания при замене m на r уравнение (7) для установившегося процесса будет иметь вид:

$$4\pi \rho_T \tau_1 n_{cl} \int_{r_{min}}^\infty u(r) r^2 \Phi(r) dr, \\ \Phi(r) = F(r) / N_{cl}, \quad (11)$$

где $n_{cl} = N_{cl} / v$ – число гранул в единице объема рабочей части аппарата, N_{cl} – число гранул во всем объеме рабочей части аппарата v , ρ_T – плотность гранулы. При выводе ранее полученных соотношений был использован вариант парного столкновения и слипания частиц. Если на гранулу одновременно оседают не по одной, а по две, три и более частиц мелкой фракции, но так, что за контрольный промежуток времени число осевших частиц в среднем одинаково, то рассматриваемые модели экспериментально неразли-

чимы и их следует считать эквивалентными, а столкновения парными.

Если $u = const$, что справедливо для аппаратов с псевдооживленным слоем [4], тогда так как

$$\bar{r}^2 = \frac{N_o}{\tau_2 u} \int_{r_{min}}^\infty r^2 dr \int_{r_{min}}^r \Phi_o(\xi) \exp \left(- \frac{r - \xi}{\tau_2 u} \right) d\xi,$$

то есть

$$\bar{r}^2 = \bar{r}_o^2 + 2\bar{r}_o u \tau_2 + 2(u \tau_2)^2, \quad (12)$$

$\bar{r}^2 = \bar{r}_o^2 + u \tau_2$ и дисперсия функции распределения на выходе из аппарата будет

$$\sigma^2 = \bar{r}^2 - (\bar{r})^2 = \sigma_o^2 + (u \tau_2)^2.$$

Обозначим $u \tau_2 = \delta$ прирост частицы, тогда уравнение (11) с учетом выражения (12) можно переписать следующим образом:

$$\delta^3 + \bar{r}_o \delta^2 + \frac{\bar{r}_o^2 \delta}{2} = \frac{(c_o - c_{yn}) \tau_2}{8\pi \rho_T n_{cl} \tau_1}. \quad (13)$$

Решение уравнения (13) относительно δ имеет вид:

$$\delta = \left(\sqrt{a^2 + p^3} + a \right)^{1/3} - \left(\sqrt{a^2 + p^3} - a \right)^{1/3} - \frac{\bar{r}_o}{3}, \quad (14)$$

где

$$a = \frac{(\bar{r}_o)^3}{12} \left(\frac{5}{9} + \xi^2 + \frac{\tau_2 (c_o - c_{yn}) v}{\tau_1 \frac{4}{3} \pi \rho_T N_{cl} (\bar{r}_o)^3} \right), \\ p = \frac{(\bar{r}_o)^2}{18} (1 + 3\xi^2), \quad \xi = \frac{\sigma_o}{\bar{r}_o}.$$

Обычно масса слоя в аппарате поддерживается постоянной, то есть $M_{cl} = const$. Так как из закона сохранения массы следует, что

$$N_{cl} \bar{x}_o + (c_o - c_{yn}) v = M_{cl}, \quad (15)$$

то

$$N_{cl} = \frac{M_{cl} - (c_o - c_{yn}) v}{\bar{x}_o}. \quad (16)$$

Подставляя формулу (16) в выражение для расчета “ a ”, окончательно получаем:

$$a = \frac{(\bar{r}_o)^3}{12} \left(\frac{5}{9} + \xi^2 + \frac{\tau_2 (c_o - c_{yn}) v}{[M_{cl} - (c_o - c_{yn}) v] \tau_1 (\bar{r}_o)^3} \right). \quad (17)$$

Если исходный материал монодисперсный, то выражение упрощается:

$$a = \frac{(\bar{r}_o)^3}{12} \left(\frac{5}{9} + \frac{(c_o - c_{yn}) v \tau_2}{\tau_1 [M_{cl} - (c_o - c_{yn}) v]} \right). \quad (18)$$

Рассмотрим случай, когда $u = dr/dt = Ar$, то есть когда имеет место первый порядок скорости роста частиц (такой случай встречается, например, при гранулировании из суспензий и растворов в фонтанирующем слое), тогда уравнения (8) и (7) примут вид:

$$F + A\tau_2 \frac{\partial}{\partial r}(r, F) = F_o(r), \quad (19)$$

$$A\tau_1 \bar{r}^3 = \frac{(c_o - c_{yh})v}{4\pi r_T N_{cl}}. \quad (20)$$

Задача состоит в определении коэффициента A при условии, что $N_{cl} = \text{const}$.

