UNIVERZA V LJUBLJANI FAKULTETA ZA FARMACIJO

IGOR PONIKVAR

# MAGISTRSKA NALOGA

### INDUSTRIJSKA FARMACIJA

Ljubljana, 2014

Univerza *v Ljubljani* Fakulteta *za farmacijo* 



# IGOR PONIKVAR

# VREDNOTENJE LOKALNEGA VOLUMSKEGA DELEŽA PELET V VALJU WURSTERJEVE KOMORE S TRANSMITANCO LASERSKEGA ŽARKA

# EVALUATION OF THE LOCAL VOLUME FRACTION OF PELLETS IN THE CLASSIC WURSTER CHAMBER WITH TRANSMITTANCE OF THE LASER BEAM

#### INDUSTRIJSKA FARMACIJA

#### INDUSTRIAL PHARMACY

Ljubljana, 2014

Magistrsko nalogo sem opravljal na Fakulteti za farmacijo pod mentorstvom doc. dr. Roka Dreua, mag. farm.

# Zahvala

Zahvaljujem se doc. dr. Roku Dreu, mag. farm., za mentorstvo in strokovno usmerjanje pri magistrski nalogi.

Zahvala gre tudi asistentu Roku Šibancu, mag. farm., za pomoč pri delu, strokovnem usmerjanju ter nasvetih pri nastajanju magistrske naloge.

Na koncu se zahvaljujem svoji ženi Urški za potrpežljivost in spodbudo v času študija ter pomoč pri pregledu naloge.

# Izjava

Izjavljam, da sem magistrsko nalogo izdelal samostojno pod mentorstvom doc. dr. Roka Dreua, mag. farm.

Igor Ponikvar

Predsednik komisije: prof. dr. Borut Štrukelj, mag. farm.

Član komisije: doc. dr. Janez Ilaš, mag. farm.

# VSEBINA

VSEBINA	I
KAZALO PREGLEDNIC	111
KAZALO SLIK	IV
POVZETEK	V
ABSTRACT	VI
SEZNAM OKRAJŠAV	. VII
1 UVOD	1
1.1 TEHNOLOGIJA Z VRTINČENJEM	1
1.1.1 Teoretične osnove	1
1.1.2 Strojna oprema za oblaganje delcev v vrtinčnoslojnih plasteh	2
1.2 VPLIV PROCESNIH PARAMETROV NA ENAKOMERNOST OBLOGE	6
1.3 VPLIV PORAZDELITVE VELIKOSTI IN VOLUMSKEGA DELEŽA DELCEV NA ENAKOMERNOST NANOSA OBLOGE	6
1.4 KLJUČNE SPREMENLJIVKE PROCESA OBLAGANJA	7
1.5 METODE MERJENJA VOLUMSKEGA DELEŽA TRDNIH DELCEV	8
1.5.1 Izokinetično zajemanje delcev	9
1.5.2 Metoda globalnega zajemanja delcev ("hold-up of solids")	9
1.5.3 Termične metode	. 10
1.5.4 Tehnike, ki temeljijo na trkih delcev	. 10
1.5.5 Tehnike, ki temeljijo na merjenju kapacitete	. 10
1.5.6 Resonančne metode	. 11
1.5.7 Optične metode	. 13
1.6 TEORETIČNE OSNOVE METODE MERJENJA LOKALNEGA VOLUMSKEGA DELEŽA PELET	. 13
2 DELOVNA HIPOTEZA	. 15
3 EKSPERIMENTALNI DEL	. 16
3.1 MATERIALI	. 16
3.1.1 Cellets <sup>®</sup>	. 16
3.1.2 Ostali materiali	. 16
3.1.2 Naprava	. 16
3.1.3 Merilni sistem	. 17
3.2 METODE	. 18
3.2.1 Priprava frakcij pelet z ožjo distribucijo velikosti	. 19
3.2.2 Testiranje merilnega sistema	. 19
3.2.3 Določanje vsebnosti vlage in oprijem pelet na različne razmejitvene valje	. 21

3.2.4 Spreminjanje pogojev	22
3.3 ODVAJANJE STATIČNEGA NABOJA PELET	24
3.4 TEORETIČNA OSNOVA ZA OCENO VOLUMSKEGA DELEŽA	26
4 REZULTATI IN RAZPRAVA	28
4.1 PONOVLJIVOST	28
4.1.1 Ponovljivost znotraj posamezne meritve	28
4.1.2 Ponovljivost med posameznimi meritvami	32
4.2 VPLIVI IZBRANIH PARAMETROV NA VREDNOSTI TRANSMITANCE	33
4.2.1 Vpliv nastavitve višine merilnega sistema (oddaljenost od šobe)	33
4.2.2 Vpliv velikosti pelet	35
4.2.3 Vpliv količine pelet	37
4.3 VPLIV PARAMETROV NA RSD TRANSMITANCE	39
4.4 OCENA VOLUMSKEGA DELEŽA IN PRIMERJAVA Z LITERATURNIMI PODATKI	42
4.4.1 Ocena volumskega deleža s pomočjo teoretičnih izračunov	42
4.4.2 Primerjava z rezultati metode "zamrznitve" toka	44
4.4.3 Primerjava z rezultati CFD simulacije	45
4.5 PRIMERJAVA POVPREČNE VREDNOSTI TRANSMITANCE Z RSD DEBELINE OBLOGE	47
5 SKLEP	48
6 LITERATURA	50
7. PRILOGE	54

# **KAZALO PREGLEDNIC**

Preglednica I: Glavne spremenljivke pri procesu oblaganja s tehnologijo z vrtinčenjem (29, 30) 7
Preglednica II: Pregled uporabljenih metod18
Preglednica III: Meritve vlažnosti neobloženih pelet
Preglednica IV: Pogoji meritev
Preglednica V: Orientacijski parametri za neobložene pelete
Preglednica VI: Dejanski parametri za neobložene pelete
Preglednica VII: Vrednosti Beer Lambertovega prametra k za povprečne frakcije pelet
Preglednica VIII: Vrednosti dveh meritev pri velikosti frakcije 900-1000 $\mu$ m in masi 1000 g
Preglednica IX: Transmitance, povprečene na režo v odvisnosti od višine merilnega sistema 34
Preglednica X: Transmitance za tri različne FR v odvisnosti od Q <sub>zr</sub> in velikostjo reže
Preglednica XI: Vrednosti transmitance v odvisnosti od mase 900-1000 $\mu m$ pelet
Preglednica XII: Volumski delež v odvisnosti od velikosti pelet
Preglednica XIII: Volumski delež pelet v odvisnosti od mase 900-1000 $\mu$ m pelet
Preglednica XIV: Primerjava lokalnih vrednosti α, z globalnimi vrednostmi α
Preglednica XV: Primerjava lokalnih vrednosti $\alpha$ , z lokalnimi vrednostmi $\alpha$ , dobljenih s CFD 45
Preglednica XVI: Pregled zbranih ugotovitev
Preglednica 1: Delovni načrt z opredelitvijo osnovnih spremenljivk poskusov
Preglednica 2: Primerjava dveh ponovitev s frekvenčnimi diagrami pri pretoku 105 m <sup>3</sup> /h 56
Preglednica 3: Primerjava dveh ponovitev s frekvenčnimi diagrami pri pretoku 130 m <sup>3</sup> /h 57

# **KAZALO SLIK**

Slika 1: Gibanje pelet v fazi potekočinjanja	2
Slika 2: Shematski prikaz razprševanja in gibanja delcev	4
Slika 3: Shema razprševanja od spodaj navzgor	5
Slika 4: Elektrodinamični merilni sistem za merjenje volumske koncentracije pretoka delcev	11
Slika 5a: Merjenje transmitance	12
Slika 5b: Merjenje na osnovi kavitacije	12
Slika 5c: Merjenje na osnovi odboja signala	12
Slika 6: Shematski prikaz zmanjšanja intenzitete laserskega žarka	14
Slika 7: Osnovni delovni prostor, kjer smo izvajali meritve	17
Slika 8: Shematski prikaz merilnega sistema	18
Slika 9: Levo nepravilna nastavitev šobe in desno pravilna nastavitev šobe	20
Slika 10: Merilni sistem pri ustavljenem pretoku zraka za fluidizacijo in vklopljenim laserjem	24
Slika 11: Prikaz obrabljene antistatične obloge, nanešene s tehniko razprševanja	25
Slika 12: Levo razpršilnik za nanašanje AO in desno metoda potapljanja v raztopini Staticide $\degree$	26
Slika 13: Teoretična povprečna transmitanca v odvisnosti od volumskega deleža pelet	26
Slika 14: Odvisnost Beer Lambertovega parametra k od velikosti delcev	27
Slika 15: Signal ustrezne meritve	28
Slika 16: Signal neustrezne meritve	29
Slika 17: Porazdelitve verjetnosti transmitance za ustrezno meritev	30
Slika 18: Porazdelitve verjetnosti transmitance za neustrezno meritev	30
Slika 19: Pojav aglomeracije pri obloženih peletah	31
Slika 20: Porazdelitve verjetnosti transmitance pri obloženih peletah	32
Slika 21: Porazdelitve verjetnosti transmitanc za 1000 g pelet	35
Slika 22: Prikaz vpliva razmika ter velikosti pelet na T	37
Slika 23: Vpliv polnitve komore na vrednost T	38
Slika 24: Vpliv pretoka zraka za fluidizacijo na vrednost transmitance	39
Slika 25: RSD transmitance v odvisnosti od reže in velikosti pelet	40
Slika 26: RSD transmitance v odvisnosti od mase pelet in velikosti reže	40
Slika 27: Povprečene vrednosti RSD transmitanc glede na različne velikosti ali mase	41
Slika 28: Vrednosti RSD transmitance glede na $\alpha$ pri vseh polnitvah za	43
Slika 29: Primerjava ocenjenih $lpha$ z literaturnimi podatki CFD simulacije	46
Slika 30: Prikaz volumskih deležev s CFD metodo	46
Slika 31: Primerjava povprečne RSD obloge s povprečno T pri različnih frakcijah pelet	47

# POVZETEK

V zadnjih desetletjih so bile izdelane številne študije s področja razumevanja in poznavanja posameznih procesnih dejavnikov, ki vplivajo na potek oblaganja. Predpogoj za uspešno voden proces je ustrezna procesna oprema. Razvoj temelji tudi na avtomatizaciji in procesnem vodenju že znanih izvedenk naprav. Sodobne naprave za oblaganje delcev so tako opremljene z merilnimi sklopi, ki omogočajo spremljanje in krmiljenje postopka oblaganja v realnem času – procesno analizne tehnologije. Visoko natančnost tehnike regulacije pa lahko dosežemo le s pomočjo poznavanja in upoštevanja kritičnih parametrov, ki vplivajo na kakovost meritev. Pri procesih oblaganja v vrtinčno slojnih napravah moramo upoštevati lastnosti formulacije, geometrijsko obliko opreme in hidrodinamske principe, da bi dosegli optimalne rezultate oblaganja. V ta namen smo razvili metodo, ki je pripomogla k razumevanju procesa oblaganja delcev (pelet), kar je osnova za nadgradnjo v nadzor procesa v sklopu procesno analizni tehnologij.

Razvili smo merilni sistem, sestavljen iz steklenega razmejitvenega valja, nosilca, izvora laserske svetlobe in detektorja (fotodiode), ki prestreza laserski žarek in ga pretvori v električni signal. Zajeti signal transmitance smo transformirali v verjetnostno porazdelitev transmitance in opravili tudi frekvenčno analizo signala.

Pri meritvah smo spreminjali maso in velikost pelet, pretok zraka za fluidizacijo ter razmik med distribucijsko ploščo in razmejitvenim valjem. S pomočjo verjetnostne porazdelitve transmitanc žarka in teoretičnih transmitanc smo izračunali povprečne vrednosti lokalnega volumskega deleža pelet znotraj razmejitvenega valja. Z vrednotenjem meritev smo določili dobro ponovljivost tako znotraj meritve, kot med posameznimi meritvami. Vrednost transmitanc izmerjenih na sredini razmejitvenega valja je bistveno nižja v primerjavi z izmerjenimi vrednostmi na vrhu razmejitvenega valja. Ugotovili smo, da velikost in količina pelet vplivata na transmitanco po ključu: večje kot so pelete, večja je transmitanca ter večja kot je količina pelet v komori, manjša je transmitanca. Vpliv reže in pretoka za fluidizacijo na lokalni volumski delež pelet sta pokazala primerljive rezultate z literaturnimi vrednostmi: večja kot je odprtina reže, večji je lokalni volumski delež ter večji kot je pretok zraka, manjši je le-ta. Prav tako so rezultati meritev pokazali dobro korelacijo glede na rezultate tehnike meritve globalnega volumskega deleža z zamrznitvijo toka in CFD simulacij kot tudi logično povezavo z rezultati oblaganja pelet.

**Ključne besede:** pelete, Wursterjeva komora, vpliv procesnih spremenljivk, transmitanca laserskega žarka, lokalni volumski delež pelet.

# ABSTRACT

In recent decades, many studies have been undertaken to understand the factors affecting the coating process. A prerequisite for a successfully managed coating process is the appropriate processing equipment, although automation and process management of established versions of coating devices also contribute to a successful process. The current devices for coating particles are fitted with measuring units that allow monitoring and control of the coating procedure in real time, so-called process analytical technology. In order to achieve optimum coating results one has to take into account the properties of the formulation, the geometric form of equipment, and the hydrodynamic principles of the fluid bed coating. To this end, we have developed a method that contributes to the understanding of the process of coating particles (pellets) and serves as the basis for upgrading the monitoring process in the context of process analytical technologies.

We have developed a measurement system consisting of a glass draft tube, mount, laser light source and detector (photodiode), which intercepts the laser beam and converts it into an electrical signal. The captured transmittance signal is transformed into a probability distribution of the transmittance and analysed via frequency analysis. During measurements we changed the mass and size of the pellets, air flow for fluidization, and the gap between the distribution plate and the draft tube.

Using the probability distribution of the transmittance of the beam and the theoretical transmittance, we calculated the average value of the local volume fraction of pellets inside the draft tube. An evaluation of the measurements showed good reproducibility for both measurements, as well as between each of the measurements. The transmittance value measured in the middle of the draft tube is significantly lower than the measured values at the top of the draft tube. We found that the size and quantity of the pellets have an impact on transmittance: the larger the pellets, the higher the transmittance and the greater the total amount of pellets in the chamber, the lower the transmittance. The influence of the gap and fluidizing air flow on the local volume fraction of the pellets showed comparable results with the literature values: the greater the gap opening, the greater the local volume fraction and the greater the air flow rate, the smaller the volume fraction. The results also showed a good correlation with respect to the results of the measurement technique of the global volume fraction based on quick closing valves and Computational Fluid Dynamics simulations.

