

Szkoła Główna Gospodarstwa Wiejskiego
w Warszawie

Instytut Inżynierii Mechanicznej

Mgr inż. Patryk Matkowski

Nr albumu R/2541

**Modelowanie i optymalizacja procesu
wytwarzania peletów przeznaczonych na
ściółkę**

Modeling and optimization of the production process of pellets for
litter

Rozprawa doktorska

Praca wykonana pod kierunkiem:

Promotora: Prof. dr. hab. inż. Aleksandra Lisowskiego

Promotora pomocniczego: Dr. inż. Adama Świętochowskiego

Katedra Inżynierii Biosystemów

Warszawa, 2021

Oświadczenie promotora pracy

Oświadczam, że niniejsza praca została przygotowana pod moim kierunkiem i stwierdzam, że spełnia warunki do przedstawienia tej pracy w postępowaniu o nadanie tytułu zawodowego.

Data

Podpis promotora pracy

Oświadczenie autora pracy

Świadom odpowiedzialności prawnej, w tym odpowiedzialności karnej za złożenie fałszywego oświadczenia, oświadczam, że niniejsza praca została napisana przeze mnie samodzielnie i nie zawiera treści uzyskanych w sposób niezgodny z obowiązującymi przepisami prawa, w szczególności ustawą z dnia 4 lutego 1994 r. o prawie autorskim i prawach pokrewnych (Dz. U. Nr 90 poz. 631 z późn. zm.)

Oświadczam, że przedstawiona praca nie była wcześniej podstawą żadnej procedury związanej z nadaniem dyplomu lub uzyskaniem tytułu zawodowego.

Oświadczam, że niniejsza wersja pracy jest identyczna z załączoną wersją elektroniczną.

Data

Podpis autora pracy

Streszczenie

Modelowanie i optymalizacja procesu wytwarzania peletów przeznaczonych na ściółkę
Celem badań było wyznaczenie optymalnych warunków peletowania słomy pszennej (WS) oraz mieszanek ze skrobią maniokową (CS) lub węglanem wapnia (CC) o stężeniu dodatków 2-10% wt/wt. Proces zbadano w matrycy z otwartą komorą o średnicy otworu 8 mm i wysokości 66, 76 i 86 mm. Wilgotność i temperatura materiału wynosiły, odpowiednio 10-30% w.b. i 78-108°C. Dawka dozowanego materiału wynosiła 50, 100 i 150 g. Przemieszczenie tłoka do maksymalnej siły/ciśnienia zagęszczania, przesunięcie peletu w matrycy, praca jednostkowa zagęszczania i przesuwania peletu oraz dodatkowo gęstość pojedynczego peletu były cechami dobrze charakteryzującymi proces peletowania. Do ich predykcji opracowano modele regresyjne, które zoptymalizowano, wyznaczając najkorzystniejsze zmienne sterujące i wartości funkcji celu. Optymalną gęstość pojedynczych peletów osiągnięto przy 100 g dawce materiału, 4% wt/wt stężeniu dodatków, 23% w.b. wilgotności materiału, 78 mm wysokości matrycy i 80°C temperaturze materiału. Pelety wytworzone z mieszanki WS z dodatkiem CC cechowały się większą gęstością i lepszymi parametrami wytrzymałościowymi, a pelety zgniecone lepszą absorpcją wody niż z dodatkiem CS. Optymalne warunki do formowania peletów były odmienne dla kryteriów wytrzymałościowych niż absorpcji i są ważnym wskazaniem do ich zastosowania w rzeczywistej produkcji przemysłowej.

Slowa kluczowe: peletowanie, optymalizacja, słoma pszenna, węglan wapnia, skrobia maniokowa, dawka materiału, gęstość peletu, wytrzymałość peletu, absorpcja.

Summary

Modeling and optimization of the production process of pellets for litter

This study aimed to identify the optimal conditions for pelletising wheat straw (WS) and blends with cassava starch (CS) or calcium carbonate (CC) at a 2–10% wt/wt additive ratio. The process was investigated in a die with an open chamber having an opening diameter of 8 mm and heights of 66, 76, and 86 mm. The moisture and temperature of the material were 10–30% w.b. and 78–108 °C, respectively. Single doses were amounted 50, 100, and 150 g. The piston displacement at maximum agglomeration pressure, pellet shift in the die, specific compaction work, specific work for pellet shifting, and additional single pellet density were suitable characterising features of the pelletising process. Regression models were developed for the prediction of the features; these models were optimised by determining the most favourable control variables and target function values. The optimal single pellet density was achieved at 100 g dose, 4% wt/wt additive ratio, 23% w.b. moisture content, 78 mm die height, and 80 °C material temperature. The pellets made of WS blended with CC additive were characterised by higher density and better strength parameters and the compressed pellets were characterised by better water absorption than those with CS. Optimal conditions for pellet formation were different for strength criteria than for absorption criteria and are an important indication for their use in actual industrial production.

Keywords: pelletising, optimization, wheat straw, calcium carbonate, cassava starch, material dose, pellet density, pellet strength, absorption.

Wykaz publikacji stanowiących pracę doktorską:

Publikacja 1

Matkowski P., Lisowski A., Świętochowski A. Pelletising pure wheat straw and blends of straw with calcium carbonate or cassava starch at different moisture, temperature, and die height values: Modelling and optimisation. *Journal of Cleaner Production.* 2020; 272:1-11. doi:10.1016/j.jclepro.2020.122955.

MNiSW: 140 pkt, IF 7,246 (2019), IF 5-letni: 7,491

Udział w publikacji: 90%

Publikacja 2

Matkowski P., Lisowski A., Świętochowski A. Characterisation of Wheat Straw Pellets Individually and in Combination with Cassava Starch or Calcium Carbonate under Various Compaction Conditions: Determination of Pellet Strength and Water Absorption Capacity. *Materials.* 2020;13(19):1-15. doi:10.3390/ma13194375

MNiSW: 140 pkt, IF 2,972 (2018), IF 5-letni: 3,532

Udział w publikacji: 90%

Publikacja 3

Matkowski P., Lisowski A., Świętochowski A. Effect of compacted dose of pure straw and blends of straw with calcium carbonate or cassava starch on pelletising process and pellet quality. *Journal of Cleaner Production.* 2020; 277:1-12. doi:10.1016/j.jclepro.2020.124006.

MNiSW: 140 pkt, IF 7,246 (2019), IF 5-letni: 7,491

Udział w publikacji: 90%

Suma punktów z listy czasopism punktowanych MNiSW: 420 pkt.

Suma punktów Impact Factor: 17,464

Suma punktów Impact Factor 5- letni (wg Web of Science): 18,514

Spis treści

Wstęp.....	11
1. Stan wiedzy o peletach przeznaczonych na śiółkę.....	12
2. Cel badań i hipotezy badawcze.....	16
3. Materiał i metody badawcze	17
3.1. Materiał badawczy	17
3.2. Metody badawcze.....	17
3.2.1. Wilgotność materiału i przygotowanie próbek.....	17
3.2.2. Rozkład wymiarów cząstek.....	17
3.2.3. Proces peletowania	18
3.2.4. Właściwości fizyczne peletów	21
3.2.5. Parametry wytrzymałościowe peletów	21
3.2.6. Absorbcja wody.....	22
3.2.7. Analiza statystyczna	22
3.2.8. Optymalizacja warunków zagęszczania	23
4. Syntetyczne omówienie publikacji wchodzących w skład rozprawy doktorskiej	24
4.1. Publikacja 1	24
4.2. Publikacja 2	30
4.3. Publikacja 3	36
5. Wnioski	44
6. Spis piśmiennictwa	45

Wstęp

Wióry z drewna są aktualnie podstawowym materiałem śródką w przemyśle drobiarskim. Wykorzystuje się duże ilości wiórów na śródkę a stale rosnący popyt na drób sprawił, że wióry stały się coraz trudniejsze do pozyskania i droższe. Wyboru innych materiałów śródkowych dokonuje się na podstawie ich zdolności pochłaniania wilgoci. Słoma pszenna jako śródką może mieć negatywne wpływ na dobrostan zwierząt, zwłaszcza na ich podeszwę stóp (Cengiz et al., 2011). Jakość śródki wpływa bezpośrednio na stopień wykorzystania paszy oraz osiąganie potencjału genetycznego (Huang et al., 2009). Wydajność śródki zależy od wielu właściwości, takich jak zdolność absorpcji wody, zmniejszenia zawartości wilgoci, odporności na zbrycling i odpowiedniego rozmiaru częstek. Ptaki na wczesnym etapie chowu spożywają śródkę. Spożywanie śródki przez drób może przynieść korzyści zdrowotne dzięki zwiększeniu aktywności i wielkości żołądka (Malone and Gedamu, 1995).

