

В. Л. КІРНИЙ, М. П. ЮХИМЕНКО

МЕТОДОЛОГІЯ CFD-МОДЕЛЮВАННЯ ТА АЛГОРИТМ РОЗРАХУНКУ ГОРИЗОНТАЛЬНОЇ СЕКЦІОНОВАНОЇ СУШАРКИ КИПЛЯЧОГО ШАРУ ДЛЯ ДЕГІДРАТАЦІЇ ТЕРМОЛАБІЛЬНИХ КРИСТАЛОГІДРАТІВ (НА ПРИКЛАДІ СУЛЬФАТУ ЗАЛІЗА)

Білий пігментний діоксид титану є ключовим неорганічним пігментом у світовій промисловості. Одним з основних видів твердих відходів сульфатної схеми виробництва пігментного діоксиду титану є залізо(II) сульфат гептагідрат (залізний купорос). Робота присвячена вирішенню науково-прикладної проблеми утилізації великотоннажного відходу шляхом перероблення з отриманням товарного продукту – залізо(II) сульфат моногідрату. Об'єктом дослідження є процес термічної дегідратації термолабільного залізного купоросу у горизонтальному секціонованому апараті киплячого шару. Складність організації цього процесу обумовлена низькою температурою плавлення кристалізаційної води та схильністю дисперсного матеріалу до агломерації, що унеможливує використання класичних інженерних розрахунків на базі усереднених параметрів. Метою роботи є розробка методології чисельного моделювання (CFD) та алгоритму розрахунку параметрів режиму роботи сушарки, що дозволить прогнозувати гідродинамічну картину та кінетику тепломасообміну з урахуванням зміни фізичних властивостей твердої фази. В якості інструментарію використано програму з відкритим кодом «Multiphase Flow with Interphase eXchanges». Математична модель базується на двофазному ейлер–ейлерівському підході, де газова та тверда фази описуються системами усереднених рівнянь Нав'є–Стокса. Міжфазний обмін імпульсом визначається за кореляцією Gidaspow. Замикання рівнянь твердої фази здійснюється з використанням кінетичної теорії гранулярних газів, а газова фаза розглядається в наближенні до ламінарної течії. Запропоновано та обґрунтовано двостадійний алгоритм дослідження: попереднє чисельне параметричне сканування гідродинамічних режимів для визначення меж стійкого псевдозрідження та подальший розрахунок тепломасообміну. Для забезпечення чисельної стійкості спряженої задачі запропоновано протокол поетапної ініціалізації. Ключовою особливістю розробленого алгоритму є динамічний перерахунок густини залежно від поточного вологовмісту, що визначається кінетикою реакції дегідратації. Отримані результати моделювання дають змогу виявити зони зворотної циркуляції матеріалу, локальні зони перегріву, що дозволяє уникнути необхідності проведення великої кількості дорогих фізичних експериментів. Розроблений «цифровий двійник» апарату є основою для подальшої ідентифікації кінетичних констант сушіння кристалогідратів сульфату заліза в реальних промислових умовах.

Ключові слова: залізний купорос; термічна дегідратація; киплячий шар; секціонований апарат; CFD-моделювання, TFM; MFiX

V. KIRNYI, M. YUKHYMENKO

CFD MODELING METHODOLOGY AND CALCULATION ALGORITHM FOR A HORIZONTAL SECTIONAL FLUIDIZED BED DRYER FOR DEHYDRATION OF THERMOLABILE CRYSTAL HYDRATES (A CASE STUDY OF FERROUS SULFATE)

Titanium dioxide is a key white inorganic pigment in the global industry. One of the major types of solid waste generated by the sulfate process for titanium dioxide production is iron(II) sulfate heptahydrate (ferrous sulfate). The paper addresses the applied scientific problem of large-scale waste utilization through its processing into a marketable product – iron(II) sulfate monohydrate. The object of the study is the process of thermal dehydration of thermolabile ferrous sulfate in a horizontal sectional fluidized bed dryer. The complexity of this process is due to the low melting temperature of the water of crystallization and the tendency of the dispersed material to agglomerate, which precludes the use of conventional engineering design methods based on averaged parameters. The aim of the work is to develop a CFD modeling methodology and an algorithm for calculating dryer operating parameters that enables prediction of the hydrodynamic behavior and heat- and mass-transfer kinetics, taking into account variations in the physical properties of the solid phase. The open-source software package Multiphase Flow with Interphase eXchanges was used as the simulation tool. The mathematical model is based on the Eulerian–Eulerian approach, in which the gas and solid phases are described by systems of volume-averaged Navier–Stokes equations. Interphase momentum exchange is determined using the Gidaspow drag correlation. Closure of the solid phase equations is achieved using the Kinetic Theory of Granular Flow, while the gas phase is assumed to be laminar. A two-stage research algorithm is proposed and substantiated: preliminary numerical parametric scanning of hydrodynamic regimes to determine the limits of stable fluidization, followed by heat- and mass-transfer calculations. To ensure numerical stability of the coupled problem, a staged initialization protocol is proposed. A key feature of the developed algorithm is the dynamic recalculation of solid density as a function of the instantaneous moisture content determined by dehydration reaction kinetics. The simulation results make it possible to identify solids back-mixing zones and local overheating regions, thereby reducing the need for extensive and costly physical experiments. The developed digital twin of the dryer provides a basis for further identification of kinetic constants of ferrous sulfate crystal hydrate drying under real industrial conditions.

Keywords: ferrous sulfate; thermal dehydration; fluidized bed; horizontal sectional fluidized bed dryer; CFD modeling; TFM; MFiX

Вступ. Світова індустрія виробництва пігментного діоксиду титану (TiO₂) на сучасному етапі переживає глибинну трансформацію, зумовлену посиленням міжнародних екологічних стандартів та безальтернативними вимогами концепції циркулярної економіки. Попри технологічну конкуренцію з боку хлоридного способу, сульфатна технологія зберігає близько 45% світових виробничих потужностей завдяки можливості перероблення більш дешевої та низькоякісної сировини ільменітових концентратів. Проте суттєвим недоліком цього методу залишається утворення значних обсягів побічних продуктів. Як зазначено в дослідженні [1] на прикладі промислового кластера в Уельві (Іспанія) на кожному тонну цільового

продукту TiO₂ припадає до 3–4 тонни твердих відходів. Лівову частку їх становить залізний купорос – залізо(II) сульфат гептагідрат (FeSO₄·7H₂O). Накопичення цих техногенних відходів у відвалах створює критичне навантаження на екосистеми, спричиняючи підкислення ґрунтів та забруднення підземних вод.