**Key words:** pellets, classic Wurster chamber, influence of process parameters, transmittance of the laser beam, local volume fraction of pellets.

# SEZNAM OKRAJŠAV

3D	Tridimenzionalno
α	Volumski delež pelet
AO	Antistatična obloga
CF	Centrifugalno (centrifugal)
CW	Wursterjeva komora (Conventional Wurster chamber)
DP	Distribucijska (porazdelitvena) plošča
EC	Elektrostatični naboj (Electric charge)
FBT	Tehnologija z vrtinčenjam (fluidised bed technology)
FO	Farmacevtska oblika
FR	Frakcija pelet
LŽ	Laserski žarek
MCC	Mikrokristalna celuloza
MS	Merilni sistem
NP	Nevtralna peletna jedra (neobložene pelete)
PFR	Povprečna frakcija pelet
Qzr	Volumski pretok zraka
R	Reža; razmik med DP in RV
RH	Relativna vlažnost (Relative humidity)
RSD	Relativni standardni odklon (Relative standard deviation)
RV	Razmejitveni valj
SD	Standardna deviacija (Standard deviation)
Т	Transmitanca (Transmittance)

# 1 UVOD

# 1.1 TEHNOLOGIJA Z VRTINČENJEM

#### 1.1.1 Teoretične osnove

V farmaciji se tehnologija z vrtinčenjem (FBT) uporablja za različne postopke, kot so: oblaganje z raztopinami, suspenzijami, praškastimi delci (pomožnimi snovmi in/ali zdravilnimi učinkovinami), filmsko oblaganje, sušenje, granuliranje z dograjevanjem, direktno izdelavo pelet in mešanje. Tehnologija z vrtinčenjem omogoča, da se trdni delci v mnogih pogledih obnašajo kot tekočina. Ta proces imenujemo fluidizacija (angl. *fluidisation*). Do tega pride zaradi vpihovanja zraka, usmerjenega navzgor, skozi plast trdnih delcev. Oblaganje je proces, pri katerem delci mnogokrat zaokrožijo skozi območje razprševanja. Cilj procesa oblaganja je na delce nanesti kar se da enakomeren sloj obloge ter pri tem zagotoviti ustrezno hitrost sušenja in s tem preprečiti prodiranje topila v začetna jedra. V toku zraka se delci dvignejo in ostanejo večino časa ločeni drug od drugega (1).

Z nadzorovanjem in uravnavanjem volumskega deleža delcev dosežemo optimalne pogoje za oblaganje delcev. Volumski delež delcev mora biti dovolj velik, da se razprševana raztopina za oblaganje (obloga) nanaša na vse delce enakomerno. Če je  $\alpha$  premajhen, se del obloge posuši v zraku, ker ne zadane delca, lahko se prime tudi na razmejitveni valj. Če je  $\alpha$  prevelik, pride do pojava senčenja delcev in s tem se relativna standardna deviacija debeline nanešene obloge poveča. Za nanos obloge na delce v vrtinčni plasti delcev je na voljo več vrst procesne opreme, ki jo bomo v nadaljevanju na kratko predstavili.

Komore, ki temeljijo na tehnologiji z vrtinčenjem, se med seboj razlikujejo po vzorcu gibanja vhodnega zraka in delcev ter smeri razprševanja kapljevine. Njihov razvoj je narekovala uporaba za različne namene, kot so: oblaganje, granuliranje, direktna izdelava pelet in sušenje. Kadar želimo na pelete nanesti funkcionalne obloge, predstavlja Wursterjeva komora prvi izbor. Proces oblaganja v CW komori lahko opišemo kot visoko hitrostni krožni sistem vrtinčnih plasti. Wursterjeva komora je značilna po sredinsko nameščenem razmejitvenem valju in razporeditvi odprtin v distribucijski plošči (slika 1). Plošča je zasnovana tako, da ima večje in gosteje razporejene odprtine tik pod RV. Na obrobnem delu plošče so manjše odprtine z namenom preprečevanja zadrževanja pelet na dnu komore. Pelete nadzorovano prehajajo v območje razprševanja znotraj RV (zaradi

lokalnih razlik v statičnem tlaku), kjer poteka proces oblaganja, hkrati se pelete pospešeno pomikajo vertikalno navzgor. Sledi upočasnjevanje hitrosti pelet v ekspanzijskem delu komore, kjer vlaga odpari (faza sušenja). Nato gravitacijska sila pritegne pelete vertikalno navzdol, pri čemer pride do vračanja pelet ob steni CW proti področju horizontalnega transporta pelet. Pelete se tako ponovno pomikajo proti področju razprševanja zaradi tlačne razlike med okolico RV in notranjostjo razmejitvenega valja (2).



**Slika 1:** Gibanje pelet v fazi potekočinjanja

# **1.1.2 Strojna oprema za oblaganje delcev v vrtinčnoslojnih plasteh**

#### 1.1.2.1 Razprševanje od zgoraj

Pred dobrimi petdesetimi leti so proces oblaganja izvajali v procesnih komorah, kjer so kapljevino razprševali skozi šobo s zgornje strani. Področji razprševanja in sušenja pri tem načinu oblaganja nista jasno razmejeni. Zato lahko prihaja do izrazitejše tvorbe aglomeratov, kar omejuje uporabnost tovrstnega procesa oblaganja (3).

Najpreprostejša komora vrtinčnoslojne opreme za razprševanje od zgoraj ima obliko lijaka (slika 2A). Izvedenka komore je bila razvita iz vrtinčnoslojnega sušilnika. Bistvo omenjene komore sta spodnji ožji in zgornji razširjeni del, pri čemer v spodnjem delu poteka oblaganje, v zgornjem pa sušenje delcev. S pomikanjem delcev navzgor v toku zraka namreč prihaja do redčenja toka in padca tlaka. Na dnu komore je nameščena distribucijska plošča z

ustrezno razporejenimi luknjicami, na kateri je običajno kovinska mrežica, ki preprečuje prehajanje delcev v spodnji del komore, kjer poteka vpihovanje zraka. Opisana komora je primarno namenjena izdelavi granulata. Šoba za razprševanje je nameščena na določeni razdalji glede na distribucijsko ploščo, in sicer približno na zgornji tretjini komore. Curek razpršene tekočine za razprševanje ima ustrezno širino, prilagojeno na dimenzijo komore. Izkazalo se je, da tovrsten način razprševanja povzroča tvorbo aglomeratov, zato taka izvedba ni najbolj primerna za nanos funkcionalnih oblog na delce (4).

#### 1.1.2.2 Tangencialno razprševanje – rotorska komora

Rotorska komora (slika 2B) ima na spodnjem delu vrtečo ploščo in šobo, nameščeno na obodu. Tok zraka se pomika od spodaj ter prehaja skozi odprtino med obodom komore in ploščo, pri čemer se zaradi vrtenja plošče zvrtinči. Pri tem se delci gibljejo po vzorcu vijačnice, kar predstavlja homogeno mešanje, pri oblaganju pa se to odraža z enakomernim nanosom obloge. Prednost rotorske komore je, da lahko postopek izdelave delcev (pelet) združimo tako, da v njej izdelamo jedra, jih obložimo in posušimo (5). Na principu vrteče se plošče temelji tudi CF granulator, v katerem je mogoče oblagati delce tudi s praškovnim nanosom. Ta komora se od običajne razlikuje predvsem v vrteči plošči, ki je ob straneh zakrivljena navzgor (6).

Pomanjkljivost klasične rotorske komore je predvsem v slabi kontroli vlage v območju sušenja, saj v primeru povečanja le-te nad kritično mejo (cca. 30 %) pride do lepljenja delcev na steno komore in delno na filtre, ki so nameščeni na vrhnjem delu komore. Raziskovalci so na tem področju našli rešitev s pomočjo vgradnje senzorja za merjenje vlage, kateri je povezan z avtomatiziranim dozirnim sistemom za razprševanje. Tovrstna regulacija kontroliranega razprševanja v odvisnosti od vlažnosti omogoča ustrezno sušenje nanešene obloge na delce, še preden se le-ti sprimejo ali prilepijo na steno komore (7).

#### 1.1.2.3 Razprševanje od spodaj

Komora, ki ima nameščeno šobo za razprševanje na spodnji strani (angl. *bottom spray*), omogoča razprševanje tekočine vzporedno s tokom zraka. S tem so zaradi krajše medsebojne razdalje dosegli boljši stik med delci in kapljicami materiala za oblaganje. Prednost se odraža tudi v boljših izkoristkih in manjši izgubi materiala. Inovator Dale Wurster je že davnega leta tisoč devetsto triinpetdesetega razvil in patentiral napravo za oblaganje, ki je predstavljala osnovo za kasneje razvito Wursterjevo komoro. Za tiste čase je ta naprava predstavljala tehnološki vrhunec na področju oblaganja, saj je bilo z njo možno oblagati tablete v toku toplega zraka (8).

Kasneje (v letih 1957 in 1963) je razvil komoro, ki je omogočala izdelavo granulata, pri čemer je potekalo mešanje prahov in sušenje končnega produkta po dodatku raztopine za granuliranje v eni fazi (9, 10). Ta komora se danes imenuje Wursterjeva komora, ki je značilna predvsem po razporeditvi luknjic v porazdelitveni plošči in razmejitvenem valju, nameščenem na spodnjem sredinskem delu (11).

Danes se Wursterjeva komora prvenstveno uporablja za oblaganje delcev-jeder, kot so pelete, mini tablete, zrnca, kristali, mehke in trdne želatinske kapsule. Proces oblaganja v vrtinčnoslojnih napravah s šobo nameščeno na spodnji strani odlikujeta enostavnost in možnost delnega nadzorovanja toka delcev. Tehnike oblaganja delimo glede na disperzni sistem medija za oblaganje na: oblaganje z raztopinami, suspenzijami, talinami in praškastimi delci.



**Slika 2:** Shematski prikaz razprševanja in gibanja delcev za "Top spray" komoro (A), rotorsko komoro (B) in Wursterjevo komoro (C) (povzeto po 12)

Wursterjevo komoro se v praksi uporablja predvsem za oblaganje manjših delcev (pelete, granule, mini tablete), za oblaganje večjih delcev (tablet) pa redkeje, saj zaradi velike gibalne količine le-teh pogosto prihaja do krušenja nanešene obloge in tudi samih delcev (tablet). Med delovanjem Wursterjeve naprave je nasutje delcev zaradi majhnih luknjic v obodu distribucijske plošče v večji meri mirovalo. Z namenom povečanja mešanja delcev (zaradi

homogenizacije) so povečali velikost luknjic na tem območju, kar se je predvsem pri večjih delcih izkazalo za neučinkovito (13).

Omenjeno težavo lokalnega zastoja delcev so rešili z vpihovanjem zraka skozi režo, nameščeno tik nad porazdelitveno ploščo, in s tem zagotovili enakomerno oblaganje delcev različnih velikosti. Pri tem so naleteli na dodatno težavo, in sicer je imel stisnjeni zrak, doveden skozi režo, drugačne lastnosti kot zrak za fluidizacijo (razlika v temperaturi in vlažnosti zraka) (14). Omenjeno pomanjkljivost je druga skupina raziskovalcev odpravila s pomočjo obvoda zraka skozi režo, kateri je bil uporabljen tudi za potekočinjanje (fluidizacijo) (15).



Slika 3: Shema razprševanja od spodaj navzgor (prirejeno po 16)

Pri oblaganju se zaradi lokalnega podtlaka pogosto srečamo tudi s problemom prehajanja delcev v neposredno bližino konice šobe, v območje še ne dokončno izoblikovanega aerosola kapljic tekočine, kar zmanjšuje izkoristek in učinkovitost oblaganja delcev zaradi lokalne aglomeracije. V izogib pojavu aglomeracije pa so okrog šobe namestili valj, ki omogoča kontrolirano prehajanje delcev v območje razprševanja (17, 18).

Pri nadaljnjem razvoju Wursterjeve komore je Hüttlin nadomestil distribucijsko ploščo s sistemom lopatic za vrtinčenje zraka, in sicer radialno glede na steno komore, kar predstavlja statično mešalo. Zaradi vrtinčenja zraka se potujoči delci gibljejo vijačno po osi navzgor (angl. *Swirl flow*), to omogoča učinkovito sušenje pri oblaganju in s tem preprečuje možnost aglomeracije. V sklopu te inovacije so šobe za razprševanje nameščene med lopaticami, kar še dandanes predstavlja svojevrstno izvedbo. To izvedenko naprave je Hüttlin poimenoval "Turbojet" (19). Za razliko od Hüttlinove inovacije je Walter v sklopu distribucijske plošče

vgradil generator vrtinčastega toka, ki obsega le območje med šobo in razmejitvenim valjem (20, 21).

Novejša Hüttlinova izvedenka komore v tem tisočletju temelji na prekrivajočih obročih, med katerimi so reže za dovajanje zraka za potekočinjanje (22). Z namenom preprečiti zahajanje delcev v območje razprševanja so namestili režo tudi v bližini šobe. Z omenjeno inovacijo je povečal dodano vrednost svoji aparaturi za oblaganje (23).

# **1.2 VPLIV PROCESNIH PARAMETROV NA ENAKOMERNOST OBLOGE**

Pri procesu oblaganja si želimo, da je obloga enakomerno razporejena po celotni površini posameznega delca ter da med delci ni odstopanja v debelini obloge. V zadnjem času številni raziskovalci poskušajo razložiti vpliv posameznih dejavnikov na enakomernost obloge. Zaradi številnih dejavnikov, kot so lastnosti vstopnega materiala in procesnih spremenljivk, njihovega vpliva na enakomernost obloge ne moremo enostavno opredeliti (24). Najpomembnejša faktorja, ki vplivata na enakomernost obloge, sta distribucija časa med dvema zaporednima prehodoma skozi razmejitveni valj in količina obloge, ki jo delec prejme pri enkratnem prehodu skozi območje razprševanja. Za merjenje obhodnega časa lahko uporabljamo radioaktivno (25) ali magnetno označene delce (26). Za določanje količine nanešene obloge ob enem prehodu območja razprševanja ali pa celokupno na koncu razprševanja procesa oblaganja se najpogosteje uporablja spektrofotometrična metoda določanja koncentracije barvila, homogeno porazdeljenega znotraj celotne obloge (27).