Uwzględniając wymagania i ograniczenia tradycyjnych substratów stosowanych na śródkę poszukuje się materiałów alternatywnych, o większym potencjale dostępności, zwłaszcza w warunkach klimatu Polski. Jednym z takich materiałów jest słoma pszenna, która w czystej postaci i w formie pociętej stwarza wspomniane ryzyko dla ptaków. Jedną z technologii, zmniejszającej niekorzystne właściwości fizyczne pociętej słomy jest jej speletowanie i zgniecenie peletów w kierunku promieniowym. Nie wiadomo jednak jak peletowanie słomy wpływa na jej zdolność do pochłaniania wody, gdy użyjemy jej jako śródkę (Kheravii et al., 2017). Zdolność pochłania wody przez słomę można osiągnąć przez dodatki, takie jak węglan wapnia lub mąka maniokowa, cechujące się lepszymi właściwościami absorpcyjnymi niż słoma. To skłania do kolejnego pytania, w jakiej ilości dodatek węglanu wapnia lub mąki maniokowej skutecznie zwiększy absorpcję cieczy, przy zachowaniu wymaganych właściwości podłożu. Pytania te oraz próba odpowiedzi o optymalne warunki peletowania stanowiły stwierdzenie luki w wiedzy naukowej i były genezą do podjęcia badań oraz próby rozwiązania problemu naukowego i wskazania praktycznych zaleceń technologicznych wytwarzania peletów z dodatkami przeznaczonymi na śródkę.

1. Stan wiedzy o peletach przeznaczonych na ściółkę

Wymagania dla ściółki przeznaczonej do utrzymywania ptaków są duże i zróżnicowane. Dobra ściółka powinna zachowywać się jak bibuła, wchłaniając wilgoć, zapewniając jednocześnie suche, wygodne podłożę, gdzie ptaki mogą się kąpać w ściółce i odpoczywać. Powinna być zatem o słabej przewodności cieplnej, zachować ciepło i działać jako izolacja, powinna być zdolna do szybkiego schnięcia oraz miękka i ściśliwa, chłonna i sprężysta. Ponieważ ptaki zjadzą trochę ściółki, to materiał podstawowy musi być wolny od wszelkich zanieczyszczeń, chemikaliów, organizmów chorobotwórczych i pleśni, które mogą szkodzić zdrowiu ptaków (Miller, 2004).

Materiał ściółki powinien być wolny od kurzu, z czego nie więcej niż 15% powinno się składać z części mniejszych niż 2 mm. Należy unikać materiałów, które rozpadają się na drobne cząstki, zwiększaając w ten sposób zawartość pyłu. Ściółka nie powinna się sklejać, zbrylać i formować w warstwy (Miller, 2004).

Intersującym podejściem do alternatywnego materiału ściółkowego jest peletowanie słomy, które było przedmiotem ostatnich badań (Baxter et al., 2018; Kheravii et al., 2017). Sama idea nie jest nowa, gdyż Malone i Gedamu w 1995 zastosowali peletowaną słomę z dodatkiem lepiszczy (Malone and Gedamu, 1995). Pelety ulegają degradacji do ciemnobrązowego, pochłaniającego wilgoć materiału, który ma podobną konsystencję do trocin (Baxter et al., 2018). Przeprowadzono badania porównawcze speletowanej słomy, pociętej słomy pszennej, wiórów drzewnych, plew ryżowych i rozdrobnionego papieru jako materiał na ściółkę (Kheravii et al., 2017). Ptaki utrzymywane na speletowanej słomie pszennej miały mniejszączęstość występowania uszkodzeń poduszek stopy niż te na pociętej słomie i rozdrobnionym papierze w 24 dobę. Nie stwierdzono różnicy w wilgotności między rozdrobnionym papierem, wiórami drzewnymi, speletowaną słomą a plewami ryżowymi. Na podstawie wyników badań badacze wskazali, że peletowana słoma pszenna ma potencjalne korzyści jako materiał ściółkowy dla brojlerów. Wiele wyników badań sugeruje, że rodzaj ściółki i mieszanki ściółki mają wpływ na wydajność i dobrostan ptaków (Huang et al., 2009; Youssef et al., 2010). Jednakże inne wyniki badań pokazują, że rodzaj ściółki nie miał wpływu na osiągnięcia i dobrostan (Hafeez et al., 2009; Monira et al., 2003).

Ponieważ wyniki badań nie są jednoznaczne, a peletowana słoma pszenna ma pozytywny wpływ na wydajność i dobrostan brojlerów we wczesnym wieku (Kheravii et al., 2017) to wskazuje to na potrzebę dokładniejszego zbadania warunków wytwarzania peletów i wpływu dodatków poprawiających warunki procesu zagęszczania i jakości ściółki z peletowanej słomy.

Dodanie obojętnych materiałów, na przykład związków wapnia (wodorotlenek wapnia, węglan wapnia) poprawia plastyczność substancji organicznej, która ma ulec granulowaniu i ułatwia uzyskanie form (Sedláček et al., 2007), a niewielki dodatek takiego materiału często znacznie zmniejsza zapylenie.

Proces granulowania prowadzi jednak do wiązania wody zawartej w materiale roślinnym (Lisowski et al., 2013). Ponadto dodanie gipsu do ściółki obniżyło jej pH, z powodu wytrącania się węglanu wapnia z wapnia pochodzącego z gipsu (Hammes et al., 2003). Dodanie węglanu wapnia do słomy może zwiększyć mineralizację N i sprzyjać tworzeniu NH₄⁺ przez zwiększenie aktywności ureazy i buforowanie przeciwko dużemu wzrostowi pH (Burt et al., 2018). Jest to kolejna wskazówka inspirująca podjęcie badań nad wytwarzaniem peletów z mieszanki słomy z dodatkiem węglanu wapnia.

Cząsteczki węglanu wapnia tworzą specjalne skupiska, a następnie łączą się losowo z większymi agregacjami (Xu et al., 2014). Wskazuje to, że węglan wapnia ma zdolność łączenia się z innymi cząsteczkami i sprawia, że wiązania z nimi są bardzo trwałe. Węglan wapnia wiąże wodę z biomasy i pozwala na aglomerację materiałów o wyższej zawartości wilgoci bez konieczności suszenia.

Mimo wielu badań z zakresu dodatków ciągle są poszukiwane substancje, które poprawią jakość peletów i brakuje pełnej wiedzy jakie dodatki lub jakie mieszanki mogą być wykorzystane dla surowego materiału biomasy (Tarasov et al., 2013), a zwłaszcza w kontekście peletów przeznaczonych na ściółkę. Właściwości fizykochemiczne biomasy i dodatków mogą mieć różny wpływ na gęstość upakowania cząstek i wytrzymałość peletów, która wynika z trwałości wiązań między cząstkami (Mani et al., 2003). Składniki nieorganiczne o małej masie cząsteczkowej mogą odrywać mniejszy wpływ na właściwości mechaniczne peletów, ale jony wapnia mogą sieciować funkcjonalność polisacharydów kwasu karboksylowego (Braccini and Pérez, 2001).