Водночас сучасна кон'юнктура ринку хімічної сировини демонструє докорінну зміну концепції у сприйнятті сульфату заліза: з категорії «відходів» він переходить у статус стратегічного ресурсу. Згідно з останніми аналітичними звітами [2, 3] прогнозується зростання ринку та глобального попиту на TiO₂ та сульфат заліза (CAGR на рівні 4–7% до 2035 року).

Основними перевагами та драйверами зростання частки моногідратної форми на ринку є високі транспортабельність та вміст основної речовини. Тому зневоднений продукт – залізо(II) сульфат моногідрат ($\text{FeSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$) є безальтернативною сировиною для виробництва преміксів та комбікормів у тваринництві та добавки-відновника токсичного Cr(IV) у цементній промисловості. Таким чином, розробка енергоефективних технологій термічної дегідратації залізного купоросу ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{FeSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O} + 6\text{H}_2\text{O}$) стає однією з критичних умов рентабельності всього циклу виробництва діоксиду титану сульфатним способом.

Проте реалізація процесу глибокого зневоднення у промислових масштабах наштовхується на складну фізико-хімічну природу вихідного матеріалу. Як показано в роботі [4] та підтверджено термогравіметричними дослідженнями в роботі [5], дегідратація гептогідрату не є простим випаровуванням води, а являє собою багатоступеневий процес розкладання кристалогідрата. Критичною особливістю є інконгруентна точка плавлення гептогідрату, яка становить лише 64°C . Перевищення цього температурного порогу на стадії видалення перших молекул води призводить до розчинення кристалів у власній кристалізаційній воді, утворення в'язкої суспензії та неконтрольованої агломерації матеріалу. Це явище значно ускладнює використання високотемпературних теплоносіїв у традиційних барабанних сушарках, призводячи до налипання продукту на теплообмінні поверхні та аварійних зупинок обладнання.

Розв'язання проблеми лежить у площині організації процесу в апаратах киплячого шару, які завдяки інтенсивній турбулізації твердої фази забезпечують високі коефіцієнти тепловіддачі та ізотермічність шару. Однак для термолабільних матеріалів критичним параметром стає не лише середня температура, а й розподіл часу перебування частинок в зоні реакції. Для забезпечення стабільного видалення води ($7\text{H}_2\text{O} \rightarrow 4\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{O}$) без перегріву доцільним є використання горизонтальних секціонованих апаратів, де рух матеріалу наближений до режиму ідеального витиснення (Plug Flow), а температурний режим та гідродинамічні параметри потоку (наприклад, швидкість фільтрації газу) можна регулювати індивідуально для кожної секції. Це дозволяє запобігти локальному перегріву термолабільного матеріалу, компенсувати зміну критичної швидкості псевдозрідження (v_{mf}) внаслідок зростання густини частинок у процесі зневоднення, забезпечити оптимальну рушійну силу процесу на кожній стадії дегідратації.

Проектування таких складних гетерогенних систем традиційними інженерними методами, що базується на критеріальних рівняннях та усереднених балансах, несе неприпустимо високі ризики. Класичні методики не здатні враховувати локальні гідродинамічні аномалії – застійні зони або проскок

газу, де можливий локальний перегрів та спікання матеріалу. Крім того, в процесі дегідратації істинна густина твердої маси значно змінюється (від 1890 кг/м^3 до 2980 кг/м^3), що суттєво змінює швидкість вітання частинок і умови псевдозрідження вздовж довжини апарату.

Єдиним шляхом для створення надійного промислового апарату є застосування методів обчислювальної гідродинаміки (Computation Fluid Dynamics – CFD) для створення його «цифрового двійника». Серед існуючих підходів до моделювання багатофазних потоків найбільш перспективним для інженерних розрахунків є ейлер–ейлерівський метод (Two-Fluid Model – TFM), реалізований у спеціальному відкритому коді MFIX (Multiphase Flow with Interphase eXchanges).

На відміну від універсальних комерційних пакетів, MFIX дозволяє імплементувати складні замикаючі співвідношення кінетичної теорії гранулярних газів (KTGF) для опису реології твердої фази та безпосередньо зв'язувати кінетику хімічної реакції дегідратації зі зміною гідродинамічних властивостей частинок (густина та діаметра) у реальному часі розрахунку. Тому розробка методології такого сполученого моделювання та алгоритму розрахунку горизонтальної секціонованої сушарки є актуальною задачею.

Аналіз останніх досліджень і публікацій.

Класична теорія псевдозрідження систематизована у фундаментальній праці [6] та базується на одновимірних (1D) емпіричних моделях. У рамках цього підходу апарат розглядається як сукупність ідеальних реакторів змішування (CSTR) для емульсійної фази та поршневого витиснення (Plug Flow) для бульбашкової фази. Хоча така методика залишається стандартом для попередніх інженерних оцінок, вона оперує усередненими по об'єму параметрами порозності й температури матеріалу в киплячому шарі та не здатна описати локальні гідродинамічні аномалії для горизонтальних секціонованих апаратів, де рух твердої фази визначається складною комбінацією дифузійного перемішування та конвективного перенесення між секціями. Використання 1D моделі призводить до значних похибок у визначенні часу перебування матеріалу і, як наслідок, до неточності в прогнозуванні вологовмісту готового продукту.

Сучасний рівень розвитку обчислювальної гідродинаміки дозволяє моделювати мікроструктуру гетерогенних потоків з високою роздільною здатністю. У науковій літературі конкурують два основні підходи.

Метод дискретних елементів (CFD-DEM), де рух кожної окремої частинки описується законами Ньютона, а рух газу – рівняннями Нав'є–Стокса, забезпечує найвищу фізичну точність. Як показано в роботі [7] цей метод ідеально підходить для фундаментальних досліджень явищ сегрегації та агломерації. Проте обчислювальна складність DEM зростає експоненціально з кількістю частинок. Навіть

із засуванням сучасних технік укрупнення частинок «Coarse-Graining» моделювання промислових сушарок із завантаженням у сотні кілограмів матеріалу ($Np > 10^8$) залишається за межами можливостей сучасних кластерів.

Альтернативою є ейлер–ейлерівський підхід або модель двох рідин TFM, де і газ, і дисперсний матеріал розглядаються як взаємопроникні континууми.

