

**ĐẠI HỌC QUỐC GIA TP. HỒ CHÍ MINH
TRƯỜNG ĐẠI HỌC BÁCH KHOA**

NGUYỄN HỮU TRUNG

**NGHIÊN CỨU CÔNG NGHỆ BỌC HẠT ĐỂ SẢN XUẤT PHÂN URÊ
THÔNG MINH**

Ngành: Kỹ thuật Hóa học
Mã số ngành: 62520301

TÓM TẮT LUẬN ÁN TIẾN SĨ

TP. HỒ CHÍ MINH - NĂM 2022

Công trình được hoàn thành tại **Trường Đại học Bách Khoa – ĐHQG-HCM**

Người hướng dẫn 1: PGS.TS TRINH VĂN DŨNG

Người hướng dẫn 2: TS. TRẦN NGHI

Phản biện độc lập 1:

Phản biện độc lập 2:

Phản biện 1:

Phản biện 2:

Phản biện 3:

Luận án sẽ được bảo vệ trước Hội đồng đánh giá luận án họp tại

.....
.....

vào lúc giờ ngày tháng năm

Có thể tìm hiểu luận án tại thư viện:

- Thư viện Trường Đại học Bách Khoa – ĐHQG-HCM
- Thư viện Đại học Quốc gia Tp.HCM
- Thư viện Khoa học Tổng hợp Tp.HCM

MỞ ĐẦU

Phân bón thông minh (SF) hay phân bón giải phóng có kiểm soát (CRF) [1] được cấu tạo bởi màng bọc bên ngoài giúp kiểm soát được thời gian, tốc độ giải phóng chất dinh dưỡng đáp ứng nhu cầu dinh dưỡng của cây trồng. SF giúp tiết kiệm năng lượng, nguồn tài nguyên, nguồn nước, giảm lượng phát thải khí nhà kính và hạn chế tác động môi trường. Một trong những phương pháp sản xuất SF đơn giản, chi phí thấp, không làm thay đổi công nghệ sản xuất là bọc hạt phân bón bằng màng bọc phù hợp. Tuy nhiên, hầu hết các nghiên cứu hiện nay chủ yếu tập trung vào vật liệu bọc và mô hình giải phóng chất dinh dưỡng của SF. Các nghiên cứu về công nghệ, thiết bị bọc hạt ứng với vật liệu bọc cụ thể và phương pháp tính toán, triển khai công nghệ bọc hạt vào sản xuất còn nhiều hạn chế. Vì vậy, mục tiêu của đề tài là xây dựng, thiết lập mô hình toán thực nghiệm mô tả công nghệ bọc hạt để sản xuất phân urê thông minh (SUF) phù hợp với điều kiện nông nghiệp ở Việt Nam. Đối tượng chính của nghiên cứu là quy trình, công nghệ bọc hạt theo cơ chế bọc ướt bằng thiết bị đĩa quay. Trong đó, phạm vi nghiên cứu là quá trình bọc tạo SUF bằng vật liệu polyme. Các mục tiêu cụ thể như sau:

- Tìm kiếm vật liệu bọc phù hợp với SUF từ nguyên liệu rẻ tiền, dễ kiếm, có khả năng phân hủy sinh học, thân thiện với môi trường.
- Tối ưu hóa chế độ công nghệ bọc phân urê bằng thực nghiệm, phục vụ tính toán vận hành và thiết kế thiết bị bọc sản xuất SUF.
- Phân tích, đánh giá thông số công nghệ bọc hạt từ đó tiến hành thiết lập và phát triển mô hình toán mô tả công nghệ bọc hạt.
- Tiến hành khảo sát, đánh giá cơ chế và yếu tố ảnh hưởng đến quá trình giải phóng chất dinh dưỡng và định hướng ứng dụng SUF trong nông nghiệp.

Các phương pháp nghiên cứu được lựa chọn, sử dụng trong nghiên cứu bao gồm:

- Kết hợp lý thuyết với thực nghiệm để xác định yêu cầu, tính chất, đặc điểm, cấu trúc của các loại màng bọc để lựa chọn loại màng bọc phù hợp.
- Phương pháp phân tích hình ảnh để xác định kích thước, hàm phân bố, đường kính trung bình của giọt lỏng và hạt phân trong quá trình bọc hạt.

- Phương pháp quy hoạch thực nghiệm được sử dụng để nghiên cứu ảnh hưởng đồng thời của nhiều yếu tố đến quá trình bọc. Phương pháp tối ưu đa mục tiêu bằng thuật toán tìm kiếm Pareto (tìm kiếm mẫu) cũng được sử dụng để xác định các giá trị tối ưu của mô hình.
- Xác định mô hình toán thực nghiệm của quá trình bọc hạt dạng phương trình chuẩn số dựa trên phương pháp phân tích thứ nguyên, các định lý đồng dạng và định lý π của Buckingham.
- Kết hợp giữa lý thuyết và thực nghiệm để đánh giá, lựa chọn mô hình giải phóng chất dinh dưỡng, từ đó xác định thông số và sự tác động của các yếu tố đến quá trình bằng thực nghiệm và công cụ tính toán mô phỏng

Nghiên cứu có nhiều ý nghĩa khoa học thực tiễn và những điểm mới quan trọng:

- Tìm kiếm được vật liệu bọc mới từ tinh bột biến tính phốt phát (PS), poly vinyl ancol (PVA) và poly acrylic axit (PAA) có khả năng phân hủy sinh học, có các thông số công nghệ phù hợp với công nghệ bọc ướt trên thiết bị bọc đĩa quay mà các nghiên cứu trước đây chưa nhắc tới.
- Sử dụng các phương pháp, công cụ thu nhận hình ảnh như ghi hình tốc độ cao (1000 hình/giây), kỹ thuật phân tích hình ảnh để xác định được thông số quá trình phun, quá trình bọc nhanh chóng, tin cậy và hiệu quả.
- Xây dựng mô hình toán học thực nghiệm dạng phương trình chuẩn số mô tả quá trình phun dung dịch tạo giọt và quá trình bọc hạt để sản xuất SUF, ứng dụng cho tính toán, điều chỉnh, kiểm soát và tối ưu cho hệ thống sản xuất thực tế.
- Mô hình bọc hạt đã nghiên cứu có thể ứng dụng cho việc phát triển các sản phẩm khác như phân bón bổ sung vi lượng, phân bón ổn định,... và trong các lĩnh vực khác như: dược phẩm, thực phẩm và môi trường,...

CHƯƠNG 1 TỔNG QUAN NGHIÊN CỨU

Phân bón đóng vai trò quan trọng trong việc nâng cao năng suất và chất lượng nguồn lương thực, cũng là yếu tố chính tác động đến tình hình an ninh lương thực toàn cầu. Sản lượng lương thực trên thế giới phụ thuộc nhiều vào lượng phân bón sử dụng và dự báo sẽ tăng trong tương lai. Hiệu suất sử dụng phân bón của cây trồng tương đối thấp, nên một lượng lớn chất dinh dưỡng thất thoát ra ngoài, gây ô nhiễm môi trường, ảnh hưởng sức khỏe và hao phí nguồn nguyên vật liệu sử dụng. Vì vậy, việc nghiên cứu, phát triển và sử dụng phân bón thông minh được xem là lựa chọn ưu tiên trong sản xuất nông nghiệp hiện đại và bền vững [2], bởi vì lượng dinh dưỡng giải phóng của SF giúp đáp ứng một phần hoặc hoàn toàn nhu cầu dinh dưỡng của cây trồng đảm bảo đúng thời điểm, vừa đủ, hiệu quả và tránh các vùng thừa hoặc thiếu (xem Hình 1.1 và Hình 1.2).

SF được sản xuất bằng cách bọc hạt phân bón thông thường (còn gọi là nhân) bằng lớp màng bảo vệ từ vật liệu không tan, bán thấm hoặc không thấm nước với phương pháp bọc hạt trên thiết bị bọc khác nhau, giúp kiểm soát quá trình giải phóng và cung cấp chất dinh dưỡng. Quá trình giải phóng chất dinh dưỡng của SF qua màng bọc gồm 3 giai đoạn: nước xâm nhập vào trong hạt, chất dinh dưỡng hòa tan, chất dinh dưỡng khuếch tán qua màng như Hình 1.4 [2]. Quá trình này phụ thuộc vào số lượng lỗ xốp (mao quản), kích thước lỗ xốp, bề dày và cấu trúc màng bọc. Các đại lượng này chịu ảnh hưởng của tính chất vật liệu bọc, thiết bị và công nghệ bọc. Trong đó, thiết bị và công nghệ bọc hạt đóng vai trò quyết định. Tuy nhiên, hầu hết các nghiên cứu về SF tập trung vào việc phát triển vật liệu bọc, quá trình giải phóng chất dinh dưỡng và ứng dụng phân bón trong nông nghiệp, các nghiên cứu về công nghệ bọc hạt để sản xuất SF là rất ít. Đây cũng chính là phần còn thiếu hụt trong các nghiên cứu về SF hiện tại.