### 1.3 VPLIV PORAZDELITVE VELIKOSTI IN VOLUMSKEGA DELEŽA DELCEV NA ENAKOMERNOST NANOSA OBLOGE

Poskusi oblaganja različno velikih delcev so pokazali, da večji delci prejmejo večjo maso obloge kot manjši, in posledično je debelina obloge pri manjših tanjša kot pri večjih. Vpliv na enakomernost obloge različno velikih delcev gre iskati predvsem v povečanem senčenju pelet manjših velikosti, saj imajo večjo specifično površino, pri čemer igra pomembno vlogo vrednost volumskega deleža (27). Večji kot je volumski delež delcev na področju razprševanja, večje je senčenje. Tisti delci, ki so bližje šobi, prejmejo več obloge kot tisti, ki so bolj oddaljeni (28). V literaturnih podatkih zasledimo, da je odstopanje v nanosu obloge, oziraje se na omenjeno senčenje v odvisnosti od volumskega deleža in oddaljenostjo od šobe,

med 8 in 20 % (27). Ugotovljeno je bilo, da se z uporabo generatorja vrtinčenja zmanjša volumska gostota delcev in s tem poveča enakomernost vrednosti volumskega deleža vzdolž razmejitvenega valja. Zaradi specifičnega vijačnega gibanja delcev znotraj razmejitvenega valja se s tako tehnologijo oblaganja doseže enakomernejšo oblogo delcev različnih velikosti (27).

# 1.4 KLJUČNE SPREMENLJIVKE PROCESA OBLAGANJA

Proces oblaganja v vrtinčnoslojni komori sestoji iz treh glavnih korakov, ki potekajo zaporedno (faza temperiranja, razprševanja in faza sušenja). Opisuje ga najmanj 20 spremenljivk. Pri tvorbi obloge je pomembna tudi hitrost sušenja. V preglednici I so predstavljene nekatere spremenljivke, katerih vloga je ključna tekom različnih faz oblaganja.

~			
Faza procesa Vrsta spremenljivke	Potekočinjanje	Atomizacija	Sušenje
Procesne spremenljivke	- pretok zraka - velikost serije	Velikost kapljic: - pretok kapljevine - tlak razprševanja Razdalja med šobo in delci. Hitrost kapljic: - pretok zraka za razprševanje	<ul> <li>temperatura in vlažnost zraka za potekočinjanje</li> <li>pretok zraka za potekočinjanje</li> </ul>
Formulacijske spremenljivke	Lastnosti pelet: - oblika - velikost - porazdelitev velikosti - gostota - površinske lastnosti	Lastnosti formulacije za oblaganje: - sestava - gostota - viskoznost - koncentracija polimera - površinska napetost	
Konstrukcijske spremenljivke	Vrsta naprave. Velikost naprave. Značilno za Wursterjevo komoro: - dimenzije RV - vrsta DP - višina reže med DP in RV	Vrsta šobe. Namestitev šobe v komori: - zgoraj - spodaj centralno - spodaj poševno v smeri prehoda zraka - tangencialno	

Preglednica I: Glavne spremenljivke pri procesu oblaganja s tehnologijo z vrtinčenjem (29, 30)

Hitrost kroženja delcev določa pretok zraka. Na velikost kapljic razpršene kapljevine vplivata tlak razprševanja in hitrost dovajanja disperzije za oblaganje. Pri višjih tlakih razprševanja dobimo manjše kapljice, ki se lahko posušijo, še preden zadenejo delce, in tako zmanjšajo izkoristek procesa. Če so kapljice prevelike, je možen nastanek tekočinskih mostičkov in tvorba aglomeratov. Parametre razprševanja določimo za vsak sistem posebej. Pomembno vlogo pri oblaganju imajo jedra, na katere nanašamo oblogo. Odporna morajo biti na mehanske obremenitve in imeti ozko porazdelitev velikosti. Pomembna je tudi krušljivost delcev in obloge, saj se zaradi tega lahko tvorijo prahovi, ki se lahko vgradijo nazaj v oblogo, zaradi prahov se mašijo tudi filtri (2).

## 1.5 METODE MERJENJA VOLUMSKEGA DELEŽA TRDNIH DELCEV

Lokalna koncentracija trdnih delcev v plinasti fazi igra pomembno vlogo pri širini porazdelitve debeline obloge (28). Pri izboru ali razvoju merilnega sistema za vrednotenje volumskega deleža pelet je priporočljivo upoštevati lastnosti, ki omogočajo merjenje čim večjega obsega koncentracije delcev v realnem času, pri čemer izbrani merilni sistem čim manj vpliva na tok delcev znotraj procesne komore.

Najprimernejša merilna tehnika je tista, ki omogoča uporabo pri povišanih temperaturah, v industrijskih napravah, in-line uporabo, široko območje merjenja, zanesljivost in občutljivost (31).

Tehnike merjenja temeljijo na različnih principih in jih v splošnem delimo na posredne in neposredne. Kriterij za delitev na neposredne tehnike merjenja je poseg v sistem v smislu zajemanja delcev, nastavljanje pasti, pregrevanje, zaletavanje, označevanje delcev in podobno (invazivne metode). V splošnem so neposredne metode enostavne, cenovno ugodne, vendar lahko manj točne in ponovljive kot posredne metode.

Med neposredne metode merjenja delcev prištevamo (32, 33, 34, 35):

- Izokinetično zajemanje delcev
- Metoda globalnega zajemanja delcev ("hold-up of solids")
- Termične metode
- Tehnike, ki temeljijo na trkih delcev

Posredne metode merjenja delcev so bolj natančne, hitrejše, ne posegajo v sistem in ne motijo ali celo prekinjajo tehnološkega procesa.

Med posredne metode merjenja delcev prištevamo (36-42):

- Tehnike, ki temeljijo na merjenju kapacitete
- Resonančne metode
- Optične metode
- Električne metode
- Vizualizacija delcev
- Tehnike, ki temeljijo na označevanju delcev

### 1.5.1 Izokinetično zajemanje delcev

Izraz "izokinetično" izhaja iz korena besede, ki pomeni "enako" in "gibanje". Pri tej metodi uporabljamo sondo - votlo cevko, ki je vstavljena v napravo protitočno, in vanjo vstopajo delci s hitrostjo, ki je enaka na točki merjenja (na začetku cevi pri zajemu delcev) ter v sami cevki. Sondo uravnotežimo tako, da uravnamo tlak znotraj cevke tako, da je enak tlaku v napravi. Z merjenjem mase zajetih delcev v določenem času in poznavanjem površine cevke za zajemanje dobimo podatke o masnem toku delcev. S hkratnim merjenjem koncentracije delcev lahko pridobimo informacijo o njihovi hitrosti. Metoda je primerna za merjenje tudi visokih koncentracij delcev (do 2 kg trdne faze/kg plinaste faze) in ne potrebuje umerjanja (32).

### 1.5.2 Metoda globalnega zajemanja delcev ("hold-up of solids")

Metoda temelji na vzorčenju dvofaznega sistema (delec-zrak) po principu "zamrznitve" toka gibanja v določeni časovni točki. Po zaustavitvi toka pride do ločbe faz, saj se delci posedejo na dno sistema. Te delce fizično (z ustrezno tehnologijo) izvzamemo iz sistema ter določimo maso. Pri tem je pomembno izbrati ali zasnovati sistem s hitrim odzivnim časom "zamrznitve" (npr. uporaba elektro-magnetnih ventilov), saj s tem zmanjšamo pojavnost napak (33).

#### 1.5.3 Termične metode

Ta tehnika temelji na dvigu temperature zraka kot odziv na konstantno dovajanje toplote, (enačba *I*), kjer je Ms masni pretok trdne snovi, H stopnja entalpije trdnih delcev pri vstopu, Cp specifična toplota zraka ali tekočine pri stalnem tlaku in  $\Delta T$  sprememba temperature fluida, izmerjene v smeri proti toku in v smeri toka od ogrevanega dela. Princip temelji na prispevku trdnih delcev k spremembi temperature. Z uporabo termistorjev so pri masnem pretoku 0,1-5kg/s določili le ±1,5% napako (34).

$$M_s = \frac{H}{C_p \Delta T} \tag{11}$$

#### 1.5.4 Tehnike, ki temeljijo na trkih delcev

Tehnika temelji na kinetični sili delcev, ki se pretvori v delo. Na osnovi tega lahko merimo silo na več različnih načinov. Začetki razvoja so omogočali merjenje trkov le v eni smeri. To je bilo zasnovano v obliki ozke cevke, ki je sprejela en delec, in še to le v primeru, ko je le-ta priletel naravnost v cevko. Če je priletel pod kotom, ni mogel vstopiti v cevko. To pomanjkljivost so odpravili z razvojem sonde, ki omogoča zaznavanje komponent sile v vseh smereh. Po tem principu se meri hitrost delcev s senzorjem v obliki krogle, ki je vpet v poseben ležaj, gibljiv v vse smeri ter preko vodila povezan z ozemljitveno elektrodo. Ob trku pride do premika senzorja in elektrode, kar povzroči spremembo kapacitete v merilnih elektrodah, ki so nameščene okrog ozemljitvene elektrode. Pridobljene signale lahko preko ustreznega programa obdelamo kot komponente sile trkov na znano površino sonde in ob podatku povprečne mase delcev (idealno je, če imajo delci enako maso) pridobimo podatke v obliki volumskega deleža delcev (35).

#### 1.5.5 Tehnike, ki temeljijo na merjenju kapacitete

Têrmin merjenje kapacitete se na področju merjenja volumskega deleža delcev uporablja za merjenje relativne dielektrične konstante suspenzije dvofaznega toka trdno - plin. Meritev se izvaja v območju med dvema elektrodama, ki sta pod napetostjo. V tem območju pretoka predstavlja tok delcev "kondenzator" z merljivo kapaciteto. Z zaporedno namestitvijo dveh kapacitivnih senzorjev na točno določeni razdalji in pristopom navzkrižne korelacije pa določamo povprečno hitrost delcev. Ta metoda merjenja je lahko neinvazivna in nam

omogoča določitev tokovnih režimov in hitrosti delcev znotraj industrijsko uporabnih vrtinčnoslojnih naprav (36).

Delci, ki jih lahko merimo, imajo lahko dielektrične ali elektrostatične lastnosti. S tovrstno tehniko merimo volumsko koncentracijo premikajočih se trdnih delcev na osnovi izmerjene kapacitivnosti zaradi posledično povečane dielektričnosti. Spremembo kapacitivnosti lahko pretvorimo v primeren električni signal (37).



**Slika 4:** Elektrodinamični merilni sistem za merjenje volumske koncentracije pretoka delcev (prirejeno po 37)

#### 1.5.6 Resonančne metode

Resonančne metode sestavljajo magnetne, mikrovalovne in akustične metode.

Med najbolj priljubljenimi resonančnimi metodami je akustična resonančna spektroskopija (ARS). To je metoda spektroskopije, ki deluje na akustičnem področju, predvsem na osnovi zvočnega in ultrazvočnega izvora. ARS je ena najhitrejših nedestruktivnih metod za merjenje volumske frakcije koloidov v disperznem mediju, kot tudi za meritve koncentracije in porazdelitev velikosti delcev pri pretoku sistema (trdno/plinasto). Metoda temelji na principu uporabe sinusnega signala in merjenjem slabljenja signala. Večja kot je koncentracija trdnih delcev, večje je slabljenje. Slabljenje je odvisno od sprememb v vsebini zmesi in velikosti delcev. Trdni delci absorbirajo ultrazvočno energijo in povečajo dušenje med izvorom zvočnih valov in detektorjem. Iz primerjave teoretičnega slabljenja in zajetimi meritvami ugotovimo porazdelitev velikosti delcev in koncentracijo. ARS se uporablja v farmaciji tudi za analizo tablet, praškov in tekočin. Kot zanimivost naj omenimo, da je ARS

pri raziskovalnem delu (sinteza novih zdravilnih učinkovin) uporabna za spremljanje napredovanja kemijskih reakcij, kjer prihaja do obarjanja produkta (38, 39).

Yong Yan opisuje pristop merjenja pretoka trdnih delcev z uporabo izvora ultrazvoka, ki jih je razčlenil na: a) Merjenje trdnih delcev na principu slabljenja signala, b) Merjenje na osnovi pojava kavitacije in c) Merjenje na osnovi odboja signala.



Slika 5a: Merjenje transmitance

**Slika 5b:** Merjenje na osnovi kavitacije (princip slabljenja signala)



Slika 5c: Merjenje na osnovi odboja signala

Trdni delci absorbirajo zvočno energijo in povečajo dušenje med virom ultrazvoka in detektorjem (slika 5a). Za fiksno dolžino poti, ki jo opravijo mikrovalovi, ovrednotimo vrednost signala, ki je manjša, in s tem določimo koncentracijo delcev v toku. V kolikor je v sistemu prisotna vlaga, pride do kavitacije vlage in dobimo lažen signal. Prav tako meritev ovirajo delci, ki se lahko usedajo na optična okna, kar ni zaželeno.

Ne-inertna kavitacija je postopek (slika 5b), pri katerem nastanejo mehurčki (lokalna uparitev vode), s pomočjo katerih usmerjamo trdne delce, da nihajo v tekočini z visoko intenzivnostjo in nizko energijo v predelu akustičnega polja (merilnem območju).

"Granuflow" tehnika (slika 5c) omogoča merjenje koncentracije delcev na osnovi Dopplerjevega učinka. Signal, ki ga oddaja "Gunn" dioda v dinamični medij preko odboja, odraža premikanje delcev. Točnost odstopa za 5-10 %, saj na meritve vpliva velikost, hitrost in kemična sestava delcev (40).

Nemško podjetje Glatt GmbH razpolaga s patentom, s katerim so zaščitili sistem za merjenje masnega toka, hitrosti in s tem volumskega deleža trdnih delcev pri granulaciji ali oblaganju v vrtinčnoslojni napravi (Wursterjevi komori) na osnovi mikrovalov. Sistem je sicer zasnovan na treh razmejitvenih valjih in treh razprševalnih šobah. Na vsakem razmejitvenem valju je ločena merilna enota, pritrjena le z ene strani valja. Prednost izuma je v tem, da sta izvor mikrovalov in senzor blizu skupaj, s tem je zagotovljena enostavnost izvedbe in nizka proizvodna cena merilnega sistema (41).

#### 1.5.7 Optične metode

Optične metode so uporabne predvsem pri karakterizaciji lokalnih hidrodinamskih razmer (fluktuacije v lokalnem deležu trdne faze) v napravah, ki temeljijo na tehnologiji z vrtinčenjem. Med enostavne optične metode uvrščamo sistem dveh optičnih vlaken. Preko prvega dovedemo monokromatsko lasersko svetlobo, s katero osvetljujemo delce, z drugim pa zajamemo odbito svetlobo in jo dovedemo v detektorski sistem. Prednost optičnih metod je njihova enostavna uporaba, nizki stroški opreme in visoka točnost. Uporabo metode omejuje visoka koncentracija delcev (42).

### 1.6 TEORETIČNE OSNOVE METODE MERJENJA LOKALNEGA VOLUMSKEGA DELEŽA PELET

Metoda temelji na Beer Lambert-ovem zakonu, ki lahko obravnava tudi sipanje monokromatske svetlobe in zmanjšanje transmitance ob prehodu skozi medij, ki vsebuje trdne delce.