Для замикання системи розв'язується рівняння збереження флуктуаційної енергії твердих частинок – рівняння гранулярної температури (θ). Моделювання газової фази здійснювалось в наближенні ламінарної течії. Це припущення є обґрунтованим для щільних киплячих шарів, оскільки генерація флуктуації швидкості газу переважно зумовлена міжфазною взаємодією та хаотичним рухом твердих частинок, що врівноважується моделлю KTGF.

Критичним етапом дослідження є обґрунтування вибору програмного забезпечення та вибір CFD-платформи, здатної коректно вирішувати систему жорстких диференціальних рівнянь TFM. Проведено порівняльний аналіз трьох провідних кодів: комерційного Ansys Fluent та відкритих OpenFOAM і MFIX. У дослідженні [8], присвяченому прямому порівнянню Ansys Fluent та MFIX для задач моделювання фонтануючих шарів встановлено, що спеціалізовані обчислювальні модулі MFIX забезпечують кращу збіжність розрахунку локальної порозності шару в зонах інтенсивного барботажу. Водночас в роботі [9] у порівняльному дослідженні MFIX та OpenFOAM акцентовано увагу на тому, що MFIX має більш розвинені алгоритми для розв'язання задач із сильним зв'язком гідродинаміки та теплообміну, що саме і є визначальним для моделювання процесу сушіння.

Виходячи з цього, для виконання роботи обрано відкритий код MFIX, розроблений Національною лабораторією енергетичних технологій США (NETL) [10]. Його відкрита архітектура дозволяє імплементувати власні підпрограми (User defined functions), наприклад для опису нестандартної поведінки густини матеріалу при дегідратації, що неможливо у закритих комерційних кодах.

Виділення невирішеної частини проблеми, визначення мети та задач дослідження. Незважаючи на значний прогрес у CFD-моделюванні киплячих шарів, більшість існуючих робіт, як, наприклад, [8, 11] фокусуються на або високотемпературних процесах у вертикальних апаратах, або на гідродинаміці інертних частинок та часто спрощують процес дегідратації до елементарної хімічної реакції, швидкість якої визначається виключно температурою. Проте для кристалогідратів типу $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ такий підхід є фізично некоректний. Реальний процес переходу ($7 \rightarrow 1$) лімітується не швидкістю розриву хімічних зв'язків, а комплексом макроскопічних факторів: внутрішньою дифузією води крізь шар продукту реакції, інтенсивністю теплоперенесення до поверхні частинки та локальним

парціальним тиском водяної пари в дисперсійному середовищі. В умовах горизонтального секціонованого апарату формуються складні фронти температури та вологості, які динамічно змінюють рушійну силу процесу. Для процесу дегідратації $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, що супроводжується значною трансформацією фізичних властивостей фази, підхід уніфікованими параметрами зріджуючого агента по всій площі газорозподільчої решітки є неефективним. Він не дозволяє реалізувати адаптивний профіль швидкості газу, необхідний для утримання важчих висушених частинок у зваженому шарі без надмірного винесення дрібної фракції. Методологія врахування цих ефектів через використання ефективних кінетичних параметрів у поєднанні з моделлю змінної густини у сучасній території висвітлена недостатньо, що й зумовлює мету даного дослідження.

Метою роботи є розробка методології з CFD-моделювання та алгоритму розрахунку горизонтальної секціонованої сушарки киплячого шару, що дозволяють прогнозувати гідродинамічну структуру потоків та керувати полем рушійної сили масообміну для отримання кондиційного моногідрату сульфату заліза. Для досягнення поставленої мети вирішувались такі задачі:

1. Обґрунтувати математичну модель багатофазного середовища, здатну коректно описувати гідродинаміку киплячого шару полідисперсних частинок термолабільного кристалогідрата та імплементувати їх у середовищі MFIX на базі ейлер–ейлерівського підходу TFM із замикаючими співвідношеннями моделі KTGF;

2. Розробити чисельний алгоритм, що враховує динамічну зміну фізичних властивостей твердої фази (густина та еквівалентного діаметра) в процесі глибокої дегідратації залізного купоросу та забезпечує автоматичну адаптацію гідродинамічних параметрів шару;

3. Дослідити ефективність аеродинамічного секціонування апарату шляхом організації багатозонного введення теплоносія з індивідуальними керуванням температурою та швидкістю в кожній зоні для забезпечення стабільного режиму сушіння без використання внутрішніх механічних перегородок. Встановити можливість керування профілем температури і швидкості газу вздовж сушарки для мінімізації зон локального перегріву та зворотній циркуляції матеріалу.

Матеріали та методи дослідження. Об'єктом чисельного дослідження є процес тепломасообміну в шарі полідисперсних частинок сульфату заліза при їх горизонтальному переміщенні крізь аеродинамічно секціонований простір сушильного апарату.

Враховуючи суттєву зміну фізико-хімічних властивостей матеріалу в процесі дегідратації тверда фаза в моделі представлена як двокомпонентна суміш (Solid Mixture), що складається з вихідного компонента (Reactant) ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) та цільового продукту (Product) ($\text{FeSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$).

Дисперсна фаза залізного купоросу в моделі розглядається як сукупність сферичних частинок з еквівалентним діаметром $d_p=500$ мкм. Це значення відповідає середньозваженому розміру згідно з експериментальним розподілом, отриманим у попередніх дослідженнях [12]. Термодинамічні властивості компонентів газової фази (N_2 , O_2 , H_2O) взяті зі стандартної бібліотеки MFIX, що базується на даних [13]. Властивості твердої фази, зокрема поліноміальні залежності теплоємності від температури ($C_p(T)$) та стандартні ентальпії утворення (ΔH_p^0), задані на основі експериментальних даних [5] та довідника [14].

Математична модель розроблена в рамках моделі TFM. Система усереднених за критерієм Рейнольдса рівнянь Нав'є–Стокса збереження маси, імпульсу та енергії розв'язується спільно з транспортними рівняннями для компонентів суміші. Для замикання системи розв'язується рівняння збереження флукуційної енергії твердих частинок (рівняння гранулярної температури θ).

Математична модель базується на фундаментальних рівняннях збереження маси та імпульсу для багатофазних середовищ, сформульованих в роботі [15]. Чисельна реалізація виконана в пакеті MFIX, рівняння наведені у векторній формі, прийнятій в [10]. Рівняння нерозривності враховують міжфазний масообмін внаслідок випаровування вологи ($\dot{m}_{s \rightarrow g}$):

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_g \rho_g) + \nabla \cdot (\varepsilon_g \rho_g v_g) = \dot{m}_{s \rightarrow g}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) + \nabla \cdot (\varepsilon_s \rho_s v_s) = -\dot{m}_{s \rightarrow g}, \quad (2)$$

де ε – об'ємна частка фази, v – вектор швидкості, м/с.