Из уравнения (19) следует, что

$$\bar{r}^3 = \frac{\bar{r}_o^3}{1 - 3A\tau_2}, \bar{r}^2 = \frac{\bar{r}_o^2}{1 - 2A\tau_2}, \bar{r} = \frac{\bar{r}_o}{1 - A\tau_2}. \quad (21)$$

Поэтому можно записать:

$$\frac{A\tau_1}{1 - 3A\tau_2} = \frac{(c_o - c_{yh})v}{4\pi r_T N_{cl} \bar{r}_o^3} = \frac{(c_o - c_{yh})v}{3\bar{x}_o N_{cl}} \equiv \beta, \quad (22)$$

тогда следует, что

$$A = \frac{\beta}{\tau_1 + 3\beta\tau_2}. \quad (23)$$

Так как $M_{cl} = \text{const}$, то с учетом (15) выражение для β примет вид:

$$\beta = \frac{(c_o - c_{yh})v}{3[M_{cl} - (c_o - c_{yh})v]}.$$

С другой стороны, в соответствии с формулами (21) можно записать:

$$A\tau_2 = \frac{1}{3} \left(1 - \frac{\bar{v}_o}{\bar{v}} \right) = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\bar{s}_o}{\bar{s}} \right) = 1 - \frac{\bar{r}_o}{\bar{r}},$$

где v — объем частицы, а s — ее поверхность.

Решение уравнения (19) при начальном условии $F(r)_{r=0} = 0$ дает выражение для плотности распределения частиц по размерам на выходе из аппарата:

$$F(r) = \frac{1}{br} \int_{r_{min}}^r \left(\frac{\xi}{r} \right)^{\frac{1}{b}} F_o(\xi) d\xi, \quad (24)$$

где $b = A\tau_2$.

Дисперсию распределения в этом случае можно определить так:

$$\sigma^2 = \bar{r}^2 - (\bar{r})^2 = \frac{\bar{r}_o^2}{1 - 2A\tau_2} - \left(\frac{\bar{r}_o}{1 - A\tau_2} \right)^2 =$$

$$= \frac{(\bar{r}_o)^2 + \sigma_o^2}{1 - 2A\tau_2} - \frac{(\bar{r}_o)^2}{(1 - 2A\tau_2)^2}.$$

Откуда следует, что

$$\sigma^2 = \left(\sigma_o^2 + \frac{(\bar{r}_o)^2 \beta^2 \tau_2^2}{(\tau_1 + 2\beta\tau_2)^2} \right) \left(\frac{\tau_1 + 3\beta\tau_2}{\tau_1 + \beta\tau_2} \right). \quad (25)$$

Для монодисперсного материала $\sigma_o = 0$, и последнее выражение упрощается:

$$\sigma^2 = \frac{\beta(\tau_1 + 3\beta\tau_2)(\bar{r}_o)^2 \tau_2^2}{(\tau_1 + 2\beta\tau_2)^2 (\tau_1 + \beta\tau_2)}. \quad (26)$$

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для оценки адекватности предложенной математической модели гранулирования растворов диаммониевых солей серной кислоты реальному процессу были проведены экспериментальные исследования на установке с фонтанирующим слоем с двухсторонним щелевым подводом газа при различных режимах [29]. В качестве внешнего рецикла была использована фракция мелких частиц, полученных в результате дробления крупных гранул диаммониевых солей серной кислоты на валковой дробилке. Дисперсный состав этой фракции можно описать с некоторым приближением Гамма-распределением:

$$\Phi_0(\zeta) = \frac{\alpha^\alpha \zeta^{3(\alpha-1)}}{\Gamma(\alpha)} 3\zeta^2 e^{-\alpha\zeta^3}, \quad (27)$$

где $\alpha = 3,35$ (рис. 1, кривая 2).