Metodo opisuje naslednja enačba 2 (43):

$$I = I_0 e^{-k\frac{\pi D^2 nL}{4}}$$
 [2]

$$I = I_0 e^{-k\frac{\alpha L}{D}}$$
<sup>[3]</sup>

Pri čemer je:







Transmitanca ali prepustnost je frakcija vpadne svetlobe (elektromagnetnega sevanja) pri določeni valovni dolžini, ki prehaja skozi vzorec, pri čemer je jakost vpadne svetlobe večja od jakosti prepuščene svetlobe (enačbi *4* in *5*).

$$T = \frac{I}{I_0}$$
[4]

$$T = e^{-k\frac{\alpha L}{D}}$$
 [5]

# 2 DELOVNA HIPOTEZA

V magistrski nalogi bomo z merilnim sistemom izvora laserske svetlobe in fotodiode merili transmitanco na različnih višinah razmejitvenega valja, in sicer med procesom gibanja pelet različnih velikosti pri različnih pretokih zraka za fludizacijo, nastavitvah višine valja in celokupnih masah pelet. Rezultate verjetnostne porazdelitve transmitance bomo primerjali s teoretičnimi izračuni za izbrane diskretne volumske deleže pelet, ob upoštevaju različnih velikosti pelet ter dimenzij merilnega sistema. Primerjava porazdelitev eksperimetalnih in teoretičnih T nam bo omogočala identifikacijo povprečne vrednosti lokalnega volumskega deleža pelet znotraj Wursterjevega valja. Pomen načrtovanih meritev je razumevanje procesa oblaganja ter validacija rezultatov numeričnih simulacij toka pelet v Wursterjevi komori.

Eksperimentalni načrt: vpliv mase pelet (500 g, 1000 g in 1500 g), vpliv velikosti pelet (600-700  $\mu$ m, 900-1000  $\mu$ m, 1120-1250  $\mu$ m), vpliv pretoka zraka za fluidizacijo (105 m<sup>3</sup>/h, 130 m<sup>3</sup>/h, 156 m<sup>3</sup>/h), vpliv reže (10 mm, 20 mm in 25 mm). Tlak zraka v dvokanalni šobi za razprševanje deionizirane vode bo konstanten (2 bara), medtem ko bomo pri določanju ponovljivosti spreminjali tudi pretok deionizirane vode za razprševanje.

V fazi testiranja merilnega sistema bomo s pomočjo zajemanja in vrednotenja podatkov ugotavljali vpliv morebitnih subjektivnih napak na ponovljivost meritev. S tem namenom bomo ugotavljali: ponovljivost pri kalibraciji šobe, ponovljivost pri sestavljanju in razstavljanju komore ter vpliv zunanje svetlobe (v primeru, da bi pozabili zatemniti opazovalno steklo komore). V primeru, da bo vpliv naštetih dejavnikov signifikanten, bomo imeli informacijo o tem, da lahko morebitna odstopanja pri meritvah kažejo na subjektivno napako in jo bomo tako lažje identificirali ter pravočasno odpravili. Nepoznavanje morebitnih vplivov prej naštetih dejavnikov bi lahko privedlo do sistematične napake.

Po fazi testiranja sistema bomo pričeli z meritvami po delovnem načrtu (preglednica 1, priloge). Po opravljenih eksperimentih bomo določili ponovljivost našega merilnega sistema pri konstantnih pogojih in nenazadnje pri spreminjanju pogojev. Na podlagi naših rezultatov in rezultatov drugih raziskovalcev bomo poskušali ugotoviti, ali je naš merilni sistem primerljiv z drugimi metodami določanja volumskega deleža pelet. Ugotavljali bomo tudi, kako izbrani parametri (in njihove kombinacije) vplivajo na  $\alpha$  pelet.

# **3 EKSPERIMENTALNI DEL**

## **3.1 MATERIALI**

### 3.1.1 Cellets®

Cellets<sup>®</sup> (Harke Pharma, Nemčija) so nevtralna peletna jedra, izdelana iz mikrokristalne celuloze. Gre za bele trdne delce okrogle ali skoraj okrogle oblike. Za pripravo ozkih velikostnih frakcij pelet s sejanjem smo uporabili:

- Cellets<sup>®</sup> 500, nazivna velikost jeder 500-710 μm;
- Cellets<sup>®</sup> 700, nazivna velikost jeder 710-1000 μm;
- Cellets<sup>®</sup> 1000, nazivna velikost jeder 1000-1400 μm.

Uporabili smo nevtralne pelete, obložene s hidroksipropilmetil celulozo z dodatkom barvila (obloga debeline 10-14 µm), kot tudi neobložene.

## 3.1.2 Ostali materiali

Ostali materiali, ki smo jih uporabljali pri eksperimentalnem delu, so še:

- raztopina za nanašanje antistatične obloge (Staticide<sup>®</sup>, 840W 49TH PLACE CHICAGO, U.S.A.);
- aluminijasta folija;
- gel za lase (taft gel ultra strong, Schwarzkopf) za pritrditev Al folije na stekleni RV.

### 3.1.2 Naprava

Za merjenje lokalnega volumskega deleža pelet smo uporabili vrtinčnoslojno opremo GPCG1 z Wursterjevim nastavkom proizvajalca Glatt Gmbh iz Nemčije, sklopljeno s kompresorjem SX 3-90 (Kaeser Kompressoren, Nemčija), peristaltično črpalko 1B 1003-R/65 (Petro Gas Ausrustungen, Nemčija), krilnim anemometrom serije ALMEMO<sup>®</sup> 2390-3 (Ahlborn, Nemčija) in razvlaževalcem zraka proizvajalca IZR iz Slovenije. V komoro smo namestili vrečasti filter, vrste PACF. Za razprševanje deionizirane vode smo uporabili dvokanalno šobo z notranjim premerom 0,8 mm in 1,2 mm. Uporabili smo porazdelitveno ploščo tipa B in C ter kovinsko mrežico, ki smo jo privili nanjo. Vloga kovinske mrežice je zaščita oziroma omejitev pelet, da ne bi prešle skozi luknjice v prostor pod porazdelitveno ploščo. Na sliki 7 so predstavljeni vsi osnovni elementi, ki smo jih uporabljali pri meritvah.



Slika 7: Osnovni delovni prostor, kjer smo izvajali meritve

### 3.1.3 Merilni sistem

Merilni sistem smo zasnovali na osnovi izvora monokromatske svetlobe valovne dolžine 650 nm. V ta namen smo dobavili laser proizvajalca ROITHNER LASER, Avstrija RLE650-8-3-20, z jakostjo 8 mW in premerom žarka izvora 20 mm ter optični senzor (fotodiodo SLSD-71N500) proizvajalca SILONEX, Kanada, površine 100 mm<sup>2</sup> (10 mm x 10 mm).

Na plastični nosilec smo vpeli laser in zrcalo pod kotom 45°. Na nasprotni strani smo vpeli fotodiodo (slika 8). Merilni sistem smo pripeli na stekleni razmejitveni valj in vse skupaj vpeli v Wursterjevo komoro. Električna vodnika laserja in fotodiode smo speljali iz komore preko za to izdelanega votlega nastavka, vstavljenega v odprtino, ki sicer služi za zajemanje vzorca med merjenjem. Vodnika smo ustrezno povezali z ojačevalcem signala, le-tega pa preko A/D pretvornika (NI USB 6221 M, National instruments, ZDA) z računalnikom. Na računalniku smo s programom Lab VIEW<sup>TM</sup> Signal Express 2011 (National Instruments, ZDA) zajemali podatke signala v voltih (300 sekund meritve in 40 sekund ozadja), in sicer s frekvenco vzorčenja 50 kHz. S programom Wolfram Mathematica 9.0 (Wolfram Research, ZDA) smo obdelali zbrane podatke signala ter z ustreznimi računskimi operacijami izračunali povprečno vrednost transmitance za vsako meritev posebej po enačbi 4 ter še njeno standardno deviacijo.



**Slika 8:** Shematski prikaz merilnega sistema (Rok Šibanc, Katedra za farmacevtsko tehnologijo, Fakulteta za farmacijo, Slovenija)

### **3.2 METODE**

Pri eksperimentalnem delu smo uporabljali metode, zbrane v spodnji razpredelnici.

Metoda	Naprava	Namen
Sejanje pelet	Avtomatski stresalnik Retsch	Priprava frakcij pelet
	AS 200 basic, Nemčija	
Tehtanje pelet	Tehtnica Sartorius CP32025	Tehtanje pelet za posamezno
		meritev
Merjenje vsebnosti vlage v	Analizator vlage Büchi	Določanje vlage pelet pred,
peletah	Moisture Analyzer B-302	med in po procesu
	(Büchi, Švica)	
Naprševanje staticida na	Laboratorijski mikro	Nanos antistatične obloge na
stekleni RV	razprševalnik na stisnjen zrak	stekleni RV za odpravo EC
Sušenje napršene obloge	Laboratorijski sušilnik Kambič	Posušiti in utrditi antistatično
		oblogo
Merjenje pretoka zraka za	Anemometer (FV A 915-MA1,	Določitev pretoka zraka skozi
potekočinjanje	ALMEMO, Alborn, Nemčija	komoro za vsako meritev
Razvlaževanje zraka	Kondenzacijski razvlaževalec	Zagotavljanje ustrezno
	(Inštitut Zoran Rant,	razvlaženega zraka (31% rel.
	Slovenija)	vl.), za vse meritve enako
Zajem signala	Enota za zajem podatkov (16	Digitalizacija analognega
	bit 250 kHz NI DAQ data	napetostnega signala in
	logger NI USB 6221, National	beleženje merilnih točk
	Instruments, Texas, ZDA	tekom posamezne meritve
Obdelava signala	Programska oprema (National	Določitev bazna linije, njene
	Instruments Lab VIEW <sup>™</sup> 2011	SD, določitev povprečne
	Signal Express software)	transmitance in SD signala

Preglednica II: Pregled uporabljenih metod

### 3.2.1 Priprava frakcij pelet z ožjo distribucijo velikosti

Velikost pelet vpliva na vrednost transmitance. Ožja kot je porazdelitev velikosti delcev, bolj zanesljivo lahko določimo vpliv velikosti delcev na volumski delež delcev med kroženjem v razmejitvenem valju. Glede na to dejstvo, smo se odločili, da bomo uporabili jedra z ozko porazdelitvijo. V ta namen smo pelete presejali in tako pripravili posamezne velikostne frakcije. Uporabili smo Retschev laboratorijski stresalnik AS200 basic in sledeča laboratorijska sita premera 200 mm (Retsch, Nemčija):

- Cellets<sup>®</sup> 500: dno, 500 μm, 600 μm, 710 μm, 800 μm;

- Cellets<sup>®</sup> 700: dno, 710 μm, 800 μm, 900 μm, 1000 μm;

- Cellets<sup>®</sup> 1000: dno, 1000 μm, 1120 μm, 1250 μm, 1400 μm.

Naenkrat smo presejali približno 500 g pelet. Stresali smo 10 minut pri amplitudi optične skale 2. Izbrane frakcije (600-710 µm, 900-1000 µm in 1120-1250 µm) smo nato po enakem postopku presejali še enkrat.

#### 3.2.2 Testiranje merilnega sistema

Merilni sistem smo najprej testirali ob priključitvi na omrežno napetost, in sicer brez delovanja Wursterjeve komore. Najprej smo si vizuelno ogledali pozicijo in pot laserskega žarka. Preverili smo, ali laserski žarek s svojo površino prekrije celotno površino detektorja. Merilni sistem je ustrezno pozicioniran, ko je površina detektorja povsem prekrita s snopom svetlobe. Merilni sistem je bil tako pripravljen na zajemanje podatkov. Priklopili smo računalnik in s programsko opremo Lab VIEW<sup>TM</sup> Signal Express pričeli z merjenjem šuma bazne linije. Ugotovili smo, da ni bilo prisotnih večjih nihanj. Zanimalo nas je, kako se obnaša merilni sistem, če neprekinjeno deluje dolgo časa pri izklopljeni Wursterjevi komori. Na računalniku smo vklopili funkcijo kontinuiranega snemanja in zajemali podatke vse do naslednjega dne (12 ur). Ugotovili smo, da ni bilo prisotnih nihanj ter na osnovi tega zaključili, da z našim merilnim sistemom lahko opravljamo meritve tudi ves dan, ne da bi prišlo do vplivanja samega merilnega sistema na vrednost meritev.

Sledil je naslednji korak testiranja merilnega sistema z vklapljanjem in izklapljanjem Wursterjeve komore, brez pretoka zraka. Zaključili smo, da vklapljanje in izklapljanje komore ne vpliva na merjeni signal. Zanimalo nas je, kako bo s signalom, če vklopimo pretok zraka brez pelet in nastavimo gretje na 45 °C. Meritve so pokazale prisotnost manjših nihanj

in majhno vrednost standardnega odklona, kar kaže na veliko občutljivost merilnega sistema. Meritve s pretokom zraka (156 m<sup>3</sup>/h) smo šestkrat ponovili pri konstantnem pretoku in ugotovili, da so ponovljive. Pri naslednjem setu poskusov smo zmanjšali pretok zraka (130 m<sup>3</sup>/h) ter prav tako ugotovili dobro ponovljivost. Testirali smo tudi vpliv spreminjanja pretoka vode in opazili manjše spremembe pri vrednostih transmitanc.

#### 3.2.2.1 Pozicioniranje šobe

Pri sestavljanju Wursterjeve komore kot celote je tehnično najzahtevnejše pozicioniranje šobe. Notranji del navoja šobe ovijemo s teflonskim trakom in močno privijemo. Glavo šobe (obodno matico) pa privijemo empirično, in sicer tako, da med privijanjem razpršujemo vodo in opazujemo snop razprševane vode. Snop mora biti neprekinjen in naravnan navpično. Preveriti moramo v obeh smereh x in y, in sicer tako, da spodnji del Wursterjeve komore zavrtimo za kot 90°. Spodnji sliki (slika 9) prikazujeta uravnavanje šobe. Slika na levi strani prikazuje snop, ki je nagnjen v levo smer glede na os šobe. Slika na desni strani prikazuje uravnano šobo, pri čemer je snop razpršene deionizirane vode enakomerno razporejen v vseh smereh.





Slika 9: Levo nepravilna nastavitev šobe in desno pravilna nastavitev šobe

Pozicioniranje šobe je pomembno opravilo pri sestavljanju komore, saj vpliva predvsem na proces oblaganja pelet. Meritev z zajemanjem podatkov pri nepravilno nastavljeni šobi nismo delali, ker bi to dodatno povečalo obseg dela.