Для твердої фази в рівнянні збереження імпульсу враховуються градієнт тиску, тензор напружень, гравітацію та силу міжфазного опору [10]:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s v_s) + \nabla \cdot (\varepsilon_s \rho_s v_s) = -\varepsilon_s \nabla P + \nabla \tau_s + \varepsilon_s \rho_s g + K_{gs} (v_g - v_s), \quad (3)$$

де τ_s – тензор напружень, Па, K_{gs} – коефіцієнт міжфазного обміну імпульсом, кг/(м³·с).

Рівняння енергії та транспорту компонентів описують зміни ентальпії фаз та концентрації компонентів (X_n) з урахуванням теплового ефекту реакції дегідратації (ΔH_{rxn}) та конвективного теплообміну між газом та частинками (H_{gs}) [6], [10]:

$$\varepsilon_s \rho_s C_{ps} \left(\frac{\partial T_s}{\partial t} + v_s \cdot \nabla T_s \right) = \nabla \cdot (k_s \nabla T_s) - \alpha_{gs} \left(\frac{6\varepsilon_s}{d_p} \right) (T_s - T_g) - \dot{m}_{s \rightarrow g} \Delta H_{rxn} \quad (4)$$

Для замикання системи рівнянь в середовищі MFIX обрано наступні моделі:

- міжфазний опір (Drag Model). Для розрахунку коефіцієнта міжфазного обміну імпульсом (K_{gs}) використано напівемпіричну модель Гідаспоу (Gidaspow) [15], яка забезпечує коректний опис гідродинаміки як у щільній, так і в розрідженій частинах киплячого шару. Модель являє собою комбінацію двох складових: рівняння Ергуна (Ergun) та кореляції Вена–Ю (Wen–Yu). Для щільного шару, де об'ємна частка газу $\varepsilon_g < 0,8$, застосовується рівняння Ергуна, що враховує втрати тиску при фільтрації газу крізь упакований шар частинок. Для розріджених зон, де $\varepsilon_g \geq 0,8$ (зони активного барботажу та надшаровий простір), використовується кореляція Вена–Ю, яка базується на фізиці обтікання поодиноких частинок. Такий підхід дозволяє уникнути розривності функції опору та адекватно відтворити формування та спливання газових бульбашок. Вибір цієї моделі на відмінку від Сямлала–О'Браєна (Syamlal–O'Brien) зумовлений її вищою точністю в діапазоні високих концентрацій твердої фази, що є характерним для киплячого шару;

- реологія твердої фази. В'язкість та тиск твердої фази розраховуються моделлю KTGF, яка враховує дисипацію енергії внаслідок непружних зіткнень частинок;

- міжфазний теплообмін. Інтенсивність нагріву частинок визначається коефіцієнтом міжфазної тепловіддачі (α_{gs}), який не задається константою, а розраховується динамічно в кожній комірці розрахункової сітки залежно від локальних гідродинамічних умов. Використано емпіричну кореляцію Ганна (Gunn) [16], яка верифікована для барботаєжних шарів у широкому діапазоні чисел Рейнольдса:

$$Nu_{gs} = \frac{\alpha_{gs} d_p}{k_g} = (7 - 10\varepsilon_g + 5\varepsilon_g^2) \cdot (1 + 0,7 Re_p^{0,2} Pr^{1/3}) + (1,33 - 2,4\varepsilon_g + 1,2\varepsilon_g^2) Re_p^{0,7} Pr^{1/3} \quad (5)$$

Такий підхід дозволяє коректно врахувати різке зростання інтенсивності теплообміну в зонах активного барботажу та його зниження в щільній фазі.

Процес глибокої дегідратації кристалогідрата $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ принципово відрізняється від випаровування вільної поверхневої вологи. Лімітуючою стадією процесу є не зовнішня дифузія пари крізь пограничний шар газу, що частіше описується коефіцієнтом масовіддачі (β), а кінетика розриву хімічних зв'язків та внутрішня дифузія вологи. Тому в даній роботі використано реакційно-контрольовану модель на базі рівняння Арреніуса (Arrhenius). Це дозволяє природним чином відтворити кінетику сушіння у періоди спадаючої швидкості.

Швидкість перетворення ($\dot{m}_{s \rightarrow g}$) кінетики дегідратації моделюється не як елементарна хімічна реакція, а як ефективна швидкість процесу, що лімітується теплоперенесенням та внутрішньою дифузиею і визначається як добуток кінетичної константи [17] та функції гальмування реакції вологою:

$$R = A \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{R_{univ} T_s}\right) \cdot X_{hept} \cdot \rho_s \Psi(T, X_{H_2O}), \quad (6)$$

де E_a та A – ефективні кінетичні параметри, Ψ – функція, яка відображає термодинамічне гальмування реакції при насиченні газової фази вологою.

Враховуючи високу інтенсивність оновлення сушильного агента в режимі киплячого шару, в моделі дано припущення, що процес протікає в кінетичній області, далекій від термодинамічної рівноваги, тому використано рівняння:

$$R = A_{eff} \cdot \exp\left(\frac{-E_a}{R_{univ} T_s}\right) \cdot X_{hept}, \quad (7)$$

де A_{eff} – коефіцієнт Арреніуса, 1/с.

Принциповою особливістю розробленої моделі є реалізація алгоритму, при якому густина твердої фази перераховується на кожному часовому кроці згідно з законом адитивності питомих об'ємів:

$$\frac{1}{\rho_s} = \frac{X_{hept}}{\rho_{hept}} + \frac{X_{mono}}{\rho_{mono}}. \quad (8)$$

Дане рівняння в цій моделі базується на припущенні про структурну усадку частинок, при якій втрата маси внаслідок дегідратації супроводжується пропорційним зменшенням об'єму твердої фази. Хоча такий підхід є певним спрощенням, оскільки не враховує можливе формування внутрішньої мікропористості, він коректно відображає домінуючий макроскопічний ефект зростання ефективної густини частинок у міру перетворення гептагідрату в моногідрат. Це дозволяє моделі автоматично змінювати локальну швидкість витання частинок, локальну порозність шару в міру дегідратації та відтворити гідродинамічні явища сегрегації висушеного матеріалу.