Do właściwości materiałów, które wpływają na proces peletowania należą rozkład wymiarów cząstek (PSD) (Labbé et al., 2020; Lisowski et al., 2020), wilgotność (Frodeson et al., 2019; Lisowski et al., 2019), zawartość ligniny (Berghel et al., 2013), gęstość objętościowa (Chevanan et al., 2010), wskaźnik płynności i spójność (Stasiak et al., 2018, 2017), współczynnik tarcia wewnętrznego i zewnętrznego (Rossouw et al., 2003), rodzaj ekstraktów (woski, garbniki, terpeny) (Roffael, 2016), rodzaj i udział dodatków (Xia et al., 2019).

Trwałość i wytrzymałość aglomeratu zależy także od ilości materiału dostarczanego do komory matrycy. Badania dotyczące zróżnicowanej dawki materiału jednorazowo zagęszczanej były rzadziej prowadzone. Masa pojedynczej dawki zależy od rodzaju materiału

i warunków peletowania. W dostępnej literaturze badacze wskazują na wstępne badania, na podstawie których ustalają masę dawki, biorąc pod uwagę jakość peletów jako kryterium oceny procesu i produktu. Masa dawki biomasy zawiera się w szerokim zakresie 0,2-1,2 g. Brakuje wiedzy o wpływie jednorazowo zagęszczanej dawki biomasy na jakość peletów wyrażaną przez ich trwałość lub wytrzymałość. Ta luka w wiedzy dotyczy dodatkowo mieszanek materiałów, które mogą być przeznaczone do zagęszczania i wytwarzania peletów, które po zgnieceniu mogą być ściołką dla ptaków.

W rzeczywistych warunkach produkcyjnych występują dodatkowo losowe czynniki, które zakłócają powtarzalność procesu i utrudniają prawidłowe wnioskowanie o czynnikach wpływających na peletowanie. W dostępnej literaturze są zaprezentowane wyniki badań, głównie z matrycami z zamkniętą komorą zagęszczania, a mniej jest badań przeprowadzonych z matrycą z otwartą komorą zagęszczania (Frodeson et al., 2018). Zagęszczanie materiałów w matrycy z otwartą komorą lepiej odzwierciedla rzeczywisty proces peletowania, pod warunkiem utrzymania ciśnienia zagęszczania i temperatury matrycy, która typowo jest między 100°C and 130°C (Nielsen et al., 2009). Osiągnięcie ciśnienia zagęszczania 115-300 MPa (Whittaker and Shield, 2017) jest wynikiem ciśnienia wstecznego (Frodeson et al., 2019), które jest konsekwencją właściwości materiału, rozwijanego tarcia wewnętrznego między częstками, ale głównie między powierzchnią zewnętrzną aglomeratu i otworu matrycy, a także wysokości (grubości) matrycy. Rozwijane tarcie wpływa nie tylko na zwiększenie ciśnienia, ale także wzrost temperatury matrycy. Ciepło z rozgrzanej matrycy dyfunduje do częstek materiału, którego gradient zależy od rodzaju i wilgotności materiału. Materiał pod wpływem temperatury zmienia właściwości fizyczne, a zamiany struktury materiału zależą odwrotnie od wilgotności (Lisowski et al., 2017). Mamy zatem złożone sprzężenia zwrotne, których wyjaśnienie jest ważne, aby lepiej zrozumieć w jaki sposób i dlaczego różne materiały wytwarzają różne przeciwcisnienie i tarcie.

Ocenę jakości peletów można przeprowadzić za pomocą różnych wskaźników. Ze względu na cel pracy ważne są dotychczasowe rozważania, które uwzględniają relacje między parametrami wskazującymi efekt produkcji peletów z ich zdolnością absorpcji wody. Dotyczy to również peletów energetycznych, ale dla nich zdolność absorpcji wody lub wilgotni powinna być jak najmniejsza.

Absorpcaja wody przez biomasę jest procesem wynikania cząsteczek, atomów lub jonów a adsorpcaja jest zjawiskiem powierzchniowym. Często zjawiska te zachodzą równocześnie i nazywane są sorpcją. W odniesieniu do zjawisk zachodzących w ściołce lub peletach potraktowanych cieczą dominuje mechanizm jej absorpcji całą objętością częstek, której

intensywność w czasie jest określana współczynnikiem dyfuzji. Dyfuzja wilgoci w strukturę materiału zależy od rodzaju materiału, objętości mikro pustek między cząstkami, rozmiarów cząstek lub peletu, objętości frakcji włókien, szybkości strumienia masy, czasu, dodatków, wilgotności względnej i temperatury powietrza (Podlaski et al., 2019; Zamri et al., 2012). Mniejsze cząstki i wyższa temperatura zwiększą szybkość absorpcji. Modyfikacja struktury peletów przeznaczonych na ściółkę powinna być skierowana na poprawienie charakterystyki higroskopijnej, przeciwnie jak dla peletów energetycznych. Więcej jest wyników badań absorpcji wilgoci z powietrza przez pelety energetyczne wytworzone z mieszanek różnych materiałów niż przez pelety przeznaczone na ściółkę.

Zaprezentowany stan wiedzy i wskazane luki w wiedzy są dowodem na ważność problematyki badawczej, dotyczącej rozwijania procesu aglomeracji ciśnieniowej w kierunku wytworzenia jakościowo dobrych peletów ze słomy pszennej i uzasadnionymi dodatkami przeznaczonymi na ściółkę dla drobiu.

2. Cel badań i hipotezy badawcze

Celem głównym niniejszej rozprawy doktorskiej było poznanie wpływu termicznej obróbki rozdrobnionej słomy z dodatkiem mąki maniokowej lub węglanu wapnia podczas aglomeracji ciśnieniowej na właściwości i cechy użytkowe podłoża stosowanego w produkcji drobiu.

Hipotezy badawcze:

- H1: Termiczna obróbka związków lignocelulozowych podczas wytwarzania peletów jest korzystna tylko przy określonej wilgotności i temperaturze procesu dla danego materiału roślinnego.
- H2: Podłoże przygotowane z peletów wytworzonych w optymalnych warunkach powinno być bardziej miękkie i sprężyste oraz o lepszej zdolności absorpcyjnej cieczy niż słoma.

Zakres pracy obejmował:

- Charakterystyka materiału rozdrobnionego: wilgotność; wskaźniki rozkładu wymiarów cząstek;
- Wytworzenie peletów z dodatkiem węglanu wapnia lub skrobi maniokowej o zróżnicowanym udziale dodatków przy różnej wilgotności i temperaturze materiału, wymiarów cząstek i wysokości matrycy;
- Wyznaczenie gęstość pojedynczych peletów;
- Wyznaczenie parametrów wytrzymałościowych podczas ściskania peletu: naprężenia, moduł sprężystości oraz praca jednostkowa.
- Wyznaczenie zdolności absorpcyjnych całych i zgniecionych peletów.

Szczegółowe cele i zakresy badań są podane w poszczególnych artykułach.

3. Materiał i metody badawcze

3.1. Materiał badawczy

Do badań wykorzystano słomę pszenną (WS) oraz z dodatkami wiążącymi węglanem wapnia (CC) lub skrobią maniokową (CS), przy trzech udziałach dodatków (2, 6 i 10%) i trzech poziomach wilgotności materiałów (10, 20 i 30%). Rozdrobnioną słomę otrzymano od producenta peletów Lootor sp. z o.o. (Słońsk, Poland) z przeznaczeniem na ściółkę. WS pocięto w maszynie o mocy 132 kW przy prędkości obrotowej 1200 rpm, wyposażonej w 196 noży. Pociętą WS zmielono w młynie bijakowym o mocy 250 kW przy prędkości obrotowej 1488 rpm, wyposażonym w 160 bijaków i perforowany ekran z otworami o średnicy 8 mm. CC i CS, jako lepiszcze zakupiono w hipermarkecie.