#### 3.2.2.2 Sestavljanje in razstavljanje komore

Sestavljanje delov komore je eden najpomembnejših in hkrati občutljivih postopkov, kjer ugotavljamo vpliv človeškega faktorja na ponovljivost meritev. Navadno sestavimo aparaturo za en set meritev. V kolikor je ne sestavimo ponovljivo, rezultati meritev lahko signifikantno odstopajo. Pri sestavljanju je pomembno, da dovolj močno privijemo vse dele aparature ter da so distribucijska plošča, razmejitveni valj in šoba ustrezno centrirani.

# **3.2.3** Določanje vsebnosti vlage in oprijem pelet na različne razmejitvene valje

Vsebnost vlage v peletah smo določali z uporabo analizatorja Büchi Moisture Analyzer B-302 (Büchi, Švica). Na pladenj naprave smo natehtali približno 5 g vzorca ter ga enakomerno razprostrli po celotni površini. Uporabili smo program 15 minutnega sušenja pri temperaturi 85 °C.

Neobloženim peletam smo merili vlažnost pri različnih pogojih (preglednica III). Oznaka A velja za meritve s steklenim RV, oznake B označujejo meritve s kovinskim RV, oznake C veljajo za meritve z RV iz pleksi stekla. Čas kroženja pelet in razprševanja prečiščene vode je bil pri vsaki določitvi RH 30 minut.

Oznaka	Vlažnost pelet	Vlažnost pelet	Pretok	T [°C]	T [°C]
kombinacije	pred meritvijo	po meritvi	vode	vstopnega	zraka v CW
(delovni načrt)	[%]	[%]	[g/min]	zraka	(T <sub>pelet</sub> )
A1 (P5)	3,32	6,03	20	30	17
B1 (P5)	2,06	1,82	9	36	27
B2 (O5)	2,06	1,64	7	27	27
B3 (N5)	2,06	1,83	5	35	27
C1 (P5)	1,53	1,79	9	36	27
C2 (O5)	1,53	1,60	7	35	27
C3 (O5)	1,53	1,60	11	35	23

Preglednica III: Meritve vlažnosti neobloženih pelet

Preglednica IV: Pogoji meritev

Oznaka kombinacije (delovni načrt)	Velikost pelet	Razmik med DP in RV	Pretok zraka za fluidizacijo	Masa pelet
N5	900-1000 μm	20 mm	105 m³/h	1000 g
05	900-1000 μm	20 mm	130 m³/h	1000 g
P5	900-1000 μm	20 mm	156 m³/h	1000 g

Naša želja je bila ugotoviti vpliv pogojev meritev na vlažnost neobloženih pelet, zaradi preučevanja povezave med vlažnostjo pelet in elektrostatskim nabojem pelet. Meritve smo opravljali brez zajemanja podatkov in brez MS zaradi menjav RV. Različne razmejitvene valje smo uporabili za vizuelno opazovanje z namenom ugotoviti, kako EC vpliva na neželeni oprijem pelet na valj. Na razpolago smo imeli izhodne pelete z različnimi vlagami, katere so razporejene tako, da se je RH zmanjševala po koloni tabele navzdol. Pri meritvah, ki so nas najbolj zanimale (RH pelet po meritvi), opazimo, da se je relativna vlažnost pelet po meritvi spreminjala povsem različno in ne vedno sorazmerno s pretokom vode. Pri poskusu A1 (P5) smo imeli visoko vlažnost in stekleni valj, pelete se niso prijemale, težav z EC ni bilo. Meritve s kovinskim valjem (B) so pokazale, da RV ne vpliva na EC, saj kovina odvaja EC pelet in tako se pelete ne prijemajo na RV. Pri setu poskusov z RV iz pleksi stekla (C) smo opazili, da se pri poskusu C1 (P5), kjer smo imeli pretok zraka 156 m<sup>3</sup>/h in vlažnost pelet 1,79 %, pelete niso prijemale na RV. Pri ostalih dveh poskusih (C1 (O5) in C2 (O5)), ko je bila vlažnost pelet nižja in pretok zraka nižji (130  $m^3/h$ ) (bolj suhe pelete), pa so se pelete zelo močno oprijemale razmejitvenega valja. Zaključili smo, da RV iz pleksi stekla ni primeren za opravljanje nadaljnjih meritev. Kovinski valj je sicer dober za merjenje, vendar našega MS ne moremo uporabiti zaradi netransparentnosti RV. Stekleni RV je sicer primeren za meritve neobloženih pelet, vendar pri pogojih, ki zaradi potencialne aglomearcije pelet niso primerni za realni proces oblaganja.

#### 3.2.4 Spreminjanje pogojev

Poleg spreminjanja osnovnih spremenljivk poskusov, zbranih v preglednici 1 (priloge), smo spreminjali vrednost vhodne temperature zraka in pretoka vode za razprševanje z namenom ugotoviti, ali to signifikantno vpliva na meritve. Pretok vode smo merili s tehtnico in merili čas ter računali masni pretok v gramih na minuto. Razpon vrednosti pretoka je bil med 3 in 16 g/min, uporabljeno temperaturno območje pa med 30 in 45 °C. Ugotovili smo, da spreminjanje temperature zraka in pretoka vode za razprševanje vpliva na vlažnost pelet, kar smo potrdili z določanjem vlažnosti pelet pred, med in po merjenju. Med procesom oblaganja je priporočljivo vzdrževati relativno vlažnost v CW med 30 in 31 %, zato smo napravili pregled (preglednica V) optimalnih nastavitev ključnih procesnih parametrov za orientacijo. Pelet sicer nismo oblagali, smo pa razprševali deionizirano vodo na nevtralne neobložene pelete in s tem simulirali pogoje med procesom oblaganja. Pri tem smo ugotovili, da nam mertive s spreminjanjem omenjenih parametrov ne predstavljajo najboljše ponovljivosti. Odločili smo se, da bomo nadaljnje meritve izvajali pri konstantni vstopni temperaturi zraka in konstantnem masnem pretoku vode (preglednica VI).

vstopna T [°C]	volumski pretok zraka [m³/h]	masni pretok vode za razprševanje [g/min]	izstopna vlažnost zraka [%]
35	105	6	31
35	130	7	30
36	156	9	30

Preglednica V	Orientacijski	parametri za	neobložene pelete
---------------	---------------	--------------	-------------------

Preglednica VI: Dejanski parametri za neobložene pelete

vstopna T [°C]	volumski pretok zraka [m³/h]	masni pretok vode za razprševanje [g/min]	T produkta [°C]	Teoretična vrednost vlage [%]
30	105	4	23	31
30	130	4	24	28
30	156	4	25	25

Pri meritvah neobloženih pelet smo ugotovili, da nam povzroča težave elektrostatični naboj pelet v kombinaciji s steklenim RV, kar zaradi oprijema pelet na površino RV ni več omogočalo izvedbe ponovljivih meritev.

Neobložene pelete same po sebi predstavljajo nekoliko nepredvidljiv "material" za opravljanje meritev, saj so narejene iz MCC, ki sprejema ter oddaja vlago v odvisnosti od časa, temperature in relativne vlažnosti zraka (45). Zaradi tega dejstva nismo uspeli uravnati procesnih parametrov tako, da bi povsem odpravili elektrostatični naboj nevtralnih pelet. Primer prijemanja pelet na stekleni RV je predstavljen na sliki 10, kjer se nazorno vidi senčenje LŽ.



Slika 10: Merilni sistem pri ustavljenem pretoku zraka za fluidizacijo in vklopljenim laserjem

# 3.3 ODVAJANJE STATIČNEGA NABOJA PELET

Ker želimo napraviti korelacijo naših meritev z meritvami oblaganja, smo se odločili, da uporabimo stekleni RV, tako da ga delno oblečemo v aluminijasto folijo z notranje in zunanje strani in s tem rešimo težave z odvajanjem elektrostatičnega naboja. Napravili smo set novih meritev in ugotovili, da se neobložene pelete niso prijemale na predel, obložen z Al-folijo, prijemale pa so se na predelu brez aluminjaste folije. To težavo smo rešili tako, da smo pridobili raztopino (Staticide<sup>®</sup>) za namen nanosa antistatične prevleke in jo s tehniko razprševanja nanesli na neobloženi del stekla. Meritve so pokazale dobre rezultate, izkazalo pa se je, da je nanos te obloge pretanek, saj se je le-ta obrabil zaradi trkov pelet po dveh serijah meritev (slika 11). Napravili smo 15-kratni nanos z raprševanjem in ponovno poskusili. Izkazalo se je, da smo s tem povečali "domet" meritev le za eno serijo. Pomanjkljivost takega nanosa tehnike razprševanja je "matirana" površina obloge. To pomeni slabšo prosojnost LŽ in lahko povzroči tudi uklone. Debelejši in bolj prosojen nanos antistatične obloge smo dobili s potapljanjem neobloženega dela RV v raztopino Staticide<sup>®</sup> in naknadnim sušenjem. Tako dobljena prevleka je bila dobro prosojna. S tem pristopom

smo dosegli, da je AO zdržala okrog 12 ur meritev, kar je zadostovalo za dva dneva opravljanja meritev. Potem smo staro oblogo odstranili in nanesli novo.



**Slika 11:** Prikaz obrabljene antistatične obloge, nanešene s tehniko razprševanja, ki ni več uporabna za merjenje

Za nanašanje antistatične obloge na stekleni RV smo uporabili raztopino Staticide<sup>®</sup>, katero smo razprševali z enakomernim kroženjem z razpršilnikom (slika 12 levo).

- Način: RV z napršeno oblogo smo postavili v sušilnik pri temperaturi 60 °C za 30 minut.
- Način: RV z napršeno oblogo smo postavili v sušilnik pri temperaturi 80 °C za 20 minut.
- Način: 15-kratni nanos z razprševanjem. Vsak nanos smo po 20 sekundnem razprševanju utrdili s 30 sekundnim gretjem s sušilnikom za lase. Po 15-ih nanosih smo RV z napršeno oblogo postavili v sušilnik pri temperaturi 85 °C za 20 minut.
- 4. Način: Potapljanje RV v raztopino Staticide<sup>®</sup>. V 2 litrsko čašo smo nalili 500 ml raztopine Staticide<sup>®</sup> in potopili RV s steklenim delom navzdol do dna (slika 12 desno). To smo ponovili trikrat. RV z nanešeno oblogo smo postavili v sušilnik pri temperaturi 85 °C za 20 minut.



Slika 12: Levo razpršilnik za nanašanje AO in desno metoda potapljanja v raztopini Staticide®

## 3.4 TEORETIČNA OSNOVA ZA OCENO VOLUMSKEGA DELEŽA

Osnovo za povezavo med transmitanco in volumskimi deleži predstavlja spodnji graf (slika 13), ki prikazuje povprečne teoretične vrednosti transmitanc za izbrane velikosti pelet, ki so blizu našim povprečnim frakcijam pelet. Povezava med transmitanco in sorazmernostnim koeficientom je podana z enačbo *5* (poglavje 1.6).



**Slika 13:** Teoretična povprečna transmitanca v odvisnosti od volumskega deleža pelet velikosti 0,7 mm (temno modra), 1,0 mm (rdeča) in 1,25 mm (svetlo modra) (Rok Šibanc, Katedra za farmacevtsko tehnologijo, Fakulteta za farmacijo, Slovenija)

Da bi lahko izračunali točne vrednosti volumskih deležev pelet za naše povprečne frakcije, smo izrisali diagram (slika 14) vrednosti sorazmernostnih koeficientov (k) v odvisnosti od velikosti pelet (enačba 6). Pri tem je  $\alpha$  volumski delež pelet in T transmitanca.



$$k = -\frac{\ln T}{\alpha} \tag{6}$$

Slika 14: Odvisnost Beer Lambertovega parametra k od velikosti delcev

Iz krivulje (slika 14) smo v programu Mathematica natančno odčitali vrednosti k pri izbranih velikostih pelet in jih zbrali v Preglednici VII.

Preglednica VII: Vrednosti Beer Lambertovega prametra k za povprečne frakcije pelet

Velikost povprečne frakcije pelet	Odčitek sorazmernostnega koeficienta
655 μm	141,7
950 μm	99,3
1185 μm	76,4

# 4 REZULTATI IN RAZPRAVA

## **4.1 PONOVLJIVOST**

### 4.1.1 Ponovljivost znotraj posamezne meritve

Izrisanim vrednostim v obliki krivulje na grafu količine v odvisnosti od časa pravimo signal. Signal nam poda celotno sliko posamezne meritve. S pregledom posameznih signalov lahko v grobem ocenimo, ali so meritve sprejemljive ali pa je z njimi kaj narobe. To naredimo tako, da pogledamo posamezne dele signala po minutah in jih primerjamo med seboj. Če so deli signala med seboj primerljivi (enaki), je meritev ustrezna, če se signal s časom spreminja, meritev ni ustrezna. Celoten signal ene meritve je obsegal 300 sekund zajemanja podatkov med kroženjem pelet, 40 sekund merjenja signala pri ustavljeni komori (faza mirovanja), kar predstavlja bazno linijo, ter 20 sekund vmesnega časa, ko se izklaplja pretok vode in komoro.

Slika 15 prikazuje ustrezen (normalen) signal, nasprotno slika 16 ponazarja signal, ki nam pove, da z meritvami nekaj ni bilo v redu, saj se s časom zajema signala brez osnove povečuje njegova intenziteta.



Slika 15: Signal ustrezne meritve



Slika 16: Signal neustrezne meritve

Za vsako posamezno meritev smo napravili analizo ponovljivosti znotraj 300 sekundnega signala. Iz celotnega signala smo pripravili izseke intervala 60 sekund in izrisali krivulje diskretne porazdelitve verjetnosti transmitance. Krivulje smo zbrali na skupnem grafu in jih primerjali. Če se krivulje med seboj prekrivajo (brez zamikov) (slika 17), nam to predstavlja ustrezno meritev, v kolikor je odstopanje v višini, položaju in/ali širini krivulje, meritev ni sprejemljiva (slika 18).



Slika 17: Porazdelitve verjetnosti transmitance za ustrezno meritev



Slika 18: Porazdelitve verjetnosti transmitance za neustrezno meritev

Signali se ne prekrivajo in kažejo na zelo slabo ponovljivost znotraj meritve (slika 18), ki je bila opravljena v sklopu množice meritev obloženih pelet in izkazuje veliko nezaupanje v ponovljivost znotraj same meritve. Vsako minuto se porazdelitev razširi za določen (približno enak) korak. Bolj kot se porazdelitev razširi, večji je standardni odklon meritve. Ugotovili smo, da je šlo za aglomeracijo obloženih pelet zaradi prevelikega masnega pretoka vode, pri čemer se je velikost aglomeratov s časom povečevala (slika19). Na osnovi tega rezultata smo se odločili, da bomo za nadaljnje meritve zamenjali obložene prelete za neobložene.