В рамках моделі KTGF температура (θ) відіграє роль, аналогічну турбулентній кінетичній енергії в однофазних потоках, описуючи флуктуаційний рух частинок. Тому додаткове використання моделей турбулентності для газової фази (типу $k-\varepsilon$), що можна часто зустріти при моделюванні киплячих шарів в програмному комплексі Ansys Fluent, є надлишковим і може призводити до штучного завищення ефективної в'язкості суміші.

Параметризація кінетичної моделі виконана на наступних засадах. Енергію активації процесу дегідратації прийнято рівною $E_a = 5,3 \cdot 10^7$ Дж/кмоль на основі узагальнення даних термогравіметричних

досліджень термічного розкладання сульфатів [5]. Тепловий ефект реакції задано як $\Delta H_{rxn} = 5,8 \cdot 10^7$ Дж/кмоль, що враховує сумарні ентальпійні витрати на розрив хімічних зв'язків у кристалічній ґратці гептагідрату та фазовий перехід води у пароподібний стан.

Моделювання кінетики побудовано на параметрах лімітуючої стадії процесу – переходу гептагідрату в моногідрат. Згідно з даними TGA [5] ця стадія характеризується найменшою константою швидкості, що становить $A_{TGA} \approx 4,6 \cdot 10^4$ 1/с.

Чисельна реалізація розрахунку проведена в програмному коді MFIX 25.3.

Граничні умови:

- для параметра «вхід газу» (Gas Inlet) нижня границя розрахункової області розділена на 10 незалежних зон (Inlet Patches) рівної довжини. Для кожної зони задано граничну умову Mass Inflow з індивідуально визначеними значеннями температури ($T_{g,i}$) та швидкості ($v_{g,i}$), що дозволяє формувати ступеневий профіль та реалізувати концепцію аеродинамічного секціонування, створюючи вздовж апарату каскад віртуальних реакторів із різним потенціалом рушійної сили сушіння. В даному дослідженні заданий спадаючий профіль швидкості газу від 0,75 м/с у зоні завантаження до 0,48 м/с у зоні вивантаження. У перших секціях підвищена швидкість необхідна для турбулізації вологого матеріалу, схильного для агломерації, у хвостових секціях зниження швидкості запобігає винесенню висушеного дрібнодисперсного продукту. Температурний профіль задано ступінчастим: максимальна температура 493 К подається в три перші секції – зону найбільшої вологості для забезпечення високої рушійної сили масообміну, в наступних секціях температура поступово знижується і вирівнюється для останніх трьох секцій до значення 443 К для запобігання термічної деструкції готового продукту – моногідрату;

- для входу/виходу матеріалу задано масову витрату для імітації безперервного режиму;

- для стінок задана умова часткового ковзання (Johnson–Jackson partial slip).

Для налаштування чисельного алгоритму чисельне інтегрування рівнянь моделі виконувалося нестационарним методом (Transient run) із застосуванням алгоритму адаптивного кроку за часом. Діапазон зміни часового кроку (Δt), заданого в межах від $1 \cdot 10^{-12}$ с до $5 \cdot 10^{-3}$ с. Алгоритм автоматично корегує величину Δt для забезпечення критерію стійкості Куранта–Фрідрікса–Леві (CFL condition), утримуючи локальне число Куранта на рівні $Co < 1$, що гарантує збіжність ітераційного процесу при розв'язанні спряженої системи рівнянь.

Просторовий крок розрахункової сітки обрано рівним $\Delta x \times \Delta y = 5 \times 5$ мм, що становить $10d_p$. Такий вибір базується на рекомендаціях [19], де встановлено, що для коректного розв'язання рівнянь TFM розмір комірки має щонайменше в 3–5 разів перевищувати діаметр частинок. Це дозволяє

уникнути чисельних артефактів та забезпечити сіткову розв'язку без надмірних обчислювальних витрат.

Геометрія розрахункової області (Computational Domain) відтворює поздовжній переріз експериментального горизонтального апарату [12, 18] (рис. 1).

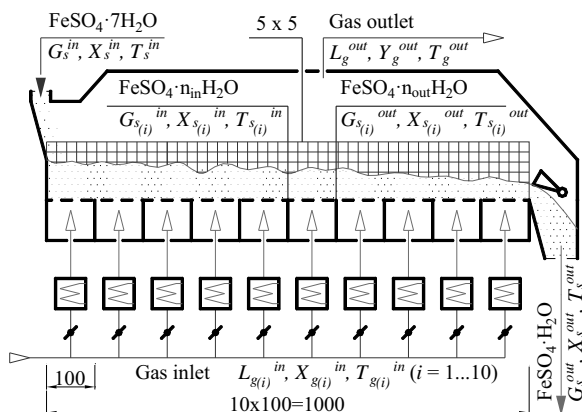


Рисунок 1 – Геометрія розрахункової області та граничні умови

Результати та обговорення. Для забезпечення чисельної стійкості розв'язку спряженої задачі «гідродинаміка–теплообмін–кінетика дегідратації» було розроблено та застосовано протокол поетапної ініціалізації розрахунку (Staged Simulation Protocol). Структура алгоритму, реалізованого в середовищі MFIX, наведена на рис. 2.

Моделювання процесу розділено на дві послідовні фази:

1. Фаза гідродинамічної стабілізації ($\tau = 0 \dots \tau_{stab}$). На цьому етапі рівняння хімічних реакцій та масообміну не активовані. Розрахунок включає лише рівняння руху та енергії. Відбувається формування стійкої структури псевдозрідженого шару, розвиток бульбашкової фази та первинний прогрів матеріалу інертним теплоносієм. Такий підхід дозволяє стабілізувати поля швидкостей, тиску та порозності, уникнути нефізичних стрибків тиску, характерних для одночасного «холодного запуску» гідродинаміки й реакційної кінетики.

2. Фаза активної дегідратації ($\tau > \tau_{stab}$). Після досягнення квазістаціонарного гідродинамічного стану активується модуль хімічної кінетики. З цього моменту зміна густини твердої фази визначається автоматично через зміну фазового складу матеріалу без використання окремих емпіричних корекцій. Система переходить у режим розрахунку цільового процесу тепломасообміну з урахуванням ендотермічного ефекту реакції.

Така послідовність забезпечує збіжність розрахунку при збереженні фізичної інтерпретованості проміжних станів.

На першому етапі результати моделювання демонструють режим стійкого бульбашкового псевдозрідження, характерного для частинок групи В

за класифікацією Гелдарта (Geldart). На рис. 3 наведено поля об'ємної частки газової фази (Void fraction). Чітко простежується зародження газових бульбашок у придонній зоні біля газорозподільника, їх коалесценція при підйомі та руйнування на вільній поверхні шару. Це свідчить про інтенсивне перемішування твердої фази та відсутність сталих застійних зон у центральній частині апарату.