3.2. Metody badawcze

3.2.1. Wilgotność materiału i przygotowanie próbek

Wilgotność materiału wyznaczono metodą suszarkowo-wagową (zgodnie z wymaganiami normy S358.2). Próbki o masie 25 g odważano na wadze elektronicznej (WPS 600/C, Radwag, Radom, Poland) z dokładnością 0,01 g i suszono w $105 \pm 2^{\circ}\text{C}$ przez 24 h w suszarce laboratoryjnej SLW 115 (Pol-Eko Aparatura, Wodzisław Śląski, Poland). Pomiary wykonano 3-krotnie dla każdej kombinacji czynników.

Po sprawdzeniu wilgotności słomy dodano wody demineralizowanej zgodnie z zależnością $m_{\text{H}_2\text{O}} = m_1(1-MC_1)/(1-MC_2)$, gdzie: $m_{\text{H}_2\text{O}}$ - jest masą wody do dolania, g; m_1 - jest masą początkową słomy, g; MC_1 jest wilgotnością początkową słomy; MC_2 jest pożądaną wilgotnością słomy.

Po starannym wymieszaniu słomę pszenną przechowywano w komorze klimatycznej (3001-01, Ilka, Feutron Greiz, Germany), mieszając dwukrotnie w ciągu dnia. Zawartość zbiornika podzielono na 5 porcji. Jedna porcja stanowiła czystą somę. Do pozostałych porcji dodano węglan wapnia lub skrobię maniokową o udziale 2%, 6% lub 10%. Sprawdzono wilgotność materiału i dolano wody do uzyskania pożądanej wilgotności. Tak przygotowany materiał stabilizowano w komorze klimatycznej w $4 \pm 1^{\circ}\text{C}$ i wilgotności względnej powietrza $65 \pm 2\%$ przez 5 dni codziennie jednokrotnie mieszając. Próbki do badań pobierano według potrzeb, sprawdzając wilgotność i w przypadku obniżenia wilgotności o 0,2% w.b. (w.b. – względem wilgotnej substancji) dolewano wody.

3.2.2. Rozkład wymiarów cząstek

Rozdrobnioną słomę pszenną i jej mieszanki (z dodatkiem lepiszczy) rozdzielono na wibracyjnym separatorze sitowym LAB-11-200/UP (Eko-Lab, Brzesko, Poland) zgodnie z

normą ANSI/ASAE S319.4. Zastosowano dwa zestawy sześciu sit o wymiarach 0,1, 0,15, 0,212, 0,3, 0,425, 0,6, 0,85, 1,18, 1,6, 2,36, 3,35, 4,76 mm i dno. Próbkę materiału o masie 25 g przesiewano przez 600 s przez każdy zestaw sit. Masę próbki i frakcje z sit zważono na wadze elektronicznej WPS 600/C z dokładnością 0,01 g. Dla każdego układu pomiarowe przeprowadzono po pięć testów separacji. Na podstawie wyników obliczono charakterystyczne parametry rozkładu wymiarów częstek, które przedstawiono w tabeli 1. Skumulowany rozkład mieszanin aproksymowano modelem Rosina-Rammlera.

Tabela 1. Parametry rozkładu wymiarów częstek

Parametr	Wzór
Średnia geometryczna wymiaru częstek (mm)	$x_g = \log^{-1} \left[\sum (m_i \log x_{si}) / \sum m_i \right]$
Odchylenie standardowe, bezwymiarowe	$s_g = \log^{-1} \sqrt{\sum (m_i (\log x_{si} - \log x_g)^2) / \sum m_i}$
Średnia geometryczna długość częstek na i-tym sicie (mm)	$x_{si} = \sqrt{x_i x_{i-1}}$
Udział masowy materiału drobniejszego niż wymiar x	$Y = 1 - \exp(-(x/x_R)^n)$
Wymiar częstki o udziale masowym Y	$x = x_R \left[-\ln \left(1 - \frac{Y}{100} \right) \right]^{1/n}$
Średnia wymiaru graficzna częstek (mm)	$x_{gm} = (x_{16} + x_{50} + x_{84})/3$
Graficzny współczynnik skośności	$\sigma_{ig} = (x_{84} - x_{16})/4 + (x_{95} - x_5)/6.6$
Wskaźnikiem jednorodności (%)	$I_u = 100x_5/x_{90}$
Liczba szacunkowa	$N_{sg} = 100x_{50}$
Zakres zmienności (%)	$S_v = 100(x_{84} - x_{16})/2x_{50}$
Rozkład względny	$S_l = (x_{90} - x_{10})/x_{50}$
Współczynnik równomierności	$C_u = x_{60}/x_{10}$
Współczynnik stopniowania	$C_g = x_{30}^2/(x_{10}x_{60})$
Ogólna skośność graficzna	$S_{ig} = (x_{16} + x_{84} - 2x_{50})/2(x_{84} - x_{16}) + (x_5 + x_{95} - 2x_{50})/2(x_{95} - x_5)$
Kurtoza graficzna	$K_g = (x_{95} - x_5)/2.44(x_{75} - x_{25})$
Odchylenie standardowe rozkładu strefy górnej	$STD_h = x_{84}/x_{50}$
Odchylenie standardowe rozkładu strefy dolnej	$STD_l = x_{50}/x_{16}$
Odchylenie standardowe rozkładu strefy całkowitej	$STD_t = \sqrt{x_{84}/x_{16}}$

3.2.3. Proces peletowania

Do wytwarzania peletów została zastosowana uniwersalna maszyna wytrzymałościowa TIRAtest o maksymalnym nacisku 10 kN i prędkości zagęszczania $100 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$. Zestaw do

peletowania składał się z matrycy ze stali chromowej o średnicy zewnętrznej, wewnętrznej i wysokości, odpowiednio 60, 8 i 300 mm; dwóch elementów grzejnych o łącznej mocy 1,3 kW; termopary typu J i regulatora 3710 ESM do sterowania temperaturą elementów grzejnych; trzech zintegrowanych czujników ciśnienia i temperatury CT6V-15M-TCJ-M14 (OneHalf20 Ontario, Canada), za pomocą których mierzoną temperaturę materiału na wysokościach 15, 30 i 45 mm od podstawy matrycy; czujnika krańcowego. Do sterowania pracą uniwersalnej maszyny wytrzymałościowej zastosowano program Matest, za pomocą którego zapisywano również dane w relacji siła-przesunięcie z krokiem 0,03 mm. Temperaturę elementów grzejnych nastawiono na 116, 140 lub 164°C, której odpowiadała temperatura materiału 78, 93 i 108°C. Elementy grzejne włączano na godzinę przez peletowaniem, aby równomiernie nagrzać matrycę. Ogranicznikiem krańcowym ustalone położenie tłoka względem dna matrycy na wysokości 60, 70 i 80 mm. Była to długość aglomeratu wypełniającego otwór matrycy l_a . Masa pojedynczej dawki biomasy wynosiła 0,2 g i oszacowano ją na podstawie prób z zakresu 0,05-0,30 g oceniając trwałość wytworzonych peletów i kierując się ekonomiką przeprowadzenia eksperymentu. Dawkę materiału ważono na wadze analitycznej WPA 40/160/C/1 (Radwag, Radom, Polska) z dokładnością $\pm 0,0001$ g.