Slika 19: Pojav aglomeracije pri obloženih peletah

Poleg že omenjene meritve smo identificirali še eno podobno meritev, ki ni kazala ponovljivosti znotraj 300 s signala, vendar pri drugih pogojih (slika 20). Tudi v tem primeru opazimo zmanjševanje verjetnosti in pomikanje vrhov proti višjim vrednostim transmitanc s časom, le da gre tu za manjše časovno odvisno širjenje porazdelitve transmitanc (približno za 0,5 % na minuto). To dejstvo nam poda informacijo, da se je v sistemu znotraj meritve nekaj konstantno spreminjalo. Ko smo zaključili meritev, smo opazili mnogo skupkov neobloženih pelet. V tem primeru smo uporabili pretirano količino vode za razprševanje

(20 g/min), ker smo se želeli izogniti vplivu statičnega naboja pelet. Izkazalo se je, da smo dosegli drugo skrajnost (združevanje mokrih neobloženih pelet zaradi kapilarnih sil vode), ki ni bila primerna. Na osnovi tega smo se odločili, da rešimo problematiko statičnega naboja pelet na drugačen način, ki ga opisujemo v poglavju 3.3.

Pri vseh ostalih pogojih meritev ponovljivosti znotraj signala ni bilo posebnosti, rezultati so pokazali dobro ponovljivost.



Slika 20: Porazdelitve verjetnosti transmitance pri obloženih peletah

# 4.1.2 Ponovljivost med posameznimi meritvami

Ponovljivost med posameznimi meritvami smo določali na osnovi ponovljenih meritev, pri enakih pogojih, v istem dnevu, s časovnim razmakom ene ure (preglednica VIII). Ponovljivost je ustrezna, saj so vrednosti povprečne transmitance in standardne deviacije primerljive.

R [mm]	Q <sub>zr</sub> [m³/h]	T <sub>1</sub> [%]	T₂[%]	SD1[%]	SD₂[%]
10	105	7,26	6,36	2,30	2,12
10	130	8,12	7,62	2,27	2,19
20	105	4,22	4,62	2,30	2,11
20	130	5,70	5,79	2,11	2,04
25	105	2,68	2,37	1,61	1,49
25	130	5,22	5,06	2,82	2,72

Preglednica VIII: Vrednosti dveh meritev pri velikosti frakcije 900-1000 µm in masi 1000 g

Ponovljivost med posameznimi meritvami smo prav tako vrednotili s primerjavo frekvenčnih diagramov, dobljenih s FFT signalov transmitance, in sicer za ponovljene meritve, pri enakih pogojih, v istem dnevu, s časovnim razmakom ene ure (preglednici 2 in 3 v prilogi). Ponovljivost je ustrezna, saj so vsi frekvenčni spektri, ki jih primerjamo pri enakih pogojih, praktično identični. To pomeni, da je dvofazni tok pelete – zrak fluktuiral na podoben način ob prvi in ob drugi meritvi, kar se je ustrezno preneslo tudi na signal transmitance svetlobe.

### 4.2 VPLIVI IZBRANIH PARAMETROV NA VREDNOSTI TRANSMITANCE

# **4.2.1** Vpliv nastavitve višine merilnega sistema (oddaljenost od šobe)

Z našim merilnim sistemom smo pomerili vrednost transmitanc tudi na sredini steklenega RV (70 mm od zgornjega roba navzdol), z namenom ugotoviti, za kakšen red velikosti se spremenijo vrednosti T v primerjavi z običajno postavitvijo nosilca na vrhu (pri čemer je LŽ 15 mm pod zgornjim robom razmejitvenega valja). V preglednici IX so zbrane povprečne vrednosti transmitanc, preračunane povprečne odprtine reže (18,3 mm) glede na pozicijo merilnega sistema. Pri tem moramo poudariti, da nismo merili pri konstantni oddaljenosti merilnega sistema glede na šobo, kar bi bilo tehnično težje izvedljivo, ampak le relativno glede na RV. S spreminjanjem velikosti reže se je tako med posameznimi meritvami nekoliko spreminjala oddaljenost MS od šobe, kar pa pri meritvah ni imelo bistvenega vpliva.

FR = 900-1000 μm	Oddaljenost MS od zgornjega roba RV		
m = 1000 g	0 mm 70 mm		
pretok zraka [m³/h]	т [%] Т [%]		
105	4,72	0,82	
130	6,16	1,56	

Preglednica IX: Transmitance, povprečene na režo v odvisnosti od višine merilnega sistema

Vrednosti transmitanc, izmerjene na sredini razmejitvenega valja, so bistveno nižje v primerjavi z vrhom RV. To je pričakovano, saj se vzdolž razmejitvenega valja navzgor tok pelet redči zaradi povečevanja hitrosti le-teh. Ugotovili smo, da je pri višjem volumskem pretoku (130 m<sup>3</sup>/h) razmerje v vrednostih T večje (faktor 5,9) kot pri manjšem (105 m<sup>3</sup>/h) volumskem pretoku (faktor 3,9). Reža predstavlja omejitveni faktor pri vstopu pelet v RV. Večji kot je volumski pretok zraka skozi RV, manjše je razmerje med količino pelet in količino zraka.

### 4.2.2 Vpliv velikosti pelet

Za prikaz vpliva velikosti pelet smo v preglednici X zbrali podatke meritev transmitanc za 1000 g pelet.

	Q <sub>zr</sub>	105 m³/h	130m³/h	
frakcija pelet	reža [mm]	T[%]	T[%]	
	10	2,66	3,99	
600-710 μm	20	2,11	3,27	
-	25	2,04	2,96	
	10	7,26	7,62	
900-1000 μm	20	4,22	5,79	
-	25	2,68	5,06	
	10	14,7	19,7	
1120-1250 μm	20	10,7	12,8	
	25	6,80	10,4	

Preglednica X: Transmitance za tri različne frakcije pelet v odvisnosti od Q<sub>zr</sub> in velikostjo reže

Za dodatno primerjavo vpliva velikosti pelet smo izdelali tudi dva diagrama porazdelitve vrednosti transmitanc.



Slika 21: Porazdelitve verjetnosti transmitanc za 1000 g pelet.

Diagrama (slika 21) prikazujeta porazdelitve verjetnosti transmitance za nastavitve komore, kjer smo pričakovali najvišje oziroma najnižje volumske deleže oziroma transmitance. Levo reža 10 mm in pretok 130m3/h, desno reža 25 mm in pretok 105 m3/h. Krivulje: velikost pelet 600-710 µm (temno modra), 900-1000 µm (rdeča), 1120-1250 µm (svetlo modra).

Najnižje volumske deleže pričakujemo pri najmanjši odprtini reže ter najvišjem pretoku in obratno. Za oba pretoka zraka za fluidizacijo velja, da se s povečevanjem velikosti pelet povečuje vrednost transmitance, kot smo videli že iz številčnih podatkov. To je pričakovano,

ker imajo večje pelete manjšo specifično površino (ob predpostavki, da so volumski deleži enaki ali vsaj podobni). Krivulja za največje pelete (svetlo modra) je v obeh diagramih nazobčena. Podobno opazimo tudi pri pregledu diagramov za ostale pogoje. Majhno nazobčanost opazimo tudi pri srednji velikosti pelet. Ta pojav si razlagamo z diskretno naravo pelet in sicer tako, da imamo manjše število delcev na enoto volumna, če so le-ti večji. Če predpostavimo, da je volumen vpadne svetlobe laserskega žarka na senzor 7200 mm<sup>3</sup> (10x10x70 mm<sup>3</sup>) in volumski delež pelet 2 %, lahko izračunamo število pelet na enoto predpostavljenega volumna glede na velikost le-teh. Za frakcijo 1120-1250 µm je izračunano število delcev 161, za 900-1000 μm je 312 in za 600-710 μm je 952. Iz izračunanih vrednosti lahko povzamemo, da je razmerje števila pelet med največjimi in najmanjšimi peletami 1:6. Na osnovi te razlike lahko razumemo vpliv posamezne pelete na standardno deviacijo porazdelitve transmitance in na nazobčanost krivulje. Velikih pelet je številčno malo v primerjavi z majhnimi, poleg tega ima velika peleta večjo površino, ki bolj zasenči vpadno svetlobo na senzor v primerjavi z manjšim. Tako velika peleta povzroči večjo spremembo signala v primerjavi z manišo, kar se izrazi z večio nazobčanostio krivulje. Širina krivulje je večja pri večjih delcih zaradi manjšega števila delcev na enoto volumna.

#### 4.2.2.1 Vpliv reže

S povečevanjem razmika med RV in DP se zmanjšuje vrednost transmitance (slika 22), kar pomeni, da se zvišuje vrednost volumskega deleža pelet. Če pa pogledamo še vpliv velikosti pelet glede na režo, ugotovimo, da se vpliv reže veča s povečevanjem velikosti pelet. Ne glede na velikost pretoka se vrednost transmitance zmanjšuje s povečevanjem reže. To pa je najbolj izrazito pri frakciji pelet 1120-1250 µm. Rezultat je pričakovan, saj predstavlja izbrana velikost reže pri največjih peletah večjo omejitev za horizontalni transport pelet skozi režo kot pri manjših peletah.



**Slika 22:** Prikaz vpliva razmika ter velikosti pelet na transmitanco pri pretoku 130 m<sup>3</sup>/h ter masi pelet 1000 g

### 4.2.3 Vpliv količine pelet

V Wursterjevo komoro smo prenesli natančno zatehtano količino pelet, in sicer najprej 500 g ter napravili serijo meritev s spreminjanjem reže in pretokom zraka. Nato smo ustavili delovanje CW ter dodali še 500 g pelet in tako še tretjič, ko smo imeli v komori 1500 g pelet. V nadaljevanju predstavljamo primerjavo (preglednica XI) vrednosti tako izmerjenih transmitanc za srednjo velikost pelet pri različnih pretokih zraka za fludidzacijo. Na osnovi podatkov povzamemo, da se s povečevanjem reže zmanjšujejo vrednosti transmitanc pri vseh treh masah pelet v komori, in sicer pri obeh pretokih.

	Q <sub>zr</sub>	105 m³/h	130m <sup>3</sup> /h
masa pelet	reža [mm]	T [%]	T [%]
	10	28,5	25,6
500 g	20	21,4	24,6
	25	20,4	24,6
	10	7,24	8,58
1000 g	20	4,42	6,69
_	25	2,53	6,39
	10	8,13	6,52
1500 g	20	1,21	1,99
-	25	0,80	2,80

Preglednica XI: Vrednosti transmitance v odvisnosti od mase 900-1000 µm pelet

Na transmitance pri različnih polnjenjih vpliva tudi pretok zraka za fluidizacijo, vendar vpliv ni enoznačen. Pri reži 10 mm opazimo večjo transmitanco pri manjšem pretoku zraka za fluidizacijo, in sicer za polnitvi 500 in 1500 g. Pri ostalih nastavitvah pa je transmitanca vedno večja v primeru večjega pretoka za fluidizacijo.



**Slika 23:** Vpliv polnitve komore na vrednost transmitance pri pretoku 130 m<sup>3</sup>/h za velikost pelet 900-1000  $\mu$ m

3D graf (slika 23) ponazarja pomemben vpliv polnitve na vrednosti transmitanc ravno pri večjih masah. Do bistvenega preloma pride ravno na prehodu med 500 in 1000 grami pelet, pri čemer odprtina reže ne igra tako pomembne vloge. Ta pojav si lahko razložimo s hipotezo o delovanju sile teže pelet na polzenje le-teh v razmejitveni valj, kar je seveda povezano z dimenzijami komore. Večja kot je masa, večji je pritisk na spodnje pelete, hitreje prehajajo v notranjost RV.

#### 4.2.3.1 Vpliv pretoka zraka

Vpliv pretoka zraka je eden od parametrov, ki signifikantno vplivajo na vrednosti lokalnega volumskega deleža pelet. Na sliki 24 je prikazan izris točk kombinacije pretoka zraka, transmitance in reže. Videti je, da s povečevanjem pretoka zraka naraščajo vrednosti transmitanc, če pa se zraven opremo še na vpliv reže, ugotovimo, da so vrednosti T največje pri največjem pretoku zraka za fluidizacijo in minimalni odprtini reže. Najnižje vrednosti T pa so pri najnižjem pretoku zraka in največji odprtini reže.



Slika 24: Vpliv pretoka zraka za fluidizacijo na vrednost transmitance za velikost 600-710  $\mu$ m in maso 1000 g

#### 4.3 VPLIV PARAMETROV NA RSD TRANSMITANCE

Relativno standardno deviacijo transmitance smo izračunali s pomočjo enačbe 7.

$$RSD = \frac{s}{T} \cdot 100$$
 [7]

V splošnem opazimo (slika 25), da se s povečevanjem razmika med RV in DP povečuje vrednost RSD transmitance, kar pomeni, da se hkrati z zviševanjem vrednosti volumskega deleža pelet (nižje povprečne transmitance) povečuje sipanje te količine. Če pogledamo še vpliv velikosti pelet glede na režo, ugotovimo, da se RSD transmitance manjša s povečevanjem velikosti pelet.



**Slika 25:** RSD transmitance v odvisnosti od reže in velikosti pelet, pri pretoku 105 m<sup>3</sup>/h ter masi pelet 1000 g



**Slika 26:** RSD transmitance v odvisnosti od mase pelet in velikosti reže, pri pretoku 130 m<sup>3</sup>/h ter velikosti pelet 900-1000  $\mu$ m

S povečevanjem polnitve CW se povečujejo vrednosti RSD transmitance (slika 26). Pri polnitvi 500 g je RSD tako rekoč konstanten ne glede na odprtino reže. Pri polnitvi 1500 g in reži 25 mm vidimo, da ima RSD največjo vrednost. Vidimo tudi, da so razlike v vrednostih RSD transmitance pri reži 25 mm v odnosu do polnitve bistveno večje v primerjavi z razlikami pri reži 10 mm.

Primerjajmo še vpliv velikosti in mase pelet na RSD pri različnih pretokih zraka. V ta namen smo za primerjavo pripravili kombinacijo tabele, v kateri so povprečene vrednosti RSD transmitance za različne mase in velikosti pelet ter diagrama s skalo na RSD osi med 40 in 50 % zaradi lažje razvidnosti razlik. Pri nizkem pretoku zraka so vrednosti RSD transmitance visoke tako pri meritvah z različnimi masami kot različnimi velikostmi pelet. Pri višjem pretoku zraka se RSD vrednosti transmitance zmanjšajo tako pri meritvah različnih velikosti pelet kot pri različnih masah pelet. Iz tega sklenemo, da so vrednosti RSD manjše pri višjih pretokih. Rezultat je logičen, saj je volumski delež pelet pri višjih pretokih manjši (poglavje 4.4), pri manjšem  $\alpha$  pa je RSD fluktuacij manjši zaradi manjšega vpliva fluktuacij dvofaznega toka. Pri večjem volumskem deležu pelet je število trkov med peletami večje in to deloma vpliva na povečanje fluktuacij.