Trên cơ sở đó, mục đích của luận án là xây dựng mô hình toán học mô tả công nghệ bọc hạt theo phương pháp bọc ướt bằng thiết bị đĩa quay để sản xuất phân urê thông minh (SUF). Trong đó, phân urê được chọn làm đối tượng vì nó dễ tan trong nước, hiệu suất sử dụng thấp, được sử dụng nhiều trong nông nghiệp và

phần thất thoát gây tác hại đến môi trường, sức khỏe lớn hơn so với các loại phân kali, photpho. Vật liệu bọc sử dụng là polyme phù hợp với công nghệ bọc ướt. Sản phẩm SUF cũng được đánh giá và đảm bảo phù hợp với tiêu chuẩn của phân thông minh và điều kiện nông nghiệp ở Việt Nam. Tuy nhiên, công nghệ bọc hạt là một công nghệ phức tạp nhiều thông số, nên việc xây dựng mô hình toán mô tả công nghệ bọc hạt được tiến hành trên cơ sở việc phân tích, đánh giá, phát triển và xây dựng mô hình toán học cho từng quá trình, tiến tới phát triển một mô hình toán cho công nghệ bọc hạt. Vì vậy, nghiên cứu đòi hỏi phải có sự kết hợp đồng bộ của nhiều nội dung và phương pháp khác nhau, cụ thể như sau:

- Lựa chọn vật liệu polyme phù hợp dùng làm vật liệu bọc sản xuất phân urê thông minh. Vật liệu này không chỉ phải đảm bảo khả năng tạo cấu trúc màng giải phóng chất dinh dưỡng theo tiêu chuẩn của phân bón thông minh, mà còn có khả năng phân hủy sinh học, chi phí thấp, thân thiện với môi trường và phù hợp với điều kiện nông nghiệp Việt Nam.
- Lựa chọn công nghệ, thiết bị, phương pháp bọc hạt để đưa ra mô hình công nghệ bọc hạt phù hợp với vật liệu bọc tổng hợp được.
- Tiến hành lắp đặt hệ thống thiết bị bọc hạt thí nghiệm dạng đĩa quay để nghiên cứu công nghệ sản xuất SUF.
- Khảo sát các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình bọc hạt để xác định các thông số ảnh hưởng chính của mô hình và tối ưu hóa công nghệ bọc hạt bằng thực nghiệm.
- Xây dựng mô hình toán mô tả quá trình phun và quá trình bọc hạt bằng phương pháp phân tích thứ nguyên.
- Đánh giá tính chất sản phẩm, xác định cơ chế và mô hình giải phóng chất dinh dưỡng của SUF định hướng cho việc ứng dụng sản phẩm vào nông nghiệp.

CHƯƠNG 2 TỐI ƯU HÓA QUÁ TRÌNH BỌC HẠT

2.1 Vật liệu bọc và tối ưu hóa thực nghiệm

Mục tiêu của công nghệ bọc hạt nói chung, trong sản xuất SUF nói riêng là tạo màng bọc hạt ure với chi phí lượng vật liệu bọc nhỏ nhất và thời gian giải phóng chất dinh dưỡng lâu nhất, phù hợp với thời gian sinh trưởng của cây trồng. Để giải quyết tốt hai mục tiêu này trước hết cần có vật liệu bọc phù hợp, vì nó có ảnh hưởng lớn đến công nghệ bọc và tính chất của SUF.

2.1.1 Tổng quan về vật liệu bọc

Lưu huỳnh được sử dụng làm màng bọc phân bón đầu tiên, nhưng chất lượng màng bọc thấp bởi có sự xuất hiện nhiều lỗ xốp, vết nứt và lớp bọc không hoàn chỉnh [3]. Hiện tại, các loại SF sử dụng vật liệu bọc polyme được xem phổ biến nhất. Nhiều loại vật liệu polyme đã được nghiên cứu, phát triển và được chia làm hai nhóm chính: polyme tổng hợp và polyme tự nhiên. Hầu hết các polyme tổng hợp thường có giá thành cao, chi phí sản xuất lớn, không có sẵn và khó tái sử dụng. Các polyme này cũng có nhiều độc tính hoặc thường dùng các dung môi hữu cơ dễ bay hơi, dễ cháy nổ và ảnh hưởng đến sức khỏe, môi trường. Màng bọc được làm từ các polyme này cũng khó phân hủy sinh học hoặc thời gian phân hủy rất dài (trừ polyme dạng hydrogel) gây ảnh hưởng đến môi trường, đất canh tác.

Vật liệu polyme tự nhiên có nhiều ưu điểm hơn so với polyme tổng hợp để làm vật liệu bọc và được phân chia như Hình 1.12 [4]. Những vật liệu này đòi hỏi đảm bảo các tiêu chí như: ái lực đủ lớn với chất dinh dưỡng; khả năng thẩm thấu nước và dinh dưỡng thấp; ngăn chặn sự thoát dinh dưỡng ngay lập tức khỏi bề mặt màng, giải phóng dinh dưỡng theo cách đáp ứng các yêu cầu trao đổi chất của cây trồng trong khoảng thời gian xác định; có khả năng phân hủy sinh học, có sẵn, dễ kiếm và rẻ tiền. Thực tế, không thể có vật liệu đáp ứng đầy đủ các nhu cầu lý tưởng này. Tuy nhiên, những vật liệu tổng hợp dựa trên tinh bột, lignin, cellulose được cải tiến có thể đạt nhiều nhất các tính chất mong muốn [5].

Tinh bột và tinh bột biến tính được xem là loại vật liệu có nhiều ưu điểm để sử dụng làm màng bọc và là xu hướng mới trong các nghiên cứu hiện nay. Dựa trên

khả năng phân hủy sinh học tốt, tinh bột được kết hợp với các polyme không hoặc khó phân hủy để tăng sự phân hủy sinh học của vật liệu trong đất [6]. Tuy nhiên, hầu hết các nghiên cứu cho thấy tốc độ giải phóng của các chất dinh dưỡng tăng lên khi có mặt tinh bột. Điều này cho thấy một trong những hạn chế lớn nhất của tinh bột là khả năng ưa nước do sự hiện diện của các nhóm hydroxyl trong cấu trúc của chúng. Ngoài ra, các vật liệu dựa trên tinh bột có độ giòn cao, do tương tác mạnh hơn giữa các phân tử tinh bột, hạn chế sự di động của phân đoạn polyme [7]. Tính chất của tinh bột có thể cải thiện bằng cách tạo liên kết với một số polyme khác tạo ra các composite sinh học. Tuy nhiên, việc sản xuất SF bọc composite sinh học chưa được phát triển mạnh do độ phức tạp và chi phí của quá trình cao. Ngoài ra, tính ưa nước vẫn còn khá lớn, khả năng trương nở cao và đặc tính phóng thích có kiểm soát còn hạn chế. Gần đây, tinh bột sau khi được điều chỉnh bằng urê và borat có thể tạo màng bọc tương đối tốt cho SF, nhưng tính chất ưa nước và tốc độ giải phóng tương đối nhanh. Khuyết điểm này có thể được giải quyết bằng cách sử dụng tinh bột biến tính, đã được giảm bớt các nhóm hydroxyl, kết hợp với các polyme khác có chi phí thấp vào công thức vật liệu bọc.

2.1.2 Tối ưu hóa thực nghiệm

Mô hình thống kê thực nghiệm với các phương trình hồi quy dạng đa thức dễ dàng hơn để mô tả, tính toán, đánh giá và tối ưu hóa quá trình công nghệ. Các nghiên cứu xây dựng mô hình thống kê bằng quy hoạch thực nghiệm để mô hình hóa quá trình bọc trong thiết bị bọc đĩa quay được mô tả trong Bảng 2.1. Hầu hết các nghiên cứu trên được ứng dụng trong lĩnh vực dược phẩm để bọc thuốc. Trong sản xuất phân bón, quá trình bọc hạt thường chỉ được sử dụng để tạo ra phân bọc màng phục vụ cho các nghiên cứu về tính chất vật liệu bọc và quá trình giải phóng chất dinh dưỡng của sản phẩm.

Bằng phương pháp quy hoạch thực nghiệm, nghiên cứu tiến hành đánh giá lựa chọn các yếu tố ảnh hưởng chính và thiết lập phương trình hồi quy cho quá trình bọc hạt trong thiết bị bọc đĩa quay. Tối ưu đa mục tiêu cũng được sử dụng để xác định thông số tối ưu của quá trình bọc hạt với mục tiêu tối thiểu hóa tỉ lệ khối

lượng màng bọc sử dụng và tối đa hóa thời gian giải phóng dinh dưỡng của SUF (hay tối thiểu hóa tốc độ giải phóng chất urê).