Подстановка плотности распределения (27) в формулу (24) приводит к следующему выра-

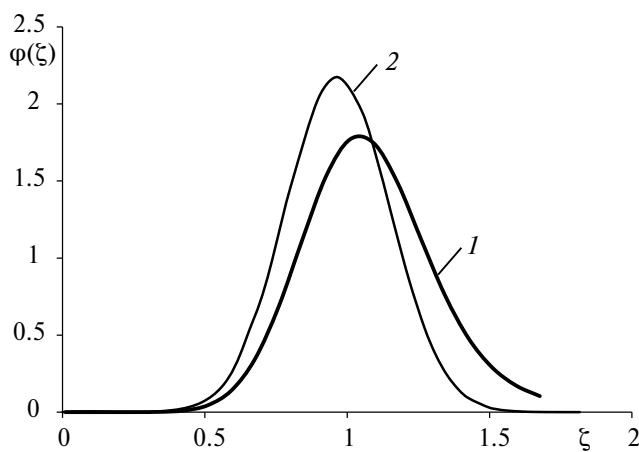


Рис. 1. Плотность распределения гранул приведенного радиуса, $\zeta = \frac{r}{r_0}$.

жению для плотности распределения гранул по приведенному радиусу при скорости роста, пропорциональной радиусу частиц:

$$\varphi(\zeta) = \frac{1}{b\zeta} \int_{\zeta_{\min}}^{\zeta} \left(\frac{\xi}{\zeta}\right)^{\frac{1}{b}} \frac{\alpha \xi^{3(\alpha-1)}}{\Gamma(\alpha)} 3\xi^2 e^{-\alpha\xi^3} d\xi. \quad (28)$$

На рис. 1 представлены расчетные кривые, полученные по формулам (27) и (28), для внешнего рецикла и продукта на выходе из аппарата при значении $b = 0.11$. Анализ кривой плотности распределения гранул по приведенному радиусу

$\zeta = \frac{r}{r_0}$, рассчитанной по формуле (28), и экспериментальных результатов на гистограмме, представленных на рис. 2, показал удовлетворительную сходимость результатов, отклонение составляет не более 12%.

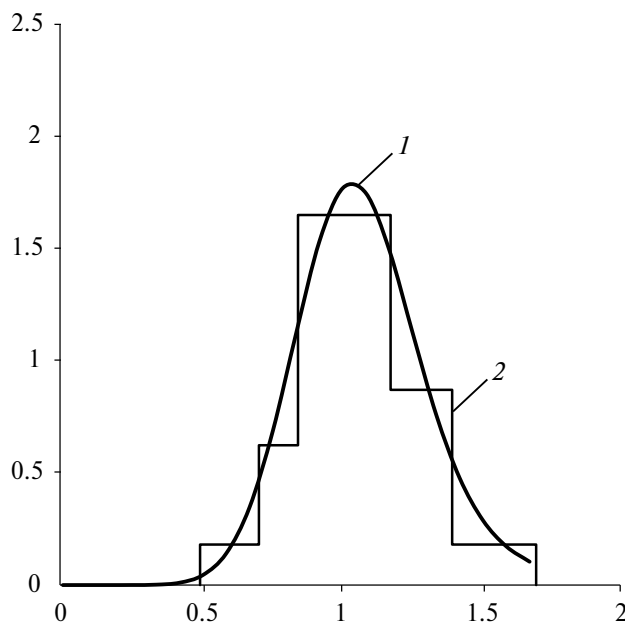


Рис. 2. Сравнение теоретических и экспериментальных результатов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, предложенная математическая модель достаточно хорошо описывает полученные экспериментальные результаты для оценки дисперсного состава частиц, получаемых при гранулировании растворов диаммониевых солей серной кислоты в фонтанирующем слое. Она позволяет рассчитать дисперсный состав готового продукта. Кроме того, на основе предложенного подхода получено выражение,

позволяющее рассчитать средний прирост гранул, и определить средний размер получаемых гранул. Для этого достаточно знать характеристики распределения внешнего рецикла и параметры процесса гранулирования. Предложенная математическая модель процесса может быть использована и для расчета дисперсного состава гранул других продуктов, получаемых при гранулировании растворов в фонтанирующем слое с аналогичным механизмом образования гранул.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 21-79-30029).