Peletowanie składało się z następujących kroków (rysunek 1). Otwartą komorę matrycy zatykano od dołu peletem i wsypywano dawkę o wyznaczonej objętości, równoważnej końcowemu położeniu tłoka z zakresu 60-80 mm. Na luźny materiał wysypywano dawkę 0,2 g i zagęszczano do chwili włączenia czujnika krańcowego trafiającego na ogranicznik zamocowany na prowadnicy, którym ustalano założoną wysokość matrycy. W procesie peletowania zwiększało się ciśnienie do wartości maksymalnej i w tym czasie tłok przemieścił się na odcinku s_m . Dalej tłok przesuwał uformowany pelet w matrycy o v_p . Całkowita droga przemieszczenia tłoka s_e wynosiła:

$$s_e = s_m + v_p \quad (1)$$

gdzie: s_m - przemieszczenie tłoka do wystąpienia ciśnienia maksymalnego w mm; v_p - przesunięcie peletu w matrycy w mm.

Efektywna długość otworu (wysokość) matrycy l_c , przez którą należało przesunąć bieżący aglomerat na odcinku v_p oraz aglomerat znajdujący się pod nim l_a wynosiła:

$$l_c = v_p + l_a \quad (2)$$

gdzie: v_p - średnia wartość przesunięcia uformowanego peletu w mm; l_a - długość aglomeratu wypełniającego otwór matrycy w mm.

Stabilne warunki peletowania osiągano po kilkudziesięciu dawkach, gdy maksymalne ciśnienie zagęszczania utrzymywało się na podobnej wartości.

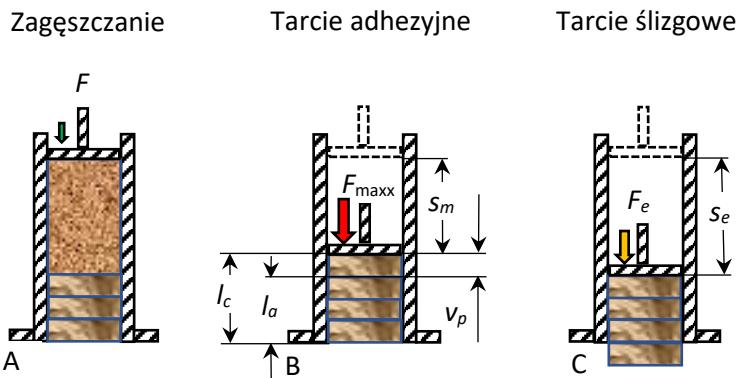


Fig. 2. Schemat sekwencji zagęszczania pojedynczej dawki materiału w matrycy z otwartą komorą; A) początek zagęszczania nowej dawki materiału, B) osiągnięcie maksymalnej siły/ciśnienia zagęszczania, C) przesunięcie bieżące zagęszczonego peletu wraz z aglomeratem znajdującym się pod nim (oznaczenia znajdują się w tekście)

Dla stabilnych warunków zagęszczania proces peletowania scharakteryzowano przez przemieszczenie tłoka do osiągnięcia maksymalnego ciśnienia zagęszczania s_m , przesunięcie peletu w matrycy v_p , maksymalne ciśnienie zagęszczania p_m , jednostkową pracę zagęszczania L_s , jednostkową pracę przesuwania peletu w matrycy L_v , a dla pojedynczego peletu wyznaczono średnicę d , długość l_p i gęstość pojedynczego peletu ρ_p . Parametry L_s , L_v i ρ_p odniesiono do masy suchej substancji.

Bezpośrednio z danych do wykresów siła-przemieszczenie zapisanych w trakcie aglomeracji ciśnieniowej wyznaczono współrzędne punktów dla wartości maksymalnej B(s_m, F_{max}) i zakończenia ruchu tłoka C(s_e, F_e) (rysunek 1). Ciśnienie maksymalne wyznaczono z zależności

$$p_{max} = \frac{4F_{max}}{\pi d^2} \quad (3)$$

gdzie: p_{max} - maksymalne ciśnienie zagęszczania w MPa; F_{max} - maksymalna siła zagęszczania w N; d - średnicą otworu matrycy w mm.

Zapotrzebowanie energetyczne jest ważnym problemem, który powinien być rozwiązyany podczas produkcji peletów. Dobrym wskaźnikiem energetycznym jest jednostkowa praca zagęszczania L_s i jednostkowa praca przesuwania peletu w matrycy L_v , które wyznaczono na podstawie danych siła-przemieszczenie podczas aglomeracji ciśnieniowej z następujących wzorów:

$$L_s = \int_0^{s_m} F dx / [m_s(1 - MC/100)] \quad (4)$$

$$L_v = \int_{s_m}^{(s_e - s_m)} F dx / [m_s(1 - MC/100)] \quad (5)$$

gdzie: L_s i L_v – jednostkowe prace, odpowiednio zagęszczania i przesuwania peletu w matrycy, odniesione do suchej substancji w $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}$; s_m i s_e - przemieszczenie tłoka do osiągnięcia, odpowiednio maksymalnego ciśnienia zagęszczenia i końcowego położenia tłoka po przesunięciu peletu w matrycy w mm; v_p - przesunięcie peletu w matrycy w mm; F - siła zagęszczania w N; m_s - masa próbki w g; MC - wilgotność materiału, odniesiona do wilgotnej substancji w %; x - przemieszczenie tłoka podczas zagęszczania materiału w mm.

3.2.4. Właściwości fizyczne peletów

Pomiary fizyczne peletów wyznaczono po tygodniu od daty ich wytworzenia. Powierzchnie czołowe peletów wyrównano za pomocą szlifierki, umieszczając próbki w trójkątnym uchwycie, aby zachować prostopadłość powierzchni do osi peletu. Pomiar średnicy (w połowie długości peletu) i długości peletu wykonano w dwóch kierunkach prostopadłych za pomocą suwmiarki elektronicznej MAUa-E2 4F (FK Vis, Warsaw, Poland) z dokładnością $\pm 0,01$ mm. Pelet zważono na wadze elektronicznej (WPS 600/C, Radwag) z dokładnością 0,01 g. Gęstość pojedynczych peletów przeliczono na masę suchej substancji wg wzoru:

$$\rho_p = \frac{32m(1-MC/100)}{\pi(d_1+d_2)^2(l_1+l_2)} \quad (6)$$

gdzie: ρ_p - gęstość pojedynczego peletu odniesiona do suchej substancji w $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$; m - masa peletu w kg; MC - wilgotność materiału, odniesiona do wilgotnej substancji w %; d_1 i d_2 - średnice peletu w dwóch prostopadłych kierunkach w m; l_1 i l_2 - długości peletu w dwóch kierunkach prostopadłych w m.

3.2.5. Parametry wytrzymałościowe peletów

Pelety umieszczały się indywidualnie na powierzchni stalowej płytka uniwersalnej maszyny wytrzymałościowej TIRAtest (Matest, Łódź, Poland) i ściskano stemplem o wymiarach 25×50 mm z prędkością $5 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$ do chwili, gdy tłok przemieścił się o 4 mm (przy średnicy peletu 8 mm). W celu obliczenia maksymalnych naprężzeń ściskających odczytywano maksymalną siłę, przy której pękał pelet, a w przypadku braku wyraźnego pęknięcia wartość siły odczytywano dla przesunięcia tłoka 0,2 średnicy pelety, czyli 1,6 mm. Pomiary wykonano 3-krotnie dla każdej kombinacji wytwarzania peletów.