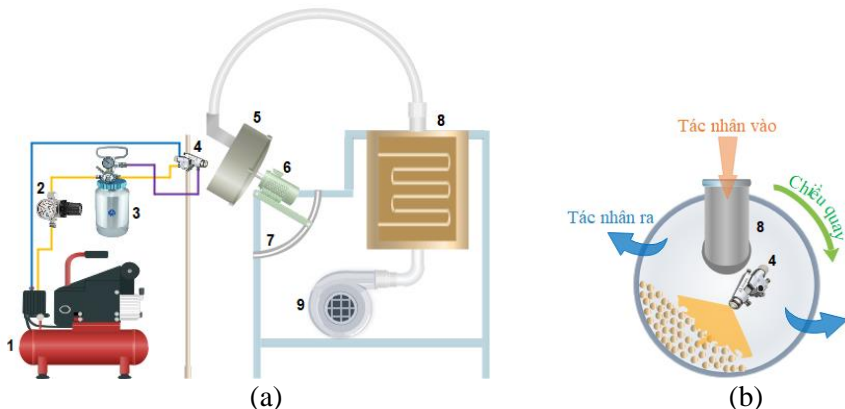
2.2 Phương pháp nghiên cứu và thực nghiệm

2.2.1 Tổng hợp và xác định thông số vật liệu bọc

Hòa 15 g tinh bột mì hoặc các loại tinh bột biến tính với 500 ml nước cất ở 75 °C, tốc độ khuấy 350 vòng/phút, trong 30 phút. Thêm 0,3 g $\text{Na}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ và 15 g PVA, khuấy trong 30 phút, với tốc độ 450 vòng/phút. Dung dịch polyme tổng hợp từ tinh bột phốt phát và PVA được trộn với PAA tỉ lệ 3:7 trong 20 phút tạo hỗn hợp polyme. Các dung dịch thu được ở từng giai đoạn và hỗn hợp polyme để nguội, xác định khối lượng riêng, độ nhớt và sức căng bề mặt tại 30 °C. Lấy 50 ml các dung dịch này đem tạo màng để xác định bề dày, khối lượng và các tính chất cơ lý của màng. Cấu trúc, tính chất của lớp màng được xác định bằng thiết bị quang phổ hồng ngoại (FTIR); thiết bị phân tích trọng lượng nhiệt (TGA) và phân tích nhiệt quét vi sai (DSC); kính hiển vi điện tử quét (SEM). Khả năng thấm nước, phân tán của màng được xác định bằng cách theo dõi khối lượng màng theo thời gian trong 200 ml nước, tốc độ khuấy 250 vòng/phút. Dụng cụ, thiết bị và phương pháp đo được mô tả cụ thể ở Phụ lục 1 và Phụ lục 2.

2.2.2 Quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay

Hệ thống thiết bị bọc hạt đĩa quay được sử dụng để sản xuất SUF có cấu tạo như sơ đồ Hình 2.1a. Hệ thống gồm hai cụm chính: cụm hệ thống phun dung dịch tạo màng bọc và cụm hệ thống đĩa quay kết hợp với hệ thống sấy thực hiện quá trình bay hơi dung môi, tạo màng bọc. Sơ đồ bố trí đầu phun, bộ phận đưa tác nhân sấy vào và ra được mô tả như hình Hình 2.1b. Thông số cấu tạo và làm việc của các thiết bị trong hệ thống bọc đĩa quay được mô tả như Bảng 2.1. Bản vẽ sơ đồ hệ thống, cấu tạo thiết bị và hình ảnh các bộ phận được mô tả ở Phụ lục 8. Sơ đồ hệ thống kết nối, phân phối khí được thiết kế theo tiêu chuẩn của nhà cung cấp Prona (Đài Loan), mô tả như Hình 2.2. Cấu tạo đầu phun và hình ảnh thiết bị trong hệ thống phun được trình bày ở Phụ lục 9.



Hình 2.1: Hệ thống bọc hạt (a) và mặt cắt đĩa quay (b) bao gồm: (1) máy nén khí, (2) van điều áp, (3) bình chứa dung dịch, (4) đầu phun tự động, (5) thiết bị bọc, (6) động cơ, (7) thước đo góc nghiêng, (8) điện trở khí gia nhiệt, (9) quạt.

Ban đầu, thiết bị bọc được sấy khô ở nhiệt độ 70 °C, trong 10 phút. Sau đó, cho 100 g hạt urê nguyên liệu đã được phân loại bằng hệ thống rây Retsch, cho vào thiết bị bọc. Dung dịch polyme tổng hợp được đưa vào bình chứa nhập liệu và tiến hành quá trình phun. Thời gian phun được điều chỉnh bằng hệ thống van điện từ, tương ứng thời gian bọc của quá trình. Lưu lượng dung dịch phun, tốc độ đĩa quay, góc nghiêng đĩa, nhiệt độ không khí, tốc độ tác nhân sấy và thời gian bọc được điều chỉnh theo các điều kiện thực nghiệm tương ứng theo Bảng 2.8. Cuối cùng, sản phẩm sau khi bọc được tiến hành sấy ở 70 °C, trong 10 phút, sau đó để nguội đến 30 °C, lấy ra đi xác định kích thước, khối lượng riêng của hạt và thời gian giải phóng urê như phần 2.2.3 trong luận án.

2.3 Kết quả và bàn luận

2.3.1 Đánh giá và lựa chọn vật liệu bọc

Các kết quả đo khối lượng riêng, độ nhớt, sức căng bề mặt của dung dịch tổng hợp ứng với các giai đoạn, được mô tả ở Bảng 2.4, phổ FTIR (Hình 2.5), phân tích TGA và DCS (Hình 2.6), và ảnh SEM (Hình 2.7) cho thấy có sự hình thành liên kết tốt giữa các phân tử tinh bột hoặc tinh bột biến tính và PVA dưới tác nhân Natri borat để tạo polyme liên kết chéo, giúp cải thiện tính chất cơ lý, hóa lý của

vật liệu bọc, làm giảm khả năng trương nở, phá hủy của màng bọc, giảm tốc độ khuếch tán chất dinh dưỡng qua màng, tăng thời gian giải phóng dinh dưỡng.

Kết quả trung bình, độ lệch chuẩn của các thông số cơ lý như lực biến dạng, ứng suất kéo, độ biến dạng, áp suất chịu nén (Bảng 2.5) và khả năng thấm nước, phân hủy của màng (Hình 2.8) cho thấy màng polyme tổng hợp từ tinh bột phốt phát (PS-g-PVA) có tính chất cơ lý và khả năng chống thấm nước, phân hủy vượt trội hơn nhưng chưa phù hợp để sử dụng làm vật liệu tạo màng bọc cho SUF. Để cải thiện khả năng thấm ướt và nâng cao chất lượng polyme, dung dịch PS-g-PVA được hòa trộn với dung dịch poly acrylic axit (PAA) tạo dung dịch hỗn hợp polyme ((PS-g-PVA)/PAA). Sự hình thành liên kết giữa hai polyme này cũng được chứng minh qua kết quả đo độ nhớt của dung dịch (độ nhớt rất cao), phổ FTIR, đường cong TGA và DCS, ảnh SEM và phổ nhiễu xạ tia X (Hình 2.9).

Để có thể đánh giá và lựa chọn vật liệu bọc hợp lý, các dung dịch polyme tổng hợp được đưa vào hệ thống thiết bị bọc đĩa quay để tiến hành bọc hạt tạo SUF. Tỷ lệ giải phóng urê của các sản phẩm trong môi trường nước và đất theo thời gian được mô tả như Hình 2.10, đều cho thấy khả năng giải phóng urê của SUF sử dụng hỗn hợp polyme (PS-g-PVA)/PAA làm màng bọc là tốt nhất. Thời gian giải phóng 70% lượng urê của SUF trong môi trường nước là khoảng 360 phút, gấp hơn 60 lần so với phân không bọc và đạt đến 25 ngày cho môi trường đất có độ ẩm 50÷60%. Đây là vật liệu phù hợp cho việc sử dụng làm màng bọc cho SUF. Ngoài ra, quá trình tổng hợp cũng đơn giản, thời gian thực hiện ngắn, chi phí đầu tư và vận hành thấp nên dễ dàng triển khai quy mô công nghiệp, ứng dụng vào trong sản xuất thực tế.