ОБОЗНАЧЕНИЯ

$F(m, t)$	плотность функции распределения частиц по их массе m , 1/кг
$\bar{w}$	средняя скорость движения твердой фазы, м/с
D_p	коэффициент перемешивания твердой фазы, м ² /с
$u(m, t)$	суммарная средняя скорость непрерывного роста частиц, кг/с
D_m	коэффициент диффузии в пространстве масс, кг ² /с
I^+	источник возникновения частиц данной массы (объема) за счет коагуляции более мелких, 1/кг·с
I^-	источник возникновения частиц данной массы (объема) за счет дробления более крупных частиц, 1/кг·с
$k(t, \bar{r}, m, s)$	плотность вероятности агломерации двух частиц с массами m и s в единицу времени, 1/с
$g(t, \bar{r}, m, m-s, s)$	плотность вероятности дробления частицы массой m на два осколка с массами $m-s$ и s , 1/с
N_0	число частиц, поступающих в аппарат в единицу времени
C	концентрация капель раствора в единице объема аппарата, кг/м ³
v	объем рабочей части аппарата, м ³
v_1	количество капель раствора в рабочей части аппарата
τ_1	среднее время пребывания капель раствора в аппарате, с
m_p	средняя масса частицы пылевидной фракции, кг
τ_2	среднее время пребывания гранул в аппарате, с
r	радиус частицы

$F(r)$	плотность функции распределения гранул по размеру (радиусу) r , 1/м
δ	прирост частицы, м
σ^2	дисперсия функции распределения, м ²
$\Gamma(x)$	гамма-функция
z	продольная координата, м