Na podstawie zestawu danych siła-przemieszczenie zarejestrowanych podczas testów na uniwersalnej maszynie wytrzymałościowej wyznaczono wskaźniki wytrzymałościowe podczas

ściskania; energię jednostkową E_j , moduł sprężystości E i maksymalne naprężenia σ , przy których pelet pękał, na podstawie następujących zależności:

$$E_j = \frac{1}{S} \int_0^{\Delta l} F dx \quad (7)$$

$$E = \frac{Fd}{S\Delta l} \quad (8)$$

$$\sigma = \frac{2F_{max}}{\pi d l_p} \quad (9)$$

gdzie: E_j - energia jednostkowa ściskania do chwili pęknięcia peletu w $\text{mJ} \cdot \text{mm}^{-2}$; F - siła ściskająca w N; S - powierzchnia peletu, na którą działa obciążenie w mm^2 ; x - przemieszczenie stempla, równoważne deformacji peletu w mm; E - moduł sprężystości przy ściskaniu w MPa; d - średnica peletu przed obciążeniem w mm; Δl - promieniowe przemieszczenie stempla (deformację peletu) w mm; σ - maksymalne naprężenia ściskające podczas pękania peletu w MPa; F_{max} - maksymalna siła ściskająca w N, l_p - długość peletu w mm.

3.2.6. Absorbcja wody

Bezpośrednio po testach ściskania peletów, próbki peletów zgniecionych umieszczone w pojemniku o ściance sitowej o znanej masie (tara) i zważono na elektronicznej wadze laboratoryjnej (WLC1/A2, Radwag, Radom, Poland) z dokładnością $\pm 0,01$ g. Test przeprowadzono przez zanurzenie próbek w wodzie demineralizowanej o temperaturze $20 \pm 1^\circ\text{C}$ przez 30 min. Pojemniki z peletami po wyjęciu z wody pozostawiono na 5 min do odsączenia, delikatnie wstrząsano 3 razy, aby usunąć nadmiar wody z ekranu sita i ponownie zważono. Różnica masy próbki po i przed moczeniem to masa zaabsorbowanej wody przez pelety zgniecone. Zdolność do absorpcji wody przez pelety zgniecone, w odniesieniu do masy suchej substancji obliczono ze wzoru:

$$k = (m_{s1} - m_{s0}) / m_{s0} (1 - MC / 100) \quad (10)$$

gdzie: k - absorpcja wody przez pelety zgniecone w $\text{g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$; m_{s1} - masa próbki peletów zgniecionych po namaczaniu w wodzie w g; m_{s0} - masa próbki peletów zgniecionych przed namaczaniem w wodzie w g; MC - wilgotność peletów zgniecionych przed namaczaniem w wodzie w %.

3.2.7. Analiza statystyczna

Analizy statystyczne przeprowadzono przy użyciu Statistica v. 13.3.

Dane przeanalizowano pod kątem wpływu czynników (rodzaj materiału, stężenie dodatku, wilgotność, wysokość matrycy, temperatura materiału) na właściwości wytrzymałościowe peletów (jednostkowa praca ściskania, moduł sprężystości, naprężenia ściskające) i absorpcję wody przez pelety zgniecone na podstawie wielokryterialnej analizy

wariancji MANOVA, stosując test F (Fishera-Snedecora). Statystyczną istotność różnic między wartościami średnimi parametrów przeprowadzono przy użyciu metody testowej Tukeya w odniesieniu do parametrów kryterialnych charakteryzujących wytrzymałość peletów i absorpcję wody przez pelety zgniecione. Dla parametrów kryterialnych opracowano nieliniowe modele regresyjne, które wykorzystano do obliczenia najkorzystniejszych warunków peletowania i cech peletów, dla których obliczono wartości parametrów. Analizy przeprowadzono przy założonym poziomie istotności $p \leq 0.05$

3.2.8. Optymalizacja warunków zagęszczania

Zmiennymi sterującymi dla słomy pszennej z dodatkami węglanu wapnia i skrobi maniokowej były: stosunek dodatku A , wilgotność materiału MC , wysokość matrycy l_c i temperatura materiału t .

Odpowiedź zmiennych zależnych, którymi były jednostkowa praca ściskania E_j , moduł sprężystości E , naprężenia ściskające dla peletów σ i absorpcja wody przez pelety zgniecione k , obliczone na podstawie wartości otrzymanych z eksperymentów, może być zdefiniowana jako ogólne równanie regresyjne:

$$y_n = \beta_0 + \sum_{i=1}^4 \beta_i x_i + \sum_{i=1}^4 \beta_{ii} x_i^2 + \sum_{i=1}^3 \sum_{j=i+1}^4 \beta_{ij} x_i x_j, \quad (n = 1,2,3,4) \quad (11)$$

gdzie: y_1 - jednostkowa praca ściskania peletów (E_j , $\text{mJ} \cdot \text{mm}^{-2}$); y_2 - moduł sprężystości (E , MPa); y_3 - naprężenia ściskające peletów (σ , MPa); y_4 - absorpcja wody przez pelety zgniecione (k , $\text{g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1} \text{ DM}$); x_1 - stosunek dodatku (A , %); x_2 - wilgotność materiału (MC , %); x_3 - wysokość matrycy (l_c , mm); x_4 - temperatura materiału (t , °C); $\beta_0, \beta_i, \beta_{ii}, \beta_{ij}$ - współczynniki regresyjne.

Dla funkcji celu (11) względem czterech zmiennych sterujących A, MC, l_c, t wyznaczono gradient g_n za pomocą różnic skończonych w zapisie macierzowym

$$g_n = \left[\frac{\partial g_n}{\partial A}, \frac{\partial g_n}{\partial MC}, \frac{\partial g_n}{\partial l_c}, \frac{\partial g_n}{\partial t} \right] \quad (12)$$

Minimalizowanie funkcji $y_n(A, MC, l_c, t)$ obliczono przy warunkach początkowych z zakresu zmiennych decyzyjnych A_0, MC_0, l_{c0}, t_0 np. [4%; 15%; 70 mm i 90°C] i w ograniczeniach $0\% \leq A \leq 10\%$; $10\% \leq MC \leq 30\%$; $66 \text{ mm} \leq l_c \leq 86 \text{ mm}$ i $78^\circ\text{C} \leq t \leq 108^\circ\text{C}$.

Do minimalizacji funkcji nieliniowej $\min_{MC, l_c, t, A} y_n(MC, l_c, t, A)$ zastosowano funkcję „optim” z algorytmem Quasi-Newton.

Parametry optymalne procesu dla funkcji celu oraz wykresy opracowano za pomocą pakietu Scilab v.6.0.2.

4. Syntetyczne omówienie publikacji wchodzących w skład rozprawy doktorskiej

4.1. Publikacja 1

Peletowanie czystej pszennej słomy i mieszanki słomy z węglanem wapnia lub skrobią maniokową przy różnej wilgotności i temperaturze oraz wysokości matrycy: Modelowanie i optymalizacja

Matkowski P., Lisowski A., Świętochowski A. Pelletising pure wheat straw and blends of straw with calcium carbonate or cassava starch at different moisture, temperature, and die height values: Modelling and optimisation. *Journal of Cleaner Production.* 2020;272:1-11. doi:10.1016/j.jclepro.2020.122955.

W syntetycznym opisie publikacji zawarto najistotniejsze konkluzje, dotyczące analizy i interpretacji wyników badań. Pełna dyskusja wyników badań, uwzględniająca stan wiedzy, jest zawarta w poszczególnych, oryginalnych artykułach, zamieszczonych po streszczeniu.

Badania opisane w publikacji 1 miały na celu zbadanie procesu peletowania czystej słomy pszennej oraz zmieszanej z dodatkami węglanu wapnia i skrobi maniokowej (Table S1 – oznaczenia odnoszą się do oryginalnych tabel i rysunków zawartych w artykułach, litera S oznacza dodatek do artykułu, ang. SI Appendix, dołączony po każdym artykule). Zbadano wpływ kilku czynników na przemieszczenie tłoka podczas formowania peletu, przesunięcie gotowego peletu w matrycy, pracę jednostkową peletowania i przesunięcia peletu w matrycy oraz na gęstość peletów. Czynnikami zmiennymi były wilgotność i temperatura materiału, wysokość matrycy oraz procentowa zawartość dodatków. Dane eksperymentalne były przetworzone za pomocą analizy wariancji, analizy regresji i korelacji. Na podstawie wyników tych analiz oceniono wpływ każdego czynnika na wskaźniki kryterialne procesu oraz wzięto pod uwagę interakcję tych czynników. Po selekcji parametrów opracowano modele matematyczne i optymalizację warunków peletowania ze względu na przyjęte wskaźniki kryterialne procesu. Nowością pracy było selekcja zmiennych za pomocą metody korelacji cech oraz wyznaczenie optymalnych wartości zmiennych decyzyjnych i wartości funkcji celu za pomocą ogólnodostępnego oprogramowania Scilab v.6.0.2.