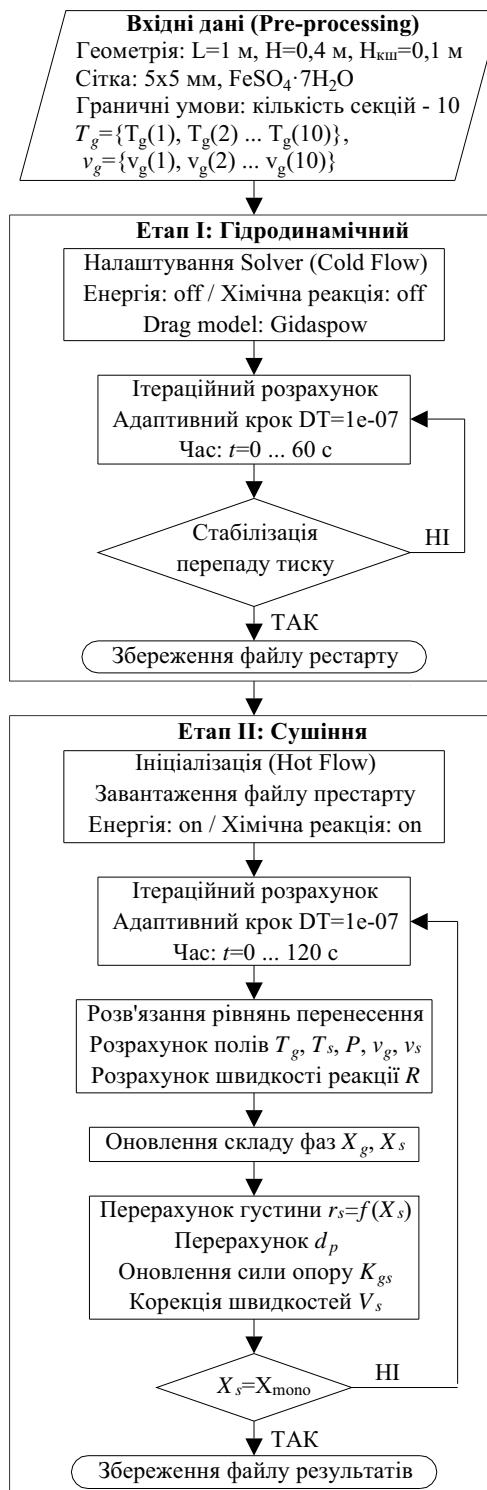


Рисунок 2 – Алгоритм розрахунку

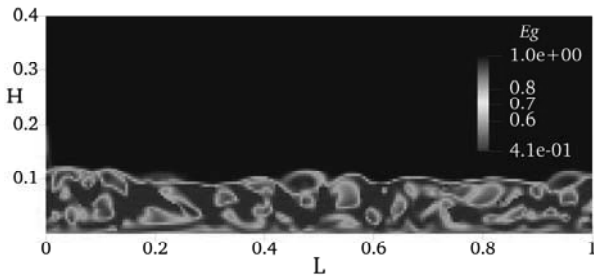


Рисунок 3 – Розподіл об'ємної частки газової фази в апараті

Оскільки апарат не містить внутрішніх механічних перегородок, гідродинамічна структура шару формується виключно за рахунок взаємодії висхідних газових потоків та горизонтального дрейфу твердої фази. Відсутність фізичних бар'єрів сприяє інтенсивному повздовжньому перемішуванню (axial mixing), що з одного боку вирівнює температурні піки, а з іншого вимагає точного налаштування швидкості газу в кожній з 10 зон подачі, щоб запобігти проскакуванню вологого матеріалу до виходу. На рис. 4, *а* представлено розподіл вертикальної складової швидкості газового потоку вздовж довжини апарату, на рис. 4, *б* – розподіл абсолютної (magnitude) швидкості газового потоку.

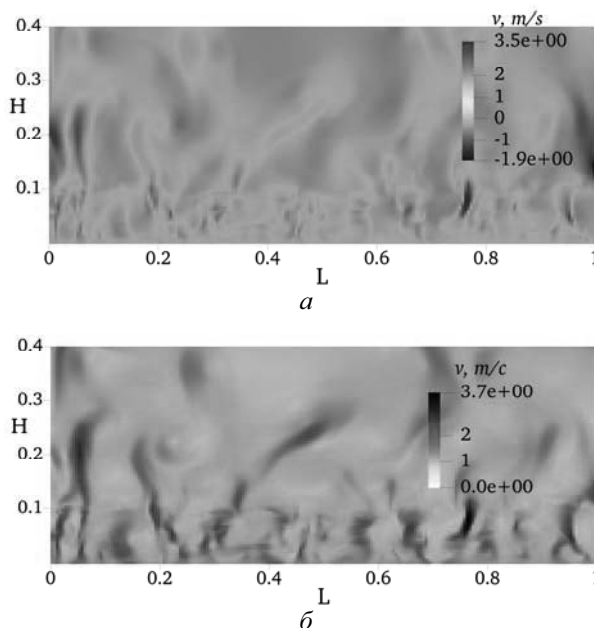


Рисунок 4 – Розподіл швидкості газового потоку:
а – вертикальна складова швидкості,
б – абсолютне значення швидкості

Суттєвим результатом є виявлення впливу зміни істинної густини матеріалу на структуру псевдозрідженого шару. У процесі дегідратації густина твердої фази зростає, що супроводжується поступовою перебудовою поля швидкості частинок. Спостерігається помірний ефект гравітаційної сегрегації: більш щільні частинки моногідрату мають тенденцію до накопичення у придонній зоні, тоді як

частинки з вищим вологовмістом частіше залучаються до циркулярних потоків у верхній частині шару (рис. 5). Даний ефект змінює локальні умови псевдозрідження та обґрунтовує доцільність використання адаптивного профілю швидкості теплоносія по довжині апарата.