ИНДЕКСЫ

0	начальный (входной) поток
1	мелкая фракция
2	крупная фракция

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Лыков М.В., Леончик Б.И. Распылительные сушилки. М., Машиностроение, 1966.
2. Классен П.В., Гришаев И.Г. Основы техники гранулирования. М., Химия, 1982.
3. Нестеров А.В. Промышленная сушка. СПб., Лань, 2021.
4. Тодес О.М., Каганович Ю.Я., Налимов С.П., Гольцикер А.Д. Обезвоживание растворов в кипящем слое. М., Металлургия, 1973.
5. Романков П.Г., Рашковская Н.Б. Сушка во взвешенном слое. СПб., Химия, 1979.
6. Фролов В.Ф., Флисюк О.М. Гранулирование во взвешенном слое. СПб., Химиздат, 2007.
7. Geng P., Chen X., Pan S., Zan H., Ma J., Liu D., Liang C. Experimental investigation of the particle growth mechanism and influencing factors during granulation process by pyrohydrolysis in fluidized bed // J. Environ. Chem. Eng. 2023. V. 11. Issue 1.
8. Villa M.P., Bertin D.E., Cotabarren I.M., Pina J., Bucala V. Fluidized-bed melt granulation: coating and agglomeration kinetics and growth regime prediction // Powder Technol. 2016. V. 300. P. 61.
9. Diez E., Meyer K., Buck A., Tsotsas E., Heinrich S. Influence of process conditions on the product properties in a continuous fluidized bed spray granulation process // Chem. Eng. Res. Des. 2018. V. 139. P. 104.
10. Hoffmann T., Rieck C., Bück A., Peglow M., Tsotsas E. Influence of granule porosity during fluidized bed spray granulation // Procedia Eng. 2015. V. 102. P. 458.
11. Rieck C., Hoffmann T., Buck A., Peglow M., Tsotsas E. Influence of drying conditions on layer porosity in fluidized bed spray granulation // Powder Technol. 2015. V. 272. P. 120.
12. Hoffmann T., Rieck C., Schmidt M., Buck A., Peglow M., Tsotsas E. Prediction of shell porosities in continuous fluidized bed spray layering // Dry. Technol. 2015. V. 33. P. 1662.
13. Tian S.H., Sun J.Y., Fan X.Q., Yang Y., Huang Z.L., Wang J.D., Yang Y.R. A volatile spray zone model and experimentation in a gas-solid fluidized bed with liquid injection // Chem. Eng. Sci. 2021. V. 231. P. 21.
14. Börner M., Hagemeier T., Ganzer G., Peglow M., Tsotsas E. Experimental spray zone characterization in top-spray fluidized bed granulation // Chem. Eng. Sci. 2016. V. 116. P. 317.
15. Wang G., Yang L., Lan R., Wang T., Jin Y. Granulation by spray coating aqueous solution of ammonium sulfate to produce large spherical granules in a fluidized bed // Particuology 2013. V. 11. P. 483.
16. Hemati M., Cherif R., Saleh K., Pont V. Fluidized bed coating and granulation: Influence of process-related variables and physicochemical properties on the growth kinetics // Powder Technol. 2003. V. 130. P. 18.
17. Kieckhefen P., Pietsch-Braune S., Heinrich S. Product-property guided scale-up of a fluidized bed spray granulation process using the CFD-DEM Method // Processes 2022. V. 10. P. 1291.
18. Bahramian A., Olazar M. Evaluation of elastic and inelastic contact forces in the flow regimes of titania nanoparticle agglomerates in a bench-scale conical fluidized bed: a comparative study of CFD-DEM simulation and experimental data // Chem. Eng. Res. Des. 2021. V. 176. P. 34.
19. Golshan S., Sotudeh-Gharebagh R., Zarghami R., Mostoufi N., Blais B., Kuipers J. Review and implementation of CFD-DEM Applied to chemical process systems // Chem. Eng. Sci. 2020. V. 221. P. 115646.
20. Kinaci M.E., Lichtenegger T., Schneiderbauer S. A CFD-DEM model for the simulation of direct reduction of iron-ore in fluidized beds // Chem. Eng. Sci. 2020. V. 227. P. 115858.
21. Kieckhefen P., Lichtenegger T., Pietsch S., Pirker S., Heinrich S. Simulation of spray coating in a spouted bed using recurrence CFD // Particuology. 2018. V. 42. P. 92.
22. Kieckhefen P., Pietsch S., Höfert M., Schönherr M., Heinrich S., Kleine J.F. Influence of gas inflow modelling on CFD-DEM simulations of three-dimensional prismatic spouted beds // Powder Technol. 2018. V. 329. P. 167.
23. Catak M., Cronin K., Medina-Tellez D., Markov C. Modeling of fluidized bed granulation incorporating simultaneous aggregation and breakage // Ind. Eng. Chem. Res. 2011. V. 50. № 18. P. 10811.
24. Mizonov V., Mitrofanov A., Tannous K., Ovchinnikov L. Computational and experimental study of granulation in fluidized bed reactor // Chem. Chem. Tech. [Izv. Vyssh. Uchebn. Zaved. Khim. Khim. Tekhnol.] 2019. V. 62. № 5. P. 97.
25. Song Y., Zhou T., Bai R., Zhang M., Yang H. Review of CFD-DEM modeling of wet fluidized bed granulation and coating processes // Processes. 2023. V. 11. № 2. P. 382.
26. Flisyuk O.M., Martsulevich N.A., Meshalkin V.P., Garabadzhiu A.V. Mathematical modeling of changes in

- the dispersed composition of solid phase particles in technological apparatuses of periodic and continuous action // *Mathematics*. 2022. V. 10. P. 994.
27. Романков П.Г., Фролов В.Ф., Флисюк О.М. Массообменные процессы химической технологии. СПб., Химиздат, 2017. С. 440.
28. Muratov O.V., Flisyuk O.M., Frolov V.F., Bekh-Ivanov A.D. Modeling of fluidized-bed granulation from solutions with an external recycle // *Theor. Found. Chem. Eng.* 2010. V. 44. № 4. P. 413. [Муратов О.В., Флисюк О.М., Фролов В.Ф., Бех-Иванов А.Д. Моделирование процесса гранулирования из раствора во взвешенном слое с внешним рециклом // *Теорет. основы хим. технологии*. 2010. Т. 44. № 4. С. 431.]
29. Флисюк О.М., Прохоров М.В., Муратов О.В., Круковский О.Н. Экспериментальное исследование процесса гранулирования раствора сульфата аммония в фонтанирующем слое // *Известия СПбГТИ(ТУ)*. 2012. № 13 (39). С. 71.