2.3.2 Tối ưu quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay

Dựa trên cơ sở phân tích, đánh giá các yếu tố ảnh hưởng, điều kiện thực nghiệm và vận hành hệ thống bọc đĩa quay, bảy yếu tố độc lập tác động đến quá trình bọc được đánh giá và lựa chọn dựa trên mô hình Plackett-Burman [8] (xem Bảng 2.8) với hàm mục tiêu là tỷ lệ khối lượng màng bọc (y_1) được tính toán theo phương trình 2.8. Phân bố kích thước và đường kính trung bình *Sauter* của hạt được xác

định bằng phương pháp phân tích hình ảnh như Hình 2.11 và Hình 2.12. Kết quả tính toán độ dày màng cũng được so sánh với phương pháp chụp ảnh SEM mặt cắt hạt (Hình 2.13) và cho thấy độ tin cậy cao, sai số 1,8%.

Dựa trên kết quả tính toán mức độ tác động như Hình 2.14, các thông số có mức ảnh hưởng lớn đến quá trình trình bọc hạt gồm: góc nghiêng của đĩa quay (x_1), lưu lượng phun (x_2) và thời gian bọc (x_3). Các yếu tố này được mã hóa thành các biến số của mô hình quy hoạch thực nghiệm tâm xoay bậc 2, 3 yếu tố (mô tả phần 2.2.4.1 của luận án) để xác định phương trình hồi quy mô tả quá trình bọc hạt. Hai hàm mục tiêu được lựa chọn là tỉ lệ khối lượng màng bọc (y_1), đặc trưng cho lượng vật liệu bọc tiêu hao và thời gian giải phóng 80% hàm lượng dinh dưỡng (y_2), thể hiện khả năng giải phóng của sản phẩm. Kết quả thực nghiệm theo biến thực và hàm mục tiêu được mô tả như Bảng 2.10.

Bảng 2.10: Kết quả thực nghiệm và tính toán theo biến thực và hàm mục tiêu

TT	x_1 (°)	x_2 (ml/phút)	x_3 (phút)	ρ_p (kg/m³)	d_p (mm)	y_1	y_2 (giờ)
1	40	1,5	30	1182,0	4,4565	0,5736	4,1016
2	60	1,5	30	1264,2	3,8998	0,1278	4,3594
3	40	2,5	30	1261,0	4,6555	0,9138	4,6289
4	60	2,5	30	1222,5	3,9593	0,1413	4,1836
5	40	1,5	60	1197,6	3,9866	0,1413	4,9453
6	60	1,5	60	1204,8	4,5463	0,7028	4,7344
7	40	2,5	60	1190,5	4,3341	0,4578	4,6875
8	60	2,5	60	1164,1	4,4727	0,5668	4,2188
9	33,18	2	45	1154,7	4,4990	0,5816	4,4648
10	66,82	2	45	1172,3	4,1411	0,2522	3,7969
11	50	1,159	45	1201,9	4,0610	0,2108	4,6875
12	50	2,841	45	1196,2	4,3492	0,4801	4,6992
13	50	2	19,77	1200,5	4,1298	0,2718	4,5469
14	50	2	70,23	1182,0	4,7310	0,8827	5,1094
15	50	2	45	1165,5	4,5674	0,6703	4,3125
16	50	2	45	1152,1	4,5227	0,6031	4,3828
17	50	2	45	1169,6	4,5410	0,6472	4,5352
18	50	2	45	1117,3	4,4920	0,5233	4,6758
19	50	2	45	1160,1	4,5569	0,6511	4,4648
20	50	2	45	1172,3	4,4618	0,5662	4,4180

Kết quả tính toán giá trị hệ số hồi quy ứng với hàm mục tiêu y_1 được trình bày trong Bảng 2.11 và y_2 trong Bảng 2.12. Các hệ số hồi quy không có ý nghĩa bị loại bỏ khỏi phương trình. Kết quả tính toán cũng cho thấy giá trị hệ số Fisher của các phương trình (F_R) nhỏ hơn giá trị hệ số Fisher tiêu chuẩn (F_T), nên các mô hình có độ tương thích. Các phương trình hồi quy dạng đa thức bậc 2 với biến thực được trình bày như phương trình (2.9) và (2.10).

$$y_1 = -0,9909 + 0,0248 \cdot x_1 + 2,5586 \cdot x_2 - 0,0731 \cdot x_3 - 0,0195 \cdot x_1 \cdot x_2 + 0,0016 \cdot x_1 \cdot x_3 - 0,00065 \cdot x_1^2 - 3,55 \times 10^{-5} \cdot x_2^2 \quad (2.9)$$

$$y_2 = -1,6641 + 0,1655 \cdot x_1 + 2,0446 \cdot x_2 + 0,0027 \cdot x_3 - 0,0240 \cdot x_1 \cdot x_2 - 0,0188 \cdot x_2 \cdot x_3 - 0,0013 \cdot x_1^2 + 0,0005 \cdot x_3^2 \quad (2.10)$$

Sự ảnh hưởng các yếu tố đến các hàm mục tiêu được biểu diễn như Hình 2.15, Hình 2.16. Bằng cách sử dụng phương pháp tối ưu hóa đa mục tiêu (phần 2.2.4.2 của Luận án), các kết quả của tối ưu đa mục tiêu phương trình (2.9) và (2.10) thỏa mãn tỉ lệ khối lượng màng bọc là tối thiểu, thời gian giải phóng 80% lượng dinh dưỡng đạt tối đa được thể hiện như Hình 2.17. Giá trị tối ưu hợp lý được lựa chọn, tại giá trị góc nghiêng (x_1) $40,97^\circ$, lưu lượng phun (x_2) 1,512 ml/phút và thời gian bọc (x_3) 59,85 phút ứng với thời gian giải phóng 80% lượng dinh dưỡng là 4,79 giờ và tỉ lệ khối lượng màng bọc 0,26.

2.4 Kết luận

Nghiên cứu đã lựa chọn và tổng hợp được hỗn hợp polyme, có khả năng phân hủy sinh học, từ tinh bột biến tính phốt phát, PVA và PAA để làm vật liệu bọc cho SUF. Trên cơ sở đó, xây dựng một hệ thống thiết bị bọc hạt đĩa quay để nghiên cứu sản xuất SUF bằng phương pháp bọc ướt. Các yếu tố của quá trình được lựa chọn, phân tích và xác định mức độ ảnh hưởng đến tỉ lệ khối lượng màng bọc từ đó lựa chọn các yếu tố ảnh hưởng chính. Các phương trình hồi quy được thiết lập từ kết quả thực nghiệm bằng phương pháp hồi quy đa biến và phân tích thống kê. Cuối cùng, giá trị tối ưu đa mục tiêu với thời gian giải phóng 80% dinh dưỡng đạt tối đa, tỉ lệ khối lượng màng bọc đạt tối thiểu đã được tính toán bằng thuật toán tìm kiếm Pareto đa mục tiêu. Giá trị tối ưu này là cơ sở cho việc tổ chức thực nghiệm và xác định mô toán mô tả công nghệ bọc hạt.

CHƯƠNG 3 XÂY DỰNG MÔ HÌNH HÓA TOÁN HỌC CÔNG NGHỆ BỌC HẠT

3.1 Mô hình vật lý quá trình bọc phân urê

Quá trình bọc xảy ra ba quá trình đồng thời: 1) Phun dịch tạo màng; 2) Chuyển động của các hạt vật liệu trên đĩa; 3) Hình thành màng bọc theo yêu cầu, như Hình 1.5. Mỗi quá trình chịu ảnh hưởng của một số yếu tố, được mô tả như Bảng 3.1. Với số thông số ảnh hưởng của công nghệ bọc hạt trong thiết bị đĩa quay là quá lớn (28 thông số) nên việc thiết lập một mô hình toán toàn diện cho công nghệ bọc hạt là rất khó khăn, nên mô hình toán công nghệ bọc hạt được xây dựng thành hai mô hình chính: mô hình toán quá trình phun dung dịch tạo màng bọc và mô hình toán quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay bao gồm quá trình chuyển động hạt và hình thành màng bọc, và quá trình nhiệt động.

3.1.1 *Quá trình phun dung dịch tạo màng*

Quá trình phun dung dịch quyết định đến khả năng tiếp xúc và liên kết của giọt lỏng với hạt vật liệu và sự hình thành màng bọc được mô tả và phân tích như phần 1.2.2.1 của luận án. Các mô hình nghiên cứu lý thuyết và thực nghiệm trước đây chủ yếu mô tả cho các quá trình phun chất lỏng là nước ở điều kiện áp suất cao, độ phân tán lớn. Chúng chưa phù hợp với quá trình phun các dung dịch tạo màng bọc có độ nhớt, độ kết dính và sức căng bề mặt lớn. Nhiều nghiên cứu gần đây đã sử dụng công nghệ, kỹ thuật và phương pháp hiện đại nhằm kết hợp lý thuyết và thực nghiệm để có thể khảo sát đầy đủ hơn các thông số quá trình phun ứng dụng cho các quá trình công nghiệp. Tuy nhiên, hầu hết nghiên cứu chưa đưa ra được mô hình toán quan hệ của các thông số quá trình phun để sử dụng cho quá trình bọc hạt và phù hợp với vật liệu bọc sản xuất SUF.