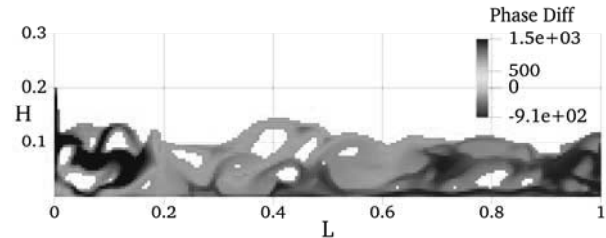


Рисунок 5 – Гравітаційна сегрегація та повздовжнє перемішування сульфатів заліза

На другому етапі (тепломасообміну та формування фронту дегідратації) картини розподілу температур та концентрації компонентів підтверджують ефективність аеродинамічного секціонування апарату, як засобу керування рушійними силами процесу сушіння.

На рис. 6 наведено розподіли температур та формування стадійного температурного профілю газової (*а*) та твердої фаз (*б*).

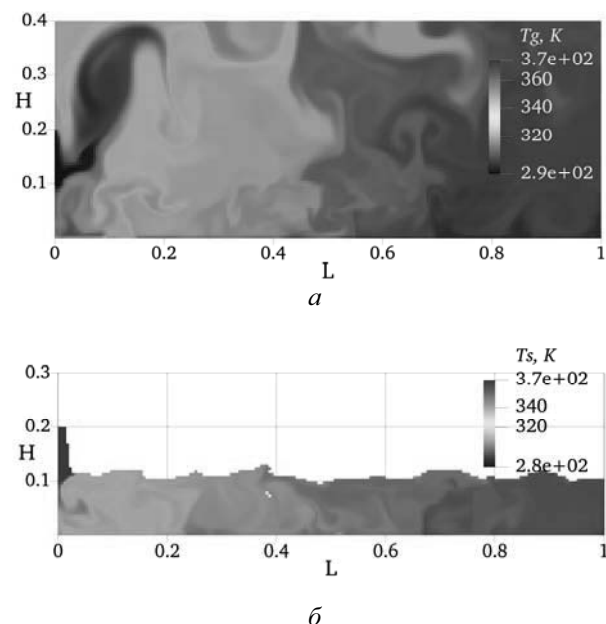


Рисунок 6 – Розподіл температури:
а – газового потоку, *б* – твердої фази

Незважаючи на відсутність фізичних стінок, індивідуальне завдання температури у зонах дозволяє створити ефект «віртуального секціонування». Уздовж довжини апарату формується виражений температурний градієнт, обумовлений одночасно дією локального підведення тепла в секціях та

ендотермічного ефекту дегідратації. У перших зонах активної дегідратації газ подається з максимально допустимою температурою, яка швидко знижується внаслідок ендотермічної реакції. В останніх зонах, де реакція майже завершена, температура шару контролюється подачею менш нагрітого газу, що запобігає перегріву готового продукту перед вивантаженням. У зоні подачі вологого матеріалу спостерігається зниження температури газу що відповідає максимальній інтенсивності міжфазного теплообміну ($\Delta T_{gs} \rightarrow \max$). Температура твердої фази T_s протягом активного випаровування залишається близькою до температури мокрого термометра та починає зростати лише після видалення основної частини кристалізаційної води. Це узгоджується з динамічною природою процесу та підтверджує коректність врахування теплового ефекту реакції в моделі.

Поля масової частки $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ (рис. 6, б) демонструють, що навіть без перегородок вдається досягти режиму наближеного до витіснення, завдяки спрямованому руху матеріалу від завантаження до вивантаження. Однак, на відміну від секціонованих перегородками апаратів, зона реакції є більш розмитою та має широкий фронт дисперсії. Це підтверджує важливість правильного вибору довжини апарату.

Для кількісної оцінки ефективності процесу було побудовано інтегральні профілі середнього вологовмісту газової (рис. 7, а) та твердої фази (рис. 7, б) вздовж довжини апарату.

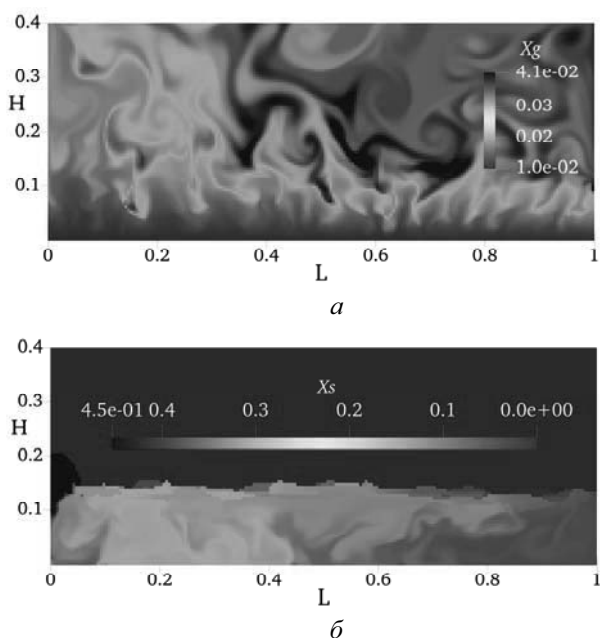


Рисунок 7 – Розподіл середнього вологовмісту: а – газового потоку, б – твердої фази

Отримані криві демонструють монотонне зменшення масової частки зв'язаної води без різких

локальних стрибків, що свідчить про відсутність зон неконтрольованого перегріву або термічного «удару» матеріалу. Додатковий аналіз вологовмісту газової фази на виході апарату у часі показав вихід системи на квазістаціонарний режим, що підтверджує досягнення динамічної рівноваги між підведенням теплоти та швидкістю дегідратації.

Висновки. У роботі вирішено актуальну науково-прикладну задачу розробки методології чисельного моделювання процесу глибокої дегідратації термолабільних кристалогідратів у горизонтальному шарі. Отримані результати дозволяють сформулювати наступні висновки:

1. Обґрунтування методології. Доведено що для коректного опису гідродинаміки полідисперсного сульфату заліза найбільш ефективним є використання TFM-підходу у середовищі MFIX із замикаючими співвідношеннями моделі KTGF. На відміну від спрощених інженерних методик цей підхід дозволяє врахувати локальні гідродинамічні ефекти: барботаж, зворотне переміщення, які критично впливають на рівномірність термічної обробки матеріалу.

2. Алгоритмічна новизна. Розроблено та реалізовано чисельний алгоритм, що інтегрує гідродинамічний розрахунок із кінетикою сушіння в умовах змінної густини твердої фази. Встановлено що зростання істинної густини матеріалу призводить до ефекту гравітаційної сегрегації моногідрату. Запропонований алгоритм автоматично адаптує параметри псевдозрідження, що дозволяє прогнозувати поведінку шара з високою фізичною достовірністю.