Proces aglomeracji ciśnieniowej w matrycy z otwartą komorą dobrze odzwierciedla rzeczywiste warunki zagęszczania materiału, od początku tego procesu, aż do jego ustabilizowania (Fig. 1). W warunkach produkcyjnych jest to związane ze wstępny

przygotowaniem materiału do określonej wilgotności i temperatury, całkowitym wypełnieniem zagęszczonym aglomeratem otworu matrycy i nagrzaniem matrycy w wyniku tarcia.

W warunkach laboratoryjnych, po wprowadzeniu pierwszych dawek materiału formowany pelet był bardzo nietrwały, ze względu na nieznaczne opory związane z tarciem między ścianką otworu matrycy a powierzchnią cylindryczną peletu. Po fazie dyslokacji częstek i powolnym wzroście ciśnienia zagęszczania charakterystyka procesu przechodziła przez punkt przegięcia. Od tego punktu następuała plastyczna deformacja częstek, o dużym gradiencie ciśnienia zgęszczania. Charakterystyka narastania ciśnienia zagęszczania względem przemieszczenia tłoka miała typowy kształt, zbliżony do funkcji wykładniczej, aż do uzyskania maksymalnej wartości ciśnienia. Po przekroczeniu tego ciśnienia następowało gwałtowne jego zmniejszenie, ze względu na zerwanie adhezji na powierzchniach styku peletu i ścianki otworu matrycy (Rossouw et al., 2003).

Najczęściej do pierwszych 8 dawek nie było widocznego punktu maksymalnego i praktycznie krzywa ciśnienia zagęszczania osiągała przebieg plateau. Po tym etapie, aż do 14 dawki ciśnienie podczas przesuwania zagęszczonej dawki i aglomeratu zwiększało się, bez osiągania wyraźnej wartości maksymalnej. Począwszy od 15 dawki można było zauważyć punkt z maksymalną wartością ciśnienia. W tym punkcie stacjonarnym należało pokonać tarcie statyczne i po rozpoczęciu ruchu aglomeratu spadało ciśnienie ze względu na pojawienie się tarcia kinetycznego o mniejszej wartości. Dalsze zmniejszanie się oporów ruchu wynikało ze zmniejszania się sumarycznej rzeczywistej powierzchni kontaktu częstek wypychanego aglomeratu z matrycy i systematycznego oczyszczaniem się z przyklejonych wierzchołków częstek do powierzchni matrycy (Lisowski et al., 2019). Przy większym zagęszczeniu aglomeratu i deformacji plastycznej częstek oraz powstałych trwałych wiązań między częstekami ekspansja aglomeratu była bardzo mała i ruch zagęszczonej dawki i aglomeratu był jednoczesny. W tych warunkach gradient ciśnienia był ujemny. Wyjaśnienie tych zróżnicowanych procesów gradientu ciśnienia w fazie przesuwania peletu w matrycy opisano po raz pierwszy.

Przy mniejszej wilgotności materiału 10% w.b., zwłaszcza z dodatkami CS i CC, podczas przesuwania peletu w matrycy występowało zjawisko drgań ciernych (stick-slip), ale z chaotycznymi oscylacjami i małą amplitudą. Były to losowe sklejania się częstek materiału do powierzchni otworu matrycy. Dla słomy bez dodatków (Fig. 1a) dynamika zwiększenia ciśnienia podczas przesuwania peletu była największa. Dodanie skrobi maniokowej przyczyniło się do opóźnienia (Fig. 1b), a węglanu wapnia do przyspieszenia gradientu ciśnienia aglomeracji (Fig. 1c).

Na podstawie analizy wariancji stwierdzono, że wszystkie pięć czynników (rodzaj dodatku, stężenie dodatku, wysokość matrycy, temperatura materiału) miało statystycznie istotny wpływ na parametry procesu zagęszczania i peletów (Table 1). W większości przypadków p-value była mniejsza niż 0,0001. Tylko dla gęstości pojedynczych peletów p-value było większe i wynosiło 0,0285.

Aby osiągnąć maksymalną siłę/ciśnienie zagęszczania tłok pokonywał różną drogę, w zależności od warunków procesu aglomeracji ciśnieniowej. Im większe było przemieszczenie tłoka s_m tym większą pracę należało wykonać, aby zagęścić materiał. Największe przemieszczenie tłoka wystąpiło podczas zagęszczania słomy pszennej bez dodatków ($A = 0\%$) i wynosiło 13,2 mm (Table 1). Dla mieszanek słomy z dodatkami skrobi maniokowej lub węglanu wapnia przemieszczenie tłoka było mniejsze, odpowiednio o 21% i 25%. Słoma jest pokryta woskiem, który zmniejsza tarcie, stąd większe przemieszczenie tłoka podczas jej aglomeracji ciśnieniowej. Ogólnie słoma cechuje się większą podatnością na zagęszczanie niż skrobia maniokowa i węglan wapnia. Skrobia maniokowa, jako dodatek do słomy, wchłaniała wodę, pęczniała, tworząc kleik, który zwiększał adhezję między częstekami a powierzchnią matrycy, stwarzając opory związane ze ścinaniem tych połączeń.

Największy wpływ dodatków na przemieszczenie tłoka uzyskano przy najmniejszym stężeniu dodatków (additives ratio). Przy stężeniu dodatku 2% wt/wt wartość średnia przemieszczenia tłoka wynosiła 9,38 mm i była mniejsza o 29% od przemieszczenia tłoka podczas aglomeracji słomy pszennej bez dodatków. Zwiększenie stężenia dodatków do 6% i 10% wywołało relatywnie mniejsze różnice w przemieszczeniu tłoka, odpowiednio o 23% i 22%. Większa ilość dodatku adsorbowała na powierzchni otworu matrycy, tworząc tarcie, które należało pokonać.

W celu osiągnięcia maksymalnej siły zagęszczania zwiększenie wilgotności materiału w zakresie 10-20% w.b. wydłużyło przemieszczenie tłoka. Przy zbyt małej wilgotności współczynnik tarcia był większy, a przy większej obecność wolnej wilgoci (nie związanej dodatkami) między częstekami przyczyniła się do wygenerowania siły kohezji między sąsiadującymi częstekami. Oznacza to, że można osiągnąć optimum wilgotności, przy której przemieszczenie tłoka s_m będzie miało wartość maksymalną.

Zgodnie z logiką zwiększenie wysokości matrycy pozytywnie wpłynęło na zwiększenie przemieszczenie tłoka, ale gradient przyrostu tego przemieszczenia był o jedną trzecią większy w zakresie wysokości 66-76 mm niż 76-86 mm i wynosił odpowiednio $0.067 \text{ mm} \cdot \text{mm}^{-1}$ i $0.049 \text{ mm} \cdot \text{mm}^{-1}$.