RSD transmitance je dejansko odvisen od koncentracije delcev. Pri določeni vrednosti volumskega deleža je to odvisno predvsem od velikosti delcev. Transmitanca lahko torej variira naravno zaradi določene številčne koncentracije delcev pri enakem volumskem deležu in hkrati zaradi dejanskih fluktuacij volumskega deleža. Pri visokih številčnih koncentracijah delcev gre variacijo transmitance pripisati predvsem časovni variaciji volumskega deleža.



**Slika 27:** Povprečene vrednosti RSD transmitanc glede na različne velikosti ali mase pelet pri različnih vrednostih pretoka zraka za fluidizacijo

## 4.4 OCENA VOLUMSKEGA DELEŽA IN PRIMERJAVA Z LITERATURNIMI PODATKI

### 4.4.1 Ocena volumskega deleža s pomočjo teoretičnih izračunov

Rezultati volumskega deleža pelet iz preglednice XII kažejo, da večje vrednosti volumskega deleža pelet dosežemo, če pri enakih robnih pogojih uporabimo pelete večjih velikosti. To je verjetno posledica tega, da je disipacija energije, kot posledica neelastičnih trkov in trenja med delci, manjša v primeru, ko imamo v sistemu pri enakem volumskem deležu manjše število delcev. Optimum glede volumskega deleža predstavlja velikostna frakcija pelet od 900 do 1000 mikronov, kar je verjetno posledica večje omejitve horizontalnega transporta frakcije 1120 do 1250 mikronov pri režah 10 in 20 mm. Vidimo tudi trend naraščanja  $\alpha$  s povečevanjem velikosti R, kar je še posebej značilno za večji velikostni frakciji pelet, kjer je velikost reže lahko omejitveni faktor za masni tok pelet. Vzorec spremembe volumskega deleža pretoka zraka za fluidizacijo. Zanimivo je to, da so vrednosti volumskih deležev največje ravno pri peletah srednjega velikostnega razreda (maksimalna vrednost vseh vrednosti v tabeli je odebeljena). Najmanjšo vrednost najdemo pri največjih peletah pri reži 10 mm (podčrtana).

masa = 1000 g	velikost pelet	frakcije pelet		
reža [mm]	pretok [m <sup>3</sup> /h]	600-710 μm	900-1000 μm	1120-1250 μm
10	105	2,56	2,64	2,51
20	105	2,72	3,14	2,93
25	105	2,75	3,70	3,52
10	130	2,27	2,47	<u>2,13</u>
20	130	2,41	2,72	2,69
25	130	2,48	2,98	2,96

<b>Preglednica</b>	XII:	Volumski	delež v	odvisnosti	od	velikosti	pelet
0							1

Iz preglednice XIII razberemo, da so vrednosti α v povprečju nižje pri višjih pretokih zraka. S povečevanjem reže se povečujejo vrednosti α. Minimum je pri najmanjši polnitvi in najmanjši odprtini reže (podčrtano). Maksimum je pri največji polnitvi in največji reži. V primerjavi z vrednostmi transmitance so si vrednosti α veliko bližje skupaj.

	Q <sub>zr</sub>	105 m³/h	130m³/h
masa pelet	reža [mm]	a [%]	a [%]
	10	1,26	1,37
500 g	20	1,55	1,41
	25	1,60	1,41
	10	2,64	2,47
1000 g	20	3,14	2,72
	25	3,70	2,98
	10	2,53	2,75
1500 g	20	4,45	3,89
	25	4.86	3,60

Preglednica XIII: Volumski delež pelet v odvisnosti od mase 900-1000 µm pelet





Primerjava vrednosti RSD transmitance z  $\alpha$  (slika 28) nam poda informacijo, pri katerih polnitvah imamo najmanjše sipanje rezultatov. Vidimo, da se s povečevanjem lokalnega volumskega deleža pelet in povečevanjem polnitve povečuje RSD transmitance, kar je povsem logično, saj sta polnitev in lokalni volumski delež pelet medsebojno povezana. Povezavo lahko razložimo s silami, in sicer: večja kot je polnitev v komori, večja je sila pritiskanja na pelete, pri čemer bolj hitro polzijo skozi režo v notranjost RV.

#### 4.4.2 Primerjava z rezultati metode "zamrznitve" toka

V literaturi (46) smo pridobili podatke meritev globalnega volumskega deleža pelet na področju razmejitvenega valja, kjer so uporabljali pelete s povprečnim premerom 925  $\mu$ m in maso 1085 g. Iz preglednice VII smo na osnovi teh podatkov izbrali sorazmernostni koeficient (k = 99,3) za PFR 950  $\mu$ m. Tako smo na osnovi enačbe *6* izračunali vrednosti volumskih deležev pelet pri polnitvi 1000 g pelet in jih zbrali v preglednici XIV.

S primerjavo rezultatov globalnega volumskega deleža, dobljenih z metodo zamrznitve toka, z rezultati lokalnega volumskega deleža, dobljenih z meritvami transmitance (preglednica XIV), ugotovimo, da smo dobili primerljive rezultate glede na vpliv pretoka zraka. Višji kot je pretok, nižje so vrednosti volumskega deleža. Prav tako je v obeh primerih opazno naraščanje vrednosti  $\alpha$  s povečevanjem velikosti R. Naše ocenjene vrednosti  $\alpha$  so v povprečju manjše, in sicer zaradi tega, ker se nanašajo na lokalno merjenje (na vrhu valja), literaturni podatki pa so globalni (obsegajo celoten valj).

**Preglednica XIV:** Primerjava lokalnih vrednosti  $\alpha$ , dobljenih s transmitanco, z globalnimi vrednostmi  $\alpha$ , pridobljenimi z metodo "zamrznitve"

Pretok [m <sup>3</sup> /h]	105		retok [m³/h] 105 130		130	
R [mm]	α (Τ) [%]	α (globalni) [%]	α (Τ) [%]	α (globalni) [%]		
10	2,64	9,0	2,47	5,9		
20	3,14	11,0	2,72	9,3		
25	3,70	11,8	2,98	10,4		

### 4.4.3 Primerjava z rezultati CFD simulacije

Na podlagi literaturnega vira (47) smo od avtorjev pridobili natančne podatke lokalnega volumskega deleža pelet (na vrhu razmejitvenega valja), izračunanega s pomočjo CFD simulacij, in sicer za pelete s povprečnim premerom 1013 µm in maso 1085 g.

**Preglednica XV:** Primerjava lokalnih vrednosti  $\alpha$ , dobljenih s transmitanco, z lokalnimi vrednostmi  $\alpha$ , dobljenih s CFD simulacijo

Pretok [m <sup>3</sup> /h]	105		130	
R [mm]	α (Τ) [%]	α (CFD) [%]	α (Τ) [%]	α (CFD) [%]
10	2,64	3,62	2,47	3,36
20	3,14	3,93	2,72	3,42
25	3,70	4,43	2,98	3,94

S primerjavo rezultatov lokalnega volumskega deleža, dobljenih s CFD simulacijo, z rezultati lokalnega volumskega deleža, pridobljenimi z meritvami transmitance (slika 29), ugotovimo, da smo dobili primerljive rezultate glede na vpliv pretoka zraka. Večji kot je pretok, nižje so vrednosti volumskega deleža. Prav tako je v obeh primerih opazno naraščanje vrednosti  $\alpha$  s povečevanjem velikosti R. Naše ocenjene vrednosti  $\alpha$  so v povprečju manjše (okoli 1 %), in sicer verjetno zaradi tega, ker je v simulaciji trenje med delci v nasutju zaradi omejitve modelov nekoliko podcenjeno.









Iz primera simulacije s CFD metodo razberemo, da se volumski delež pelet znotraj razmejitvenega valja zmanjšuje od spodaj navzgor.

### 4.5 PRIMERJAVA POVPREČNE VREDNOSTI TRANSMITANCE Z RSD DEBELINE OBLOGE

Kot zanimivost in odgovor na vprašanje, ali so podatki, ki smo jih pridobili tekom naše študije, primerljivi z rezultati, ki so bili dobljeni tekom oblaganja pelet (48), smo napravili primerjavo naših povprečnih vrednosti T in povprečnih RSD vrednosti debeline obloge iz literaturnega vira. Povprečja obeh navedenih količin so izračunana glede na različne vrednosti reže znotraj posamezne frakcije pelet. Oblaganje pelet so izvajali pri pretoku zraka 130 m<sup>3</sup>/h. Spremenljivke: velikosti pelet, polnitev CW in nastavitve reže so bile identične našim. Najmanjše pelete imajo znatno višjo vrednost povprečne RSD, med srednjimi in največjimi pa je razlika manjša.



**Slika 31:** Primerjava povprečne RSD debeline obloge s povprečno T pri različnih frakcijah pelet (rdeč trikotnik 600-710 µm, zelen kvadrat 900-1000 µm in vijoličen krog 1120-1250 µm)

Ugotovili smo (slika 31), da se s povečevanjem velikosti pelet zmanjšuje povprečna relativna standardna deviacija debeline obloge, povprečna vrednost T pa pri tem narašča. Rezultati ugotovitev so spodbudni, saj s tem potrjujemo povezavo med našimi meritvami transmitance in določanjem RSD debeline obloge pelet. S tem potrjujemo tudi postavljeno hipotezo Jasne Grželj (48), da RSD debeline obloge v primeru manjših pelet lahko razložimo z relativno večjim medsebojnim senčenjem delcev v področju razprševanja. Transmitanca je namreč neposredno merilo medsebojenga senčenja pelet. Manjša transmitanca pomeni večje medsebojno senčenje delcev in obratno.

# 5 SKLEP

Razvili smo občutljivo in ponovljivo metodo za lokalno vrednotneje transmitance znotraj razmejitvenega valja Wursterjeve komore z namenom identifikacije povprečne vrednosti lokalnega volumskega deleža pelet in s tem doprinesli k večjemu razumevanu poteka procesa oblaganja.

Pri meritvah transmitanc in z izračuni lokalnih volumskih deležev smo s pomočjo analize vplivov parametrov prišli do naslednjih ugotovitev:

spremenljivka	vrednost	ugotovitev
pretok zraka za fluidizacijo	105 m <sup>3</sup> /h 130 m <sup>3</sup> /h 156 m <sup>3</sup> /h	s povečevanjem pretoka se T povečuje, α zmanjšuje
razmik med RV in RP (reža)	10 mm 20 mm 25 mm	s povečevanjem razmika se T zmanjšuje, α povečuje
višina merilnega sistema glede na stekleni RV	0 mm (nosilec poravnan z zgornjim robom RV) 70 mm (nosilec na sredini RV)	vrednosti T so višje pri 0 mm in nižje pri 70 mm razlika je za faktor 3
velikostni razred pelet	600-710 μm 900-1000 μm 1120-1250 μm	s povečevanjem velikosti pelet se vrednosti RSD T zmanjšujejo, povprečne vrednosti T pa povečujejo, α je največji pri srednji FR
količina pelet (polnitev CW)	500 g 1000 g 1500 g	s povečevanjem polnitve CW se zmanjšuje vrednost T in povečuje α

**Preglednica XVI:** Pregled zbranih ugotovitev

S primerjavo z literaturnimi vrednostmi smo pokazali, da je naša metoda določanja volumskega deleža pelet povsem skladna s trendom rezultatov drugih metod. Določili smo dobro ponovljivost znotraj posamezne meritve, kot tudi med posameznimi meritvami.

Metoda, ki smo jo razvili, je bolj natančna in bolj točna pri manjši polnitvi komore ter manjši odprtini reže, ko je vrednost volumskega deleža pelet nižja.

Razvita metoda za določanje lokalnega volumskega deleža pelet s transmitanco laserskega žarka se je izkazala za povsem primerno pri preučevanju vpliva tehnoloških parametrov in s tem pripomogla k boljšemu razumevanju procesa oblaganja. Merilni sistem, ki smo ga zasnovali, je sestavljen iz cenovno ugodnih komponent, odlikujeta ga enostavnost ter možnost spremljanja poteka procesa oblaganja in zato je kot prototip z ustrezno prilagoditvijo perspektiven tudi za uporabo v proizvodnih napravah.

Metoda, ki smo jo razvili, bi lahko bila primerna tudi za vrednotenje lokalnega volumskega deleža pelet v Swirl Wurster komori, kar lahko predstavlja možnost za nadaljnje raziskave. Swirl Wurster komora je značilna po tem, da zvrtinči vstopni zrak v komori in pelete se tako dvigujejo vzdolž razmejitvenega valja navzgor pod kotom. Tak princip delovanja komore omogoča boljšo ponovljivost (zaradi zmanjšanega pojava fluktuacij) in s tem zmanjšanje vrednosti RSD pri uporabi široke frakcije pelet (49). Pričakujemo, da bi bile vrednosti RSD transmitance izmerjene z omenjeno opremo nižje in ponovljivost meritev boljša.

Ideja za nadaljnjo uporabo razvite metode je načrtovanje vrednotenja volumskega deleža pelet med dejanskim oblaganjem pelet, kjer bi lahko na začetku ali tekom procesa optimirali nastavitve velikosti reže ter ugotavljali tudi stopnjo aglomeracije delcev. V slednjem primeru bi pričakovali, da se bodo vrednosti izmerjenih transmitanc povečevale s povečevanjem velikosti in količine aglomeratov.

# **6 LITERATURA**

- Mathur LK. Fluid-Bed Dryers: Granulators and coaters. In: Swarbrick J, Boylan JC. Encycl Pharm Tech, Marcel Dekker, New York, 1992; 6: 171–195.
- 2. Teunou E, Poncelet D: Batch and continuous fluid bed coating Review and state of the art, J Food Eng, 2002; 53: 325–340.
- Wesdyk R, Joshi YM, De Vincentis J, Newman AW, Jain NB: Factors affecting differences in film thickness of beads coated in fluidized bed units. Int J Pharm, 1993; 93 (1-3): 101–109.
- 4. Ghebre-Sellassie I, Knoch A: Peletization techniques. In: Swarbrick J, Boylan JC. Encycl Pharm Tech, Marcel Dekker, New York, 1995; 11: 369–394.
- 5. Glatt W, Bauer K: Fuidized bed apparatus. United States Patent, Patent number 4,323,312, date of patent Apr. 6, 1982.
- 6. Takei H, Kurita K, Akiyama H, Yamanaka K: Centrifugal tumbling granulating-coating apparatus. United States Patent, Patent number 5,582,643, date of patent Dec. 10, 1996.
- 7. Vrečer F: Izdelava pelet v vrtinčnoslojnem granulatorju. Zbornik posvetovanja tehnološke sekcije Sodobni tehnološki trendi k oblikovanju zdravil, 1996: 77–86.
- 8. Wurster DE: Method of applying coatings to edible tablets or the like. United States Patent, Patent number 2,648,609, date of patent Aug. 11, 1953.
- 9. Wurster DE, Wis M: Means for applying coatings to tablets or like. United States Patent, Patent number 2,799,241, date of patent Jul. 16, 1957.
- 10. Wurster DE, Wis M: Granulating and coating process for uniform granules. United States Patent, Patent number 3,089,824, date of patent May 14, 1963.
- 11. Wurster DE, Wis M, Lindolf JA: Particle coating apparatus. United States Patent, Patent number 3,241,520, date of patent Mar. 22, 1966.
- 12. http://www.cjtech.co.kr/Technical%20Process%20Fluid%20Bed%20Granulation.htm
- Cole CG: Coating pans and coating columns. In: Cole GC, Hogan J, Michael A. Pharm Coat Tech, Francis and Taylor, Philadelphia, 1995: 229–232.