3.1.2 *Quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay*

Quá trình bay hơi của dung môi có ảnh hưởng lớn đến sự hình thành và tính chất lớp màng bọc, sự kết dính của hạt trong công nghệ bọc ướt. Quá trình này phụ thuộc vào các thông số của quá trình nhiệt động được mô tả, phân tích ở phần 1.2.2.2 của luận án. Các mô hình bán thực nghiệm bằng cách sử dụng các phương

trình cân bằng vật chất và năng lượng đã được đề xuất để thiết lập các thông số cho mô hình vật lý để mô tả quá trình nhiệt động.

Quá trình chuyển động của hạt trong thiết bị bọc hạt ảnh hưởng quyết định cấu trúc của lớp màng bọc được mô tả, phân tích và đánh giá trong phần 1.2.2.3 của luận án. Có nhiều cách tiếp cận khác nhau được sử dụng để mô hình hóa sự chuyển động của hạt và độ biến thiên khối lượng của lớp màng như: phương pháp lý thuyết đổi mới; phương pháp cân bằng tập đoàn hạt; phương pháp Monte Carlo; phương pháp phần tử rời rạc và tính toán động lực học lưu chất. Các mô hình này là các mô hình lý thuyết hoặc bán thực nghiệm, được mô tả bởi hệ các phương trình đạo hàm riêng hoặc toàn phần, nên phức tạp trong việc thiết lập phương pháp, công cụ và thời gian tính toán. Các mô hình này cũng phụ thuộc nhiều các điều kiện biên được cung cấp và một số trường hợp kết quả thu được chưa tương thích với thực nghiệm [9].

Các mô hình vật lý dựa trên cơ sở phương pháp phân tích thứ nguyên và định luật π của Buckingham giúp chuyển đổi các phương trình vi phân hoặc xây dựng các phương trình quan hệ dưới dạng các đại lượng vô thứ nguyên. Mô hình này thường được áp dụng trong các trường hợp: thực hiện khảo sát, thử nghiệm các mô hình ở các quy mô khác nhau; khắc phục hạn chế sự khác nhau về đơn vị đo lường, tính chất vật lý và điều kiện làm việc; đảm bảo sự thích ứng quy luật của mô hình với mô hình đầy đủ; đánh giá sự tương đương giữa các quá trình diễn ra trong mô hình và trong mô hình từ đó cung cấp giải pháp cải tiến và nâng cao chất lượng, năng suất và hiệu suất, giảm chi phí của quá trình [10]. Tuy nhiên, chúng vẫn hạn chế về việc lựa chọn vùng khảo sát, thông số ảnh hưởng và điều kiện thực nghiệm.

3.2 Thực nghiệm

3.2.1 Quá trình phun dung dịch tạo màng bọc

Quá trình phun được tiến hành trên hệ thống phun tự động Prona RA-100RC, có vùng phun hình tròn. Bộ phát tia laser SDLaser 303 được sử dụng để tạo hiện tượng tán xạ ánh sáng của giọt lỏng. Bộ phát được di chuyển ứng với các khoảng cách khác nhau với đầu phun để xác định kích thước vùng phun. Máy ảnh Sony

RX100 Mark V ghi nhận hình ảnh tán xạ ánh sáng của giọt lỏng với tốc độ 1000 hình/giây. Camera và đèn phát laser được chuyển đổi vị trí để có thể ghi nhận hình ảnh theo hai phương khác nhau như Hình 3.1. Toàn bộ thiết bị được đặt trong buồng kín, tối để tránh ánh sáng và sự tác động của các yếu tố môi trường. Mỗi thí nghiệm được lặp lại 4 lần đảm bảo tính chính xác của kết quả đo. Video thu được chứa khoảng 1260 ảnh/giây, được chuyển vào phần mềm MATLAB tiến hành phân tích hình ảnh và xác định kích thước của giọt lỏng và vùng phun (xem phần 3.2.1.2 và 3.2.1.3 của luận án).

3.2.2 Quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay

Quá trình bọc hạt được tiến hành trong hệ thống thiết bị bọc đĩa quay như Hình 2.1 với các thông số hoạt động theo Bảng 2.8. Các bước tiến hành thực nghiệm tương tự như mô tả ở phần 2.2.2.2 của luận án, phạm vi điều chỉnh của các thông số như phần 3.2.2 của luận án. Phân bố kích thước và đường kính trung bình hạt của nguyên liệu, sản phẩm cũng được xác định như phần 2.2.3 trong luận án.

3.3 Kết quả và bàn luận

3.3.1 Mô hình hóa toán học quá trình phun dung dịch

Kết quả thực nghiệm quá trình phun và tán xạ ánh sáng được mô tả như Hình 3.5a. Bằng cách sử dụng camera tốc độ cao, phương pháp phân tích hình ảnh, độ rộng của vùng phun và kích thước giọt được mô tả như Hình 3.5b – d và tính toán được trong Bảng 3.3. Hàm phân bố kích thước giọt thu được từ kết quả phân tích hình ảnh ở các khoảng cách phun và các điều kiện thực nghiệm khác nhau được mô tả như Hình 3.7.

Bằng phương pháp phân tích thứ nguyên (xem phần 3.1.2 của luận án), ma trận thứ nguyên của các thông số quá trình phun dung dịch được xác định như Bảng 3.4 và gồm: 4 thông số cùng thứ nguyên L, 2 thông số cùng thứ nguyên $M \cdot L^{-3}$ và 2 thông số cùng thứ nguyên $M \cdot L^{-1} \cdot T^{-1}$. Vì vậy, có 5 chuẩn số đơn giản gồm: tỉ số kích thước vùng phun và đầu phun, tỉ số kích thước giọt và đầu phun, tỉ số khối lượng riêng, độ nhớt của các dòng. Dựa trên định lý π và kết quả tính toán hệ phương trình (3.6), ba đại lượng vô thứ nguyên tính toán được như Bảng 3.5, gồm:

chuẩn số Laplace (La); chuẩn số Weber (We), và tỉ số lưu lượng dòng lỏng (Q_l) và dòng khí (Q_g).

Dựa trên các số liệu thực nghiệm, tính toán quá trình phun, giá trị các đại lượng độc lập không thứ nguyên và hàm mục tiêu (tỉ lệ kích thước giọt và đầu phun, d_d/d_{noz}) được xác định như Bảng 3.6. Hệ số và các tham số của phương trình chuẩn số được xác định bằng cách tiến hành phương pháp bình phương cực tiểu và tuyến tính hóa phương trình (3.9).

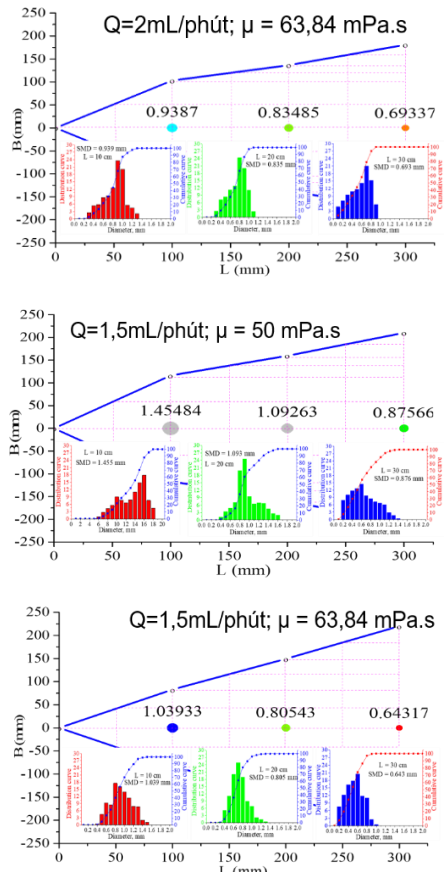
Mô hình toán quá trình phun dung dịch được xác định cụ thể như phương trình chuẩn số (3.11). Phương trình (3.11) cho thấy sự hình thành giọt trong quá trình phun chịu ảnh hưởng bởi thông số kích thước vùng phun và tính chất của dung dịch phun. Đồ thị so sánh giá trị đường kính trung bình của giọt thu

được từ kết quả thực nghiệm ($(d_d)_{exp}$) và kết quả tính ($(d_d)_{cal}$) theo phương trình (3.9) được biểu diễn như Hình 4.22 cho thấy tương đương nhau với giá trị hệ số tương quan (R^2) đạt 0,971.

$$\frac{d_d}{d_{noz}} = 1,62 \cdot We^{-0,0056} \cdot La^{0,8717} \cdot \left(\frac{L}{d_{noz}}\right)^{-0,2018} \cdot \left(\frac{B}{d_{noz}}\right)^{-0,2843} \quad (3.11)$$