3. Ефективність аеродинамічного секціонування. Чисельно підтверджено працездатність концепції аеродинамічного секціонування без фізичних перегородок. Організація кількох послідовних незалежних зон подачі теплоносія з індивідуальним профілем швидкості та температури дозволяє сформувати каскадний режим сушіння. Це забезпечує підтримання максимальної рушійної сили процесу в зоні завантаження та «м'який» температурний режим в зоні вивантаження, гарантуючи отримання кондиційного продукту без ризику плавлення.

Практичне значення дослідження є у тому, що розроблена CFD-модель виконує функції «цифрового двійника» промислового апарату. Вона дозволяє мінімізувати обсяг дорогавартісних фізичних експериментів на етапі масштабування технології, забезпечити попередню оптимізацію витрати енергоносіїв та геометрію апарату.

Подальші дослідження будуть спрямовані на експериментальну ідентифікацію кінетичних констант для конкретних промислових зразків відходів та валідацію моделі на лабораторному стенді

Список літератури / References

1. A review of the commercial uses of sulphate minerals from the titanium dioxide pigment industry: the case of Huelva (Spain) / M. J. Gázquez et al. *Minerals*. 2021. Vol. 11, no. 6. P. 575. URL: <https://doi.org/10.3390/min11060575>.
2. Titanium dioxide market size to reach USD 41.81 billion by 2034. *Towards Chemical and Materials - Chemical and Materials Research & Consulting*. URL: <https://www.towardschemandmaterials.com/insight/s/titanium-dioxide-market?utm> (дата звернення: 12.02.2026).
3. Ferrous Sulfate Market Size, Share & 2030 Growth Trends Report. *Mordor Intelligence*. URL: <https://www.mordorintelligence.com/industry-reports/ferrous-sulfate-market> (дата звернення: 12.02.2026).
4. Wang T., Debelak K. A., Roth J. A. Dehydration of iron(II) sulfate heptahydrate. *Thermochimica Acta*. 2007. Vol. 462, no. 1-2. P. 89–93. URL: <https://doi.org/10.1016/j.tca.2007.07.001>.
5. Rego A. S. C. Kinetic study on thermal decomposition of sulfates: TGA experiments and modelling : PhD Thesis. Rio de Janeiro, 2022. 145 p.
6. Kunii D., Levenspiel O. Fluidization Engineering, Second Edition (Chemical Engineering Series). Butterworth-Heinemann, 1991. 491 p.
7. de Munck M. J. A., Peters E. A. J. F., Kuipers J. A. M. CFD-DEM fluidized bed drying study using a coarse-graining technique. *Industrial & Engineering Chemistry Research*. 2023. URL: <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.3c02960>.
8. Marchelli F., Di Felice R. A Comparison of Ansys Fluent and MFIX in Performing CFD-DEM Simulations of a Spouted Bed. *Fluids*. 2021. Vol. 6, no. 11. P. 382. URL: <https://doi.org/10.3390/fluids6110382>.
9. A CFD comparative study of bubbling fluidized bed behavior with thermal effects using the open-source platforms mfix and openfoam / A. Reyes-Urrutia et al. *Fluids*. 2021. Vol. 7, no. 1. P. 1. URL: <https://doi.org/10.3390/fluids7010001>.
10. MFIX Software Suite. *NETL Multiphase Flow Science*. URL: <https://mfix.netl.doe.gov> (дата звернення: 12.02.2026).
11. CFD-DEM simulation of heat transfer and reaction characteristics of pyrolysis process of MSW heated by high-temperature flue gas / M. Wang et al. *Processes*. 2024. Vol. 12, no. 2. P. 390. URL: <https://doi.org/10.3390/pr12020390>.
12. Kirnyi V., Yukhymenko M. Physical and chemical properties of iron(II) sulfate heptahydrate as factors for selecting the drying process mode in a fluidized bed apparatus. *Technology audit and production reserves*. 2025. Vol. 4, no. 3(84). P. 18–25. URL: <https://doi.org/10.15587/2706-5448.2025.335323>.
13. Burcat A., Ruscic B., Chemistry. Third millennium ideal gas and condensed phase thermochemical database for combustion (with update from active thermochemical tables). Office of Scientific and Technical Information (OSTI), 2005. URL: <https://doi.org/10.2172/925269>.
14. Lide D. R., Lide D. R. CRC Handbook of chemistry and physics, 85th edition. 8th ed. CRC, 2004. 2656 p.
15. Gidaspow D. Multiphase flow and fluidization: Continuum and kinetic theory descriptions. Boston: Academic Press, 1994. 467 p.
16. Gunn D. J. Transfer of heat or mass to particles in fixed and fluidised beds. *International Journal of Heat and Mass Transfer*. 1978. Vol. 21, no. 4. P. 467–476. URL: [https://doi.org/10.1016/0017-9310\(78\)90080-7](https://doi.org/10.1016/0017-9310(78)90080-7).
17. Levenspiel O. Chemical reaction engineering. 3rd ed. Wiley, 1998. 688 p.
18. URL: <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.5b03186>. Kirnyi V., Yukhymenko M. Development of an experimental stand with a system for controlling and regulating the parameters of the drying process of thermolabile dispersed materials in a horizontal fluidized bed apparatus (in Ukrainian). *Herald of Khmelnytskyi National University. Technical Sciences*. No. 359(6.1). P. 221–229. URL: <https://doi.org/10.31891/2307-5732-2025-359-31>.
19. Limitations on fluid grid sizing for using volume-averaged fluid equations in discrete element models of fluidized beds / C. M. Boyce et al. *Industrial & Engineering Chemistry Research*. 2015. Vol. 54, no. 43. P. 10684–10697.

Відомості про авторів / About the Authors

Кірни́й Вячеслав Леоні́дович (Kirnyi Viacheslav) – аспірант кафедри хімічної інженерії, Сумський державний університет, м. Суми, Україна, тел.: +38(093)296-18-08, ORCID: <https://orcid.org/0009-0007-2168-3882>, e-mail: v.kirnyi@pohnp.sumdu.edu.ua

Юхименко Микола Петрович (Yukhymenko Mykola) – кандидат технічних наук, доцент, доцент кафедри хімічної інженерії, Сумський державний університет, м. Суми, Україна, тел.: +38(066)835-54-93, ORCID: <http://orcid.org/0000-0002-1405-1269>, e-mail: m.yukhymenko@pohnp.sumdu.edu.ua

Дата надходження статті: 23.02.26 р.

Дата прийняття до друку: 20.03.26 р.