- Jones DM, Smith RA, Kennedy JP et al: Apparatus for coating tablets. United States Patent, Patent number 6,579,365, date of patent Jun. 17, 2003.
- Bender M: Wurster fluid bed coater with fluidizing gas distribution plate bypass. United States Patent, Patent number 7,563,325, date of patent Jul. 21, 2009.
- 16. http://www.niroinc.com/pharma\_systems/fluid\_bed\_coating.asp
- 17. Jones DM: Fluidized bed with spray nozzle shielding. United States Patent, Patent number 5,437,889, date of patent Aug. 1, 1995.
- Bender MP: Wurster fluid bed coater with agglomeration enhancement screen. United States Patent, Patent number 7,147,717, date of patent Dec. 12, 2006.
- 19. Hüttlin H: Fluidized bed apparatus for the product and/or further treatment of granulate material. United States Patent, Patent number 4,970,804, date of patent Nov. 20, 1990.
- 20. Walter K: Apparatus for coating solid particles. United States Patent, Patent number 5,718,764, date of patent Feb. 17, 1998.
- 21. Heng PWS, Chan LW, Tang ESK: Use of swirling airflow to enhance coating performance of bottom spray fluid bed coaters, Int J Pharm Sci 2006; 327: 26–35.
- Hüttlin H: Device for treating particulate material. United States Patent, Patent number, Patent number 6,898,869, date of patent May 31, 2005.
- 23. Hüttlin H: Apparatus for treating particulate material. United States Patent, Patent number 7,802,376, date of patent Sept. 28, 2010.
- 24. Wan LSC, Lai WF: Factors affecting drug release from drug-coated granules prepared by fluidized-bed coating. Int J Pharm 1991; 72 (2): 163–173.
- 25. Lin JS, Chen MM, Chao BT: A novel radioactive particle tracking facility fo measurement of solids motion in gas fluidized beds. AIChE Journal 1985; 31 (3): 465– 473.
- Van Velzen D, Flamm HJ, Langenkamp H, Casile A: Motion of solids in spoutted beds. Can J Chem Eng 1974; 52 (2): 156–161.
- 27. Luštrik M, Dreu R, Šibanc R, Srčič S: Comparative study of the uniformity of coating thickness of pellets coated with a conventional Wurster chamber and a swirl generatorequipped Wurster chamber. Pharm Dev Tech, 2012; 17 (3): 268–276.

- 28. Cheng XX in Turton R: The Prediction of Variability Occurring in Fluidized Bed Coating Equipment. II. The Role of Nonuniforme Particle Coverage Rates in a Bottom-Spray Fluidized Bed Coater. Pharm Dev Tech 2000; 5: 323–332.
- Werner SRL, Jones JR, Paterson AHJ, Archer RH, Pearce DL: Air-suspension coating in the food industry: Part II — micro-level process approach. Pow Tech 2007; 171 (1): 34–45.
- 30. Cheng XX, Turton R: The Prediction of Variability Occurring in Fluidized Bed Coating Equipment. I. The Measurement of Particle Circulation Rates in a Bottom-Spray Fluidized Bed Coater. J Pharm Dev Tech 2000; 5 (3): 22–311.
- 31. Kim SW, Ahn JY, Lee DH, Kim SD: Continuous measurement of solids flow in a circulating fluidized bed. Kor J Chem Eng 2001; 18 (4): 555–560.
- Reinhardt B, Cordonnier A, Florent P: Use o fan isokinetic sampling probe. Results in a cyclone. Pow Tech 1999; 101 (1): 81–90.
- Nieuwland JJ, Meijer R J.A.M, Kuipers W.P.M, van Swaaij: Measurements of solids concentration and axial solids velocity in gas-solid two-phase flows. Pow Tech 1996; 87: 127–139.
- Yong Y: Mass flow measurement of bulk solids in pneumatic pipelines. Meas Sci Tech 1996; 7: 1687.
- 35. Fasching G E et. al: Three-axis particle impact probe. United States Patent, Patent number 5,144,251, date of patent Sept. 1, 1992.
- 36. Wiesendorf V, Werther J: Capacitance probes for solids volume concentration and velocity measurements in industrial fluidized bed reactors. Pow Tech 2000; 110 (1-2): 143–157.
- Yong Y: Mass flow measurement of bulk solids in pneumatic pipelines. Meas Sci Tech 1996; 7: 1691–1692.
- 38. DiGregorio B E: "All You Need is Sound". Anal Chem 2007; 79 (19): 7236.
- Buice R. J, Pinkston P, Lodder R A: "Optimization of Acoustic-Resonance Spectrometry for Analysis of Intact Tablets and Prediction of Dissolution Rate". Appl Spectr 1994; 48 (4): 517–524.

- 40. Yong Y: Mass flow measurement of bulk solids in pneumatic pipelines. Meas Sci Tech 1996; 7: 1693–1694.
- 41. Dressler J A et. al: Measurement, monitoring and control of directed product movements in a Wurster-arrangement and suitable systems. United States Patent, Patent number 8,187,663 B2, date of patent May 29, 2012.
- R. Rundqvist, A. Magnusson, B. G. M. van Wachem, A. E. Almstedt: Dual optical fibre measurements of the particle concentration in gas/solid flows. Exp Fluids 2003; 35 (6): 572–579.
- 43. Crowe C, Sommerfeld M, Tsuji Y: Multiphase Flows with Droplets and Particles. Allen 1990; 303–304.
- 44. Ragnarsson G, Johansson MO: Coated Drug Cores in Multiple Unit Preparations Influence of Particle Size. Drug Dev Ind Pharm 1988; 14: 2285–2297.
- 45. Ardizzone S, Dioguardi F. S, Mussini T: Microcrystalline cellulose powders: structure, surface features and water sorption capability. Cellulose 1999; 6: 57–69.
- 46. Dreu R: Izdelava pelet z različnimi granulacijskimi tekočinami in vpliv hidrodinamskih razmer v Wursterjevi komori na učinkovitost filmskega oblaganja, Doktorska disertacija. Fakulteta za farmacijo, Ljubljana, 2004: 108, 145.
- 47. Šibanc R, Srčič S, Dreu R: Numerical simulation of two-phase flow in a Wurster coating chamber and comparison with experimental results. J Chem Eng Sci 2013; 99: 230, 232.
- 48. Grželj J: Vpliv količine, velikosti pelet ter velikosti reže na proces oblaganja v Wursterjevi komori, Diplomsko delo. Fakulteta za farmacijo, Ljubljana, 2011: 65, 66.
- Dreu R, Luštrik M, Perpar M, Žun I, Srčič S: Fluid-bed coater modifications and study of their influence on the coating process of pellets. Drug Dev Ind Pharm 2012; 38 (4): 501–511.

# 7. PRILOGE

Delovna hipoteza	Velikost pelet	Razmik med DP	Pretok zraka za	Masa pelet
Oznaka		in RV	fluidizacijo	
kombinacije				
К1	600-710 μm	10 mm	105 m³/h	500 g
К2	600-710 μm	20 mm	105 m³/h	500 g
К3	600-710 μm	25 mm	105 m³/h	500 g
К4	600-710 μm	10 mm	105 m³/h	1000 g
К5	600-710 μm	20 mm	105 m³/h	1000 g
К6	600-710 μm	25 mm	105 m³/h	1000 g
К7	600-710 μm	10 mm	105 m³/h	1500 g
К8	600-710 μm	20 mm	105 m³/h	1500 g
К9	600-710 μm	25 mm	105 m³/h	1500 g
L1	600-710 μm	10 mm	130 m <sup>3</sup> /h	500 g
L2	600-710 μm	20 mm	130 m³/h	500 g
L3	600-710 μm	25 mm	130 m³/h	500 g
L4	600-710 μm	10 mm	130 m³/h	1000 g
L5	600-710 μm	20 mm	130 m³/h	1000 g
L6	600-710 μm	25 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1000 g
L7	600-710 μm	10 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1500 g
L8	600-710 μm	20 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1500 g
L9	600-710 μm	25 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1500 g
M1	600-710 μm	10 mm	156 m³/h	500 g
M2	600-710 μm	20 mm	156 m³/h	500 g
M3	600-710 μm	25 mm	156 m³/h	500 g
M4	600-710 μm	10 mm	156 m³/h	1000 g
M5	600-710 μm	20 mm	156 m³/h	1000 g
M6	600-710 μm	25 mm	156 m³/h	1000 g
M7	600-710 μm	10 mm	156 m³/h	1500 g
M8	600-710 μm	20 mm	156 m³/h	1500 g
M9	600-710 μm	25 mm	156 m³/h	1500 g
N1	900-1000 μm	10 mm	105 m³/h	500 g
N2	900-1000 μm	20 mm	105 m³/h	500 g
N3	900-1000 μm	25 mm	105 m³/h	500 g
N4	900-1000 μm	10 mm	105 m³/h	1000 g
N5	900-1000 μm	20 mm	105 m³/h	1000 g
N6	900-1000 μm	25 mm	105 m³/h	1000 g
N7	900-1000 μm	10 mm	105 m³/h	1500 g
N8	900-1000 μm	20 mm	105 m³/h	1500 g
N9	900-1000 μm	25 mm	105 m³/h	1500 g
01	900-1000 μm	10 mm	130 m³/h	500 g
02	900-1000 μm	20 mm	130 m³/h	500 g
03	900-1000 μm	25 mm	130 m³/h	500 g
04	900-1000 μm	10 mm	130 m³/h	1000 g
05	900-1000 um	20 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1000 g

**Preglednica 1:** Delovni načrt z opredelitvijo osnovnih spremenljivk poskusov

Delovna hipoteza	Velikost pelet	Razmik med DP	Pretok zraka za	Masa pelet
Oznaka		in RV	fluidizacijo	
kombinacije				
06	900-1000 μm	25 mm	130 m³/h	1000 g
07	900-1000 μm	10 mm	130 m³/h	1500 g
08	900-1000 μm	20 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1500 g
09	900-1000 μm	25 mm	130 m³/h	1500 g
P1	900-1000 μm	10 mm	156 m³/h	500 g
P2	900-1000 μm	20 mm	156 m³/h	500 g
P3	900-1000 μm	25 mm	156 m³/h	500 g
P4	900-1000 μm	10 mm	156 m³/h	1000 g
P5	900-1000 μm	20 mm	156 m³/h	1000 g
P6	900-1000 μm	25 mm	156 m³/h	1000 g
P7	900-1000 μm	10 mm	156 m³/h	1500 g
P8	900-1000 μm	20 mm	156 m³/h	1500 g
Р9	900-1000 μm	25 mm	156 m <sup>3</sup> /h	1500 g
S1	1120-1250 μm	10 mm	105 m <sup>3</sup> /h	500 g
S2	1120-1250 μm	20 mm	105 m <sup>3</sup> /h	500 g
S3	1120-1250 μm	25 mm	105 m <sup>3</sup> /h	500 g
S4	1120-1250 μm	10 mm	105 m <sup>3</sup> /h	1000 g
S5	1120-1250 μm	20 mm	105 m <sup>3</sup> /h	1000 g
S6	1120-1250 μm	25 mm	105 m <sup>3</sup> /h	1000 g
S7	1120-1250 μm	10 mm	105 m <sup>3</sup> /h	1500 g
S8	1120-1250 μm	20 mm	105 m <sup>3</sup> /h	1500 g
S9	1120-1250 μm	25 mm	105 m <sup>3</sup> /h	1500 g
T1	1120-1250 μm	10 mm	130 m <sup>3</sup> /h	500 g
T2	1120-1250 μm	20 mm	130 m <sup>3</sup> /h	500 g
Т3	1120-1250 μm	25 mm	130 m <sup>3</sup> /h	500 g
T4	1120-1250 μm	10 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1000 g
T5	1120-1250 μm	20 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1000 g
Т6	1120-1250 μm	25 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1000 g
T7	1120-1250 μm	10 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1500 g
Т8	1120-1250 μm	20 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1500 g
Т9	1120-1250 μm	25 mm	130 m <sup>3</sup> /h	1500 g
Z1	1120-1250 μm	10 mm	156 m³/h	500 g
Z2	1120-1250 μm	20 mm	156 m <sup>3</sup> /h	500 g
Z3	1120-1250 μm	25 mm	156 m <sup>3</sup> /h	500 g
Z4	1120-1250 μm	10 mm	156 m <sup>3</sup> /h	1000 g
Z5	1120-1250 μm	20 mm	156 m <sup>3</sup> /h	1000 g
Z6	1120-1250 μm	25 mm	156 m <sup>3</sup> /h	1000 g
Z7	1120-1250 μm	10 mm	156 m <sup>3</sup> /h	1500 g
Z8	1120-1250 μm	20 mm	156 m <sup>3</sup> /h	1500 g
Z9	1120-1250 μm	25 mm	156 m³/h	1500 g



#### Preglednica 2: Primerjava dveh ponovitev s frekvenčnimi diagrami pri pretoku 105 m<sup>3</sup>/h

ſ

Ponovljivost med posameznimi meritvami; m (pelet) = 1000 g, frakcija (pelet) = 900–1000 $\mu$ m				
reža [mm]	1. ponovitev	2. ponovitev		
10	200 150 100 50 0 5 5 0 5 10 15 20 25 Frekvenca [Hz]	200 150 100 50 0 0 5 10 15 20 25 Frekvenca [Hz]		
20	200 150 100 50 0 5 10 5 10 15 20 25 Frekvenca [Hz]	300 250 200 150 100 50 0 5 5 10 15 20 25 Frekvenca [Hz]		
25	5000 4000 3000 2000 1000 0 5 10 15 20 25 Frekvenca (Hz)	5000 4000 3000 2000 1000 0 5 10 15 20 25 Frekvenca (Hz)		

### Preglednica 3: Primerjava dveh ponovitev s frekvenčnimi diagrami pri pretoku 130 m<sup>3</sup>/h