3.3.2 Mô hình hóa toán học quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay

Quá trình bọc hạt trong thiết bị bọc đĩa quay bao gồm quá trình chuyển động của hạt, hình thành màng bọc và quá trình nhiệt động. Số yếu tố ảnh hưởng của quá



Hình 3.7: Kích thước vùng phun, phân bố kích thước và SMD của giọt ở các điều kiện thực nghiệm

trình bọc hạt được xác định theo Bảng 3.1 là 16. Ma trận thứ nguyên được mô tả như Bảng 3.9. Trong đó, 1 thông số không thứ nguyên là ϕ , 5 thông số cùng thứ nguyên L và 3 thông số cùng thứ nguyên $M \cdot L^{-3}$. Vì vậy, chúng ta có 7 chuẩn số đơn giản và cần phải xác định thêm 7 chuẩn số khác để thiết lập được phương trình chuẩn số. Dựa trên ma trận thứ nguyên và điều kiện giải hệ phương trình thứ nguyên, kết quả lựa chọn và tính toán, các đại lượng vô thứ nguyên mô tả quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay được lựa chọn và trình bày trong Bảng 3.10. Phương trình chuẩn số tổng quát mô tả quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay như sau:

$$\frac{d_p}{d_{core}} = C \cdot \left(\frac{H}{D}\right)^{l_1} \cdot (\phi)^{l_2} \cdot \left(\frac{d_{core}}{D}\right)^{l_3} \cdot \left(\frac{\rho_b}{\rho_a}\right)^{l_4} \cdot \left(\frac{m}{\rho_b} \cdot \frac{4}{\pi D^2 H}\right)^{l_5} \cdot Fr^{l_6} \cdot (\omega \cdot \tau_c)^{l_7} \cdot \left(\frac{\omega D}{v_a}\right)^{l_8} \cdot \left(\frac{\tau_c}{\tau_{dry}}\right)^{l_9} \cdot \left(\frac{d_d}{d_p}\right)^{l_{10}} \cdot Re^{l_{11}} \cdot Pr^{l_{12}} \cdot Sc^{l_{13}} \quad (3.13)$$

Dựa trên mô hình toán quá trình phun dung dịch tạo màng như phương trình (3.13), các thông số thực nghiệm và kết quả tính toán kích thước trung bình giọt của quá trình phun được mô tả trong Bảng 3.12. Thông số và kết quả thực nghiệm của quá trình bọc hạt xác định được như Bảng 3.13, trong đó các thông số nhiệt động của tác nhân sấy được xác định dựa bảng dữ liệu thực nghiệm theo nhiệt độ tác nhân. Những dữ liệu này được sử dụng để tính toán giá trị các đại lượng vô thứ nguyên và được trình bày như trong Bảng 3.14. Các giá trị hệ số biến thiên (CV) hay độ lệch chuẩn tương đối (RSD) của các đại lượng vô thứ nguyên được tính toán để đánh giá đánh giá sự biến đổi giá trị của các đại lượng Hình 3.10 cho thấy các đại lượng vô thứ nguyên như: H/D , d_{core}/D , ρ_b/ρ_a và Pr có hệ số biến thiên nhỏ hơn 5%. Giá trị của các đại lượng này không thay đổi hoặc thay đổi không đáng kể trong điều kiện thực nghiệm khảo sát và được xem là hằng số. Hằng số và các hệ số được xác định bằng phương pháp bình phương cực tiểu đa biến và tuyến tính hóa phương trình 3.13. Kết quả tính toán phương trình chuẩn số cho thấy hệ số tương quan (R^2) thu được là 0,959. Điều này chứng tỏ sự tương thích của mô hình toán với kết quả thực nghiệm. Phương trình chuẩn số quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay được mô tả như sau:

$$\frac{d_p}{d_{core}} = 3,732 \times 10^{-8} \cdot (\Phi)^{-0,0531} \cdot \left(\frac{m}{\rho_b} \cdot \frac{4}{\pi D^2 H} \right)^{0,0118} \cdot Fr^{-0,7574} \cdot (\omega \cdot \tau_c)^{0,0089} \cdot \left(\frac{\omega D}{v_a} \right)^{1,1429} \cdot \left(\frac{\tau_c}{\tau_{dry}} \right)^{0,1309} \cdot \left(\frac{d_d}{d_p} \right)^{-0,176} \cdot Re^{1,4644} \cdot Sc^{-1,7057} \quad (3.14)$$

Phương trình cho thấy các chuẩn số Re , Fr và tỉ số $(\omega \cdot D)/v_a$ ảnh hưởng lớn đến sự phát triển bề dày của màng bọc. Phương trình này cùng với phương trình chuẩn số mô tả quá trình phun dung dịch tạo màng phương trình (3.11) hoàn thiện mô hình toán công nghệ bọc hạt trong thiết bị đĩa quay.

3.4 Kết luận

Mô hình toán mô tả công nghệ bọc hạt trong thiết bị đĩa quay tạo phân urê thông minh được mô tả bởi hai mô hình chính: mô hình toán quá trình phun, mô hình toán quá trình bọc hạt trong thiết bị đĩa quay. Cả hai mô hình này được xây dựng bằng phương pháp phân tích thứ nguyên, định lý π và hồi quy tuyến tính đa biến.

Trong đó, các phương pháp hiện đại như ghi nhận hình ảnh, tán xạ laser, kỹ thuật phân tích hình ảnh đã được sử dụng để xác định các thông số thực nghiệm như kích thước vùng phun và kích thước giọt. Phương trình chuẩn số cho quá trình phun mô tả sự ảnh hưởng của tỉ lệ kích thước giọt và đường kính đầu phun với các chuẩn số We , La , và tỉ lệ kích thước vùng phun như phương trình (3.11). Phương trình này có vùng giới hạn: $We = 0,029 \div 0,052$; $La = 13,5 \div 20,3$; khoảng cách phun (L) $0,1 \div 0,3$ m; lưu lượng phun (Q) $1,5 \div 2,0$ ml/phút.

Phương trình chuẩn số mô tả quá trình bọc hạt bằng thiết bị bọc đĩa quay biểu diễn sự ảnh hưởng của 3 chuẩn số (Re , Fr , Sc), 6 số vô thứ nguyên đến tỉ lệ kích thước sản phẩm và nguyên liệu như phương trình (3.14). Phạm vi áp dụng của phương trình như sau: $Fr = 0,035 \div 0,069$; $Re = 1,45 \cdot 10^5 \div 2,5 \cdot 10^5$; $Sc = 0,57 \div 0,62$; khối lượng vật liệu $40 \div 60$ g; nhiệt độ sấy $60 \div 80$ °C; tốc độ quay $50 \div 70$ vòng/phút; góc nghiêng của đĩa quay $33 \div 60$ °. Mô hình này đóng vai trò quan trọng cho việc tính toán thiết kế và tối ưu hệ thống công nghệ bọc hạt ở quy mô công nghiệp.

CHƯƠNG 4 QUÁ TRÌNH GIẢI PHÓNG CHẤT DINH DƯỠNG

4.1 Tổng quan

Mục tiêu chính cho việc phát triển SF là nhằm quản lý hàm lượng dinh dưỡng đảm bảo phù hợp với sự hấp thu của cây trồng, phân tán trong đất, tránh tác động môi trường và tích tụ sau này. Theo những phân tích và đánh giá ở phần 1.1.3 của luận án cho thấy đường cong mô tả sự biến đổi hàm lượng chất dinh dưỡng của SF theo thời gian có sự tương đồng với đường cong nhu cầu của cây trồng như Hình 1.2. Vì vậy, cơ chế, mô hình toán quá trình giải phóng dinh dưỡng của SF cần phải được xác định để có thể tính toán, thiết kế một sản phẩm phù hợp với yêu cầu của loại cây trồng. Mặc dù đã có nhiều mô hình quá trình khuếch tán qua màng bọc cho phân bón thông minh được nghiên cứu và thiết lập, nhưng việc ứng dụng các mô hình này vào trong tính toán, thiết kế sản phẩm còn nhiều hạn chế. Các mô hình toán sử dụng các phương pháp số như FEM, phân tách Adomian,... đòi hỏi các công cụ, phần mềm tính toán phức tạp, nhiều tham số. Trong khi đó, các mô hình toán sử dụng biến đổi Laplace và đảo ngược Zakian thì lại đòi hỏi các kiến thức toán học chuyên sâu để thiết lập và giải mô hình.

Vì vậy, mục tiêu ở đây nhằm lựa chọn và thiết lập mô hình toán học giải phóng chất dinh dưỡng từ SUF qua màng theo cơ chế khuếch tán. Trên cơ sở mô hình toán tìm được, cùng với số liệu thực nghiệm, các thông số đặc trưng của quá trình giải phóng dinh dưỡng được xác định, đồng thời đánh giá sự ảnh hưởng của các yếu tố môi trường đến quá trình giải phóng dinh dưỡng của SUF.

4.2 Thực nghiệm

Trên cơ sở mô hình toán mô tả quá trình bọc hạt và kết quả tối ưu thu được ở các nghiên cứu trên, hệ thống thiết bị bọc hạt bằng đĩa quay được tiến hành cài đặt các thông số để sản xuất sản phẩm phân urê thông minh như phần 2.2.2.2 của luận án. Các thông số chính của hệ thống bọc được cài đặt như phần 4.2.1 của luận án. Phân bố kích thước và đường kính trung bình hạt của sản phẩm được xác định như phần 2.2.3.1 của luận án. Bề dày lớp màng bọc được tính toán theo phương

trình (2.7) Hàm lượng và tỉ lệ urê giải phóng trong môi trường nước được tiến hành và tính toán như phần 2.2.3.3 của luận án.

4.3 Kết quả và bàn luận

4.3.1 Đánh giá chất lượng sản phẩm phân urê thông minh

Tỉ lệ giải phóng chất urê từ sản phẩm SUF và các loại phân urê khác theo thời gian trong môi trường nước ở điều kiện nhiệt độ 25 °C, pH bằng 7, được xác định và biểu diễn như Hình 4.2 và cho thấy thời gian giải phóng của sản phẩm nhỏ hơn so với phân urê bọc RYNAN nhưng lớn hơn nhiều thời gian giải phóng của urê Phú Mỹ, Cà Mau và Agrotain. Điều này có thể khắc phục, điều chỉnh, cải tiến bằng cách sử dụng kết hợp giữa mô hình toán công nghệ bọc hạt và mô hình giải phóng dinh dưỡng. Đường cong mô tả quá trình giải phóng chất dinh dưỡng của sản phẩm SUF như Hình 4.3, cho thấy quá trình giải phóng chất dinh dưỡng của sản phẩm này tương thích quá trình giải phóng theo cơ chế khuếch tán chất dinh dưỡng qua màng được mô tả như Hình 1.2. Sử dụng phương pháp lập bảng phần mềm MATLAB để tính toán mô hình toán quá trình giải phóng dinh dưỡng (mô tả phần 4.2.2 của luận án) kết hợp kết quả thực nghiệm đã xác định được thông số quá trình giải phóng của SUF: thời gian trễ 3,38 giờ, thời gian ổn định 26,62 giờ, hệ số thẩm thấu của nước $1,74 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2/(\text{h} \cdot \text{Pa})$ và hệ số khuếch tán màng $1,37 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2/\text{h}$.

4.3.2 Đánh giá ảnh hưởng của các yếu tố đến quá trình giải phóng dinh dưỡng

Các yếu tố ảnh hưởng chính đến quá trình giải phóng dinh dưỡng cần được xem xét là bề dày màng, độ pH, nhiệt độ, lượng hạt sử dụng. Đồ thị biểu diễn tỉ lệ giải phóng urê theo thời gian của các sản phẩm SUF có bề dày khác nhau trong môi trường nước, ở điều kiện nhiệt độ 25°C, pH = 7 và kết quả tính toán được mô tả như Hình 4.4. Kết quả cho thấy hệ số thẩm thấu và hệ số khuếch tán chất dinh dưỡng qua màng phụ thuộc bề dày màng. Kết quả này có sự tương tự với kết quả công bố của một số các nghiên cứu trước đây [11], [12]. Lượng hạt hay khối lượng tập hợp hạt sản phẩm sử dụng trong quá trình giải phóng urê tác động không lớn đến khả năng khuếch tán chất dinh dưỡng qua màng ở 25°C, pH = 7, được biểu

diễn như Hình 4.5. Ảnh hưởng pH của môi trường đến quá trình giải phóng dinh dưỡng ở 25°C cho các hạt có bề dày trong khoảng 0,40 mm đến 0,46 mm như hình Hình 4.6. Hệ số thẩm thấu nước qua màng tăng khi môi trường khác môi trường trung tính do sự tương tác của cation hoặc anion với phân tử urê làm tăng ái lực. Tuy nhiên, hệ số khuếch tán qua màng tăng khi độ pH tăng, bởi vì thành phần liệu bọc có PAA và cấu trúc liên kết chính là liên kết este, cho nên trong môi trường kiềm các liên kết trong màng bọc bị kéo giãn là tăng kích thước lỗ xốp, tăng khả năng khuếch tán qua màng. Kết quả khảo sát sự ảnh hưởng của nhiệt độ đến quá trình giải phóng urê ở pH=7, $\delta=0,4\div 0,46$ mm, được mô tả như Hình 4.7. Nhiệt độ ảnh hưởng độ nhớt chất lỏng nên làm giảm trở lực khuếch tán do đó tốc độ khuếch tán tăng.

4.4 Kết luận

Sản phẩm phân urê bọc được sản xuất từ quá trình bọc hạt được chứng minh có những đặc điểm phù hợp với các tiêu chuẩn của phân thông minh như: đặc tính sản phẩm, cấu trúc lớp màng và cơ chế giải phóng dinh dưỡng. Sản phẩm cũng cho thấy tính vượt trội khi được so sánh với các loại phân urê thường và tương đương với SUF khác.

Cơ chế và mô hình dùng để tính toán quá trình giải phóng phân urê thông minh cũng được thiết lập gồm 3 giai đoạn nối tiếp nhau. Từ đó, kết hợp với thông số vật lý và thực nghiệm các thông số quá trình khuếch tán của SUF cũng được tính toán. Kết quả tính toán này đã giúp đánh giá được sự ảnh hưởng của các yếu tố bên trong (độ dày màng, lượng hạt) và bên ngoài (độ pH, nhiệt độ) đến quá trình giải phóng dinh dưỡng. Kết quả cho thấy quá trình khuếch tán phân tử của urê từ trong ra ngoài màng qua các mao quản của màng đóng vai trò quyết định đến tốc độ chung của quá trình giải phóng. Nó phụ thuộc vào nhiệt độ, bản chất chất tan, tính chất dung môi. Lượng chất dinh dưỡng giải phóng phụ thuộc vào mật độ và diện tích dòng khuếch tán đi qua. Diện tích này phụ thuộc vào số mao quản, kích thước mao quản, cấu trúc của màng. Ngoài ra phụ thuộc vào thời gian khuếch tán, tức bề dày màng là quãng đường khuếch tán. Cho nên những yếu tố làm thay đổi đặc điểm của lớp màng sẽ làm thay đổi quá trình giải phóng.

KẾT LUẬN

Kết quả nghiên cứu đã đạt được các nội dung chính sau:

- Nghiên cứu đã tiến hành khảo sát, tổng hợp được hỗn hợp polyme từ PS, PVA và PAA có tính chất vượt trội, phù hợp sử dụng làm vật liệu bọc cho phân SUF và điều kiện công nghệ bọc hạt.
- Các phương trình hồi quy mô tả mối quan hệ của ba yếu tố ảnh hưởng chính (góc nghiêng của đĩa quay, lưu lượng phun và thời gian bọc) đến tỉ lệ khối lượng màng bọc (y_1) như phương trình (2.9) và thời gian giải phóng 80% hàm lượng dinh dưỡng (y_2) như phương trình (2.10) được thiết lập.
- Xác định được thông số công nghệ bọc hạt bằng tối ưu đa mục tiêu với tỉ lệ khối lượng màng bọc tối thiểu bằng 0,263 g/g; thời gian giải phóng 80% dinh dưỡng tối đa là 4,79 giờ khi bọc với góc nghiêng $40,97^\circ$, lưu lượng phun 1,512 mL/phút và thời gian bọc 59,85 phút.
- Bằng phương pháp phân tích thứ nguyên đã xây dựng được mô hình vật lý mô tả quá trình phun dung dịch phân tán màng bọc như phương trình (3.11) và phương trình (3.14) mô tả quá trình bọc hạt dùng để xác định thông số sản phẩm SUF trong phạm vi làm việc được mô tả phần 3.4.
- Đánh giá khả năng giải phóng chất dinh dưỡng của SUF với các sản phẩm phân urê khác nhau và đánh giá sự ảnh hưởng thông số như độ pH, nhiệt độ, bề dày màng và lượng hạt sử dụng đến quá trình giải phóng.

Tuy nhiên, kết quả nghiên cứu vẫn còn một số hạn chế và kiến nghị như sau:

- Số yếu tố ảnh hưởng và phạm vi thực nghiệm trong mô hình quy hoạch thực nghiệm và tối ưu còn hạn chế.
- Các mô hình toán thực nghiệm quá trình phun và bọc hạt trong công nghệ bọc hạt đã được thiết lập, tuy nhiên việc ứng dụng các mô hình này chưa được nghiên cứu.
- Các phương trình tính toán quá trình giải phóng chất dinh dưỡng chỉ chủ yếu tập trung vào tính toán quá trình khuếch tán qua màng, chưa xem xét sự tác động của quá trình khuếch tán dinh dưỡng trong môi trường.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] P. Lu, M. Zhang, Q. Li, and Y. Xu, “Structure and Properties of Controlled Release Fertilizers Coated with Thermosetting Resin,” *Polymer - Plastics Technology and Engineering*, vol. 52, no. 4, pp. 381–386, 2013.
- [2] A. Shaviv, “Advances in controlled-release fertilizers,” *Advances in Agronomy*, vol. 71, pp. 1–49, 2000.
- [3] A. Shaviv, “Controlled release fertilizers,” in *IFA International Workshop on Enhanced-Efficiency Fertilizers*, 2005, no. June, pp. 1–15.
- [4] J. Chen et al., “Environmentally friendly fertilizers: A review of materials used and their effects on the environment,” *Science of the Total Environment*, vol. 613–614, pp. 829–839, 2018.
- [5] B. Azeem, K. Kushaari, Z. B. Man, A. Basit, and T. H. Thanh, “Review on materials & methods to produce controlled release coated urea fertilizer,” *Journal of Controlled Release*, vol. 181, no. 1, pp. 11–21, 2014.
- [6] N. H. Abdul Rahman, R. Razali, and N. Mansor, “The Study of Biodegradation Kinetics of Starch Based on Coating in Controlled Released Fertilizer (CRF),” *Applied Mechanics and Materials*, vol. 295–298, pp. 240–248, 2013.
- [7] B. A. J. Noordover et al., “Biobased step-growth polymers in powder coating applications,” *Progress in Organic Coatings*, vol. 65, no. 2, pp. 187–196, 2009.
- [8] R. L. Plackett and P. J. Burman, “The design of optimum multifactorial experiments,” *Biometrika*, vol. 33, no. 4, pp. 305–325, 1946.
- [9] K. Saleh and P. Guigon, “Coating and Encapsulation Processes in Powder Technology,” in *Granulation*, A. D. Salman, M. J. Hounslow, and J. P. K. Seville, Eds. Elsevier B.V., 2006, pp. 323–375.
- [10] A. M. Agrawal and P. Pandey, “Scale Up of Pan Coating Process Using Quality by Design Principles,” *Journal of Pharmaceutical Sciences*, vol. 104, no. 11, pp. 3589–3611, 2015.
- [11] A. Shaviv, S. Raban, and E. Zaidel, “Modeling controlled nutrient release from polymer coated fertilizers: Diffusion release from single granules,” *Environmental Science and Technology*, vol. 37, no. 10, pp. 2251–2256, 2003.
- [12] C. Du, D. Tang, J. Zhou, H. Wang, and A. Shaviv, “Prediction of nitrate release from polymer-coated fertilizers using an artificial neural network model,” *Biosystems Engineering*, vol. 99, no. 4, pp. 478–486, 2008.

DANH MỤC CÔNG TRÌNH ĐÃ CÔNG BỐ

Tạp chí quốc tế

1. Nguyen Huu Trung, Tran Nguyen Minh An, Mahboob Alam, Tran Nghi, Trinh Van Dung, “Empirical scale-up model of pan-coating process for controlled-release urea fertilizer production,” *Part. Sci. Techno.*, vol. 39(6), pp. 773-778, 2021. DOI: 10.1080/02726351.2020.1841348. (IF = 2.6, Q2)
2. Nguyen Huu Trung, Tran Nguyen Minh An, Mahboob Alam, Tran Hoai Duc, Tran Nghi, Trinh Van Dung, “Optimization of pan coating process for increased efficiency of controlled-release urea fertilizer,” *Mater. Plast.*, vol 57, no. 4, pp. 333-342, 2020. DOI: 10.37358/MP.20.4.5433. (IF = 0.782, Q3)
3. Nguyen Huu Trung, Tran Nguyen Minh An, Tran Nghi, Trinh Van Dung, “Modelling of the spray coating process with biodegradable polymer solution for production of controlled-release fertiliser” *Chem. Eng. Trans.*, vol. 78, pp. 91-96, 2020. 10.3303/CET207801. (IF = 1.03, Q3)
4. Nguyen Huu Trung, Doan Van Dat, Trinh Van Dung, "Synthesis of Biodegradable Mixing-Polymer as Coating Material for Controlled-Release Urea Fertilizer," *Adv. Mater. Res.*, vol. 1152, pp. 43-51, 2019. DOI: 0.4028/www.scientific.net/AMR.1152.43.

Tạp chí trong nước

1. Nguyễn Hữu Trung, Đỗ Trần Hồng Hạt, Nguyễn Thị Hà, Trần Nghi, Trịnh Văn Dũng, “Xác định thông số thực nghiệm quá trình giải phóng urê của phân urê thông minh,” *J. Sci. Technol. - IUH*, số 49, trang 143 – 151, 2021. DOI: 10.46242/jstiuh.v49i01.2511.
2. Nguyen Huu Trung, Ho Tan Thanh, Tran Nghi, Trinh Van Dung, “Experimental modelling of the spraying process polymer for creating coating layer to produce smart urea fertilizer”, *J. Tech. Educ. Sci. - HCMUTE*, vol. 56, pp. 1-6, 2020.
3. Nguyễn Hữu Trung, Trần Hoài Đức, Hồ Tấn Thành, Trần Nghi, Trịnh Văn Dũng, “Mô hình hóa thực nghiệm quá trình tạo giọt polyme trong công nghệ bọc hạt ứng dụng tạo phân urê thông minh,” *J. Sci. Technol. - IUH*, số 39B, trang 153 – 161, 2019. DOI: 10.46242/jst-iuh.v39i03.472.
4. Nguyen Huu Trung, Trinh Van Dung, “Study biodegradable polymer layers for production of smart urea fertilizer by coating pan system,” *J. Tech. Educ. Sci. - HCMUTE*, vol. 48, pp. 23-28, 2018.

5. Nguyễn Hữu Trung, Võ Thị Mai, Bùi Huy Cường, Trịnh Văn Dũng, “Mô hình và tối ưu hóa quá trình bọc hạt trên thiết bị bọc đĩa quay tạo phân Urê nhà chậm,” *J. Sci. Technol. - IUH*, số 31, trang 62 – 73, 2018.

Kỹ yếu hội nghị quốc tế

1. Nguyen Huu Trung, Tran Nguyen Minh An, Tran Nghi, Trinh Van Dung, “Modelling of the Spray Coating Process with Biodegradable Polymer Solution for Production of Controlled-Release Fertiliser” ICLCA 2019 – RCChE 2019 – ICCFB 2019, HCMC, Vietnam, 15-17 October 2019, Science and Technics publishing house, 2019, pp 22.

2. Nguyen Huu Trung, Tran Hoai Duc, Ho Tan Thanh, Trinh Van Dung, “Modeling of the polymer drop process in the coating technology by experiment for product of coated urea fertilizer,” 3rd International Conference Chemistry and Application - CAC 2019, HCMC, Vietnam, 27 May 2019, Industrial University of Ho Chi Minh City, 2019, pp.34.

Kỹ yếu hội nghị trong nước

1. Nguyễn Hữu Trung, Trần Nghi, Trịnh Văn Dũng, “Mô phỏng quá trình khuếch tán chất dinh dưỡng của phân urê giải phóng có kiểm soát,” *Hội nghị Khoa học trẻ Lần thứ hai*, TPHCM, 06-07/11/2020, Đại học Công nghiệp TP. Hồ Chí Minh, 2020, trang 78.

2. Nguyễn Hữu Trung, Trần Nghi, Trịnh Văn Dũng, “Tối ưu hóa quá trình bọc hạt bằng thiết bị đĩa quay để sản xuất phân urê giải phóng có kiểm soát,” *Hội nghị Khoa học trẻ Lần thứ hai*, TPHCM, 06-07/11/2020, Nhà xuất bản Đại học Công nghiệp TP. Hồ Chí Minh, 2020, trang 121.

3. Võ Thị Mai, Nguyễn Hữu Trung, “Mô hình hóa công nghệ bọc hạt trong sản xuất phân urê phân giải chậm,” *Hội thảo nghiên cứu khoa học và ứng dụng ngành hóa*, TPHCM, 2017, Nhà xuất bản Đại học Công nghiệp TP. Hồ Chí Minh, 2017, trang 70 - 72.

Đề tài nghiên cứu khoa học

1. Nguyễn Hữu Trung, “Nghiên cứu thiết kế, chế tạo hệ thống thiết bị và tối ưu hóa quá trình bọc hạt ứng dụng sản xuất phân urê nhà chậm,” Đề tài nghiên cứu khoa học cấp Trường năm 2017, mã số 171.4131, thời gian thực hiện 04/2017 đến 10/2018, Trường Đại học Công nghiệp Thành phố Hồ Chí Minh.