Wraz ze wzrostem temperatury podgrzanego materiału 78-93-108°C zmniejszało się przemieszczenie tłoka, odpowiednio 12,6-10,8-7,1 mm, czyli w przedziałach 78-93°C i 93-108°C wynosiło odpowiednio 14% i 34%. Przesunięcie peletu w matrycy v_p było odwrotnie proporcjonalne do przemieszczenia tłoka do osiągnięcia maksymalnej siły/ciśnienia zagęszczania, czego dowodem była wysoka, ale ujemna wartość współczynnika korelacji między tymi dwoma parametrami $r = -0,667$ (Table S2). Wilgotność materiału miała największy wpływ na zróżnicowanie przesunięcie peletu w matrycy i w zakresie wilgotności 10-30% w.b. v_p zmniejszyło się od 8,5 mm do 2,5 mm (Table 1). Przemieszczenie tłoka do osiągnięcia maksymalnej siły/ciśnienia zagęszczania miało przeciętną korelację dodatnią z jednostkową pracą zagęszczania (0,408), jednostkową pracą przesunięcia peletu (0,332) i gęstością pojedynczego peletu (0,468) (Table S2).

Przesunięcie peletu w matrycy miało wysoką korelację ujemną z jednostkową pracą zagęszczania (-0,547), jednostkową pracą przesuwania peletu (-0,515) i gęstością pojedynczego peletu (-0,553) (Table S2).

Fizycznie przesunięciu peletu w matrycy odpowiadało długości uformowanego peletu z bieżącego zagęszczenia dawki materiału.

Jednostkowa praca zagęszczania, odniesiona do suchej substancji, była największa dla słomy pszennej bez dodatku, $18,1 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ (Table 1). Dodanie skrobi maniokowej spowodowało zmniejszenie tej pracy do $14,7 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ (o 19%), a węglanu wapnia do $12,5 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ (o 31%). Stężenie tych dodatków nie miało jednak istotnego wpływu na jednostkową pracę zagęszczania, gdyż wartości tej pracy tworzyły grupę homogeniczną o średniej wartości $13,0 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$.

Zwiększenie wysokości matrycy tylko nieznacznie zwiększyło jednostkową pracę zagęszczania, z $13,2 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$, dla średniej wartości jednorodnej grupy dla wysokości matrycy 66 mm i 76 mm, do $15,0 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ dla $l_c = 86 \text{ mm}$ (Table 1).

Na jednostkową pracę zagęszczania ujemny wpływ ($r = -0,255$) (Table S2) miała temperatura materiału. Dla temperatury materiału 78, 93 i 108°C jednostkowa praca zagęszczania wynosiła odpowiednio $20,5 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$, $12,8 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ i $5,4 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ (Table 1).

Wpływ czynników na jednostkową pracę zagęszczania był podobny jak na przemieszczenie tłoka do maksymalnej siły/ciśnienia zagęszczania i ich interpretacja bazuje na tych samych zjawiskach fizycznych. Jednostkowa praca zagęszczania uwzględnia jednak kształt charakterystyki ciśnienie-przesunięcie (Fig. 1), a nie tylko współrzędne pojedynczego punktu. Praca ta (L_s) lepiej odzwierciedla proces zagęszczania niż przemieszczenie tłoka s_m .

Jednostkowa praca przesuwania peletu (L_v) ($3,5-17,2 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$) była mniejsza od jednostkowej pracy zagęszczania ($5,4-20,5 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$) (Table 1). Mimo że jednostkowa praca

przesuwania peletu odbywała się na krótszym odcinku niż praca zagęszczania, to przesuwanie peletu odbywało się przy relatywnie wysokim ciśnieniu (Fig. 1). Materiały o mniejszej gęstości nasypowej i o dużej podatności na zgęszczanie, np. słomiaste, mogą być dozowane o większych dawkach, gdyż powstający aglomerat jest krótszy i potrzebna praca do jego przemieszczenia jest mniejsza.

Wpływ czynników głównych na zróżnicowanie wartości L_v był nieco większy niż na L_s . Wartości jednostkowej pracy zagęszczania i przesuwania peletu były bardzo wysoko ze sobą skorelowane ($r = 0,839$) (Table S2). Wartości współczynników korelacji między jednostkową pracą zagęszczania oraz jednostkową pracą przesuwania peletu i gęstością pojedynczych peletów wynosiły odpowiednio 0,593 i 0,588 (korelacja wysoka).

Gęstość pojedynczych peletów, odniesiona do suchej substancji, wytworzonych ze słomy bez dodatków była największa i wynosiła $490 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ (Table 1). Dodanie do słomy skrobi maniokowej spowodowało zmniejszenie gęstości do $405 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, a węglanu wapnia do $475 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, odpowiednio o 17 i 3%. Zwiększenie stężenia tych dodatków w zakresie 2-10% wt/wt spowodowało niejednoznaczną zmianę gęstości pojedynczych peletów. Gęstość pojedynczych peletów dobrze korelowała z parametrami procesu (Table S2). Wartość współczynnika korelacji gęstości pojedynczych peletów z jednostkową pracą zagęszczania wynosiła 0,593 (korelacja wysoka), jednostkową pracę przesuwania peletu (0,588), przemieszczeniem tłoka do maksymalnej siły/ciśnienia zagęszczania (0,468, korelacja przeciętna) i przesunięciem peletu (-0,553, ujemna korelacja wysoka). Z tego wynika, że te same zjawiska, które charakteryzowały proces zagęszczania, wpływają na uzyskanie peletu o określonej gęstości.

Podobnie jak dla parametrów procesów przy wilgotności materiału 20% w.b. osiągnięto największą gęstość pojedynczych peletów $495 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$. Znacznie mniejszą gęstość ($372 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$) miały pelety wytworzone przy wilgotności materiału 10% w.b. (spadek gęstości o 25%). Zwiększenie wilgotności materiału o ten sam interwał, do 30% w.b., przyczyniło się tylko do nieznacznego obniżenia gęstości, do $479 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ (o 3%). Wraz ze zwiększeniem wysokości matrycy zaobserwowano tendencję do zwiększenia gęstości pojedynczych peletów, ale przyrosty tej gęstości nie były jednoznaczne.

Stwierdzono jednokierunkowy, negatywny wpływ temperatury materiału na gęstość pojedynczych peletów ($r = -0,404$) (Table S2). Największą gęstość $542 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ (Table 1) miały pelety wytworzone przy temperaturze materiału 78°C . Zwiększenie temperatury materiału o 15°C (do 93°C) spowodowało zmniejszenie gęstości pojedynczych peletów do $494 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, czyli o 9%. Dalszy wzrost temperatury materiału o 15°C (do 108°C) doprowadziło do

znaczącego zmniejszenia gęstości pojedynczych peletów (do $310 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, czyli o dalsze 37%). Przy wyższej temperaturze materiał lignocelulozowy ulegał plastyfikacji, stawał się bardziej amorficzny, zwłaszcza lignina i woda działały jak środek smarny, mimo że część wody mogła odparować. Przy niższej temperaturze efekt wilgoci był mniejszy, zwłaszcza w obecności dodatków CS i CC. Z częstek przylegających do powierzchni matrycy relatywnie więcej wody mogło odprowadzać. Dekompozycja hemicelulozy i celulozy zachodzi przy średniej temperaturze a ligniny zaczyna się już od temperatury pokojowej (Uzun and Yaman, 2014).

Na podstawie zaprezentowanych wyników badań i analiz statystycznych opracowano modele matematyczne dla parametrów zagęszczania i gęstości pojedynczych peletów (Table 2), a na ich podstawie zestawiono optymalne wartości zmiennych sterujących (Table S3 of the SI). Analizę przeprowadzono osobno dla słomy pszennej oraz jej mieszanek z dodatkami CS i CC, a także dla wszystkich połączonych danych, aby sprawdzić możliwość uogólnienia modeli matematycznych. Analizowane funkcje celu osiągały optymalne wartości przy zróżnicowanych zmiennych decyzyjnych, ale ze względu na cel pracy ważną wartością było stężenia dodatków. Dla mieszanki słomy pszennej ze skrobią maniokową jednostkowa praca zagęszczania L_s osiągała optymalne wartości przy stężeniu CS 4%, ale nie przełożyło się to na gęstość pojedynczych peletów (Table S3). Dla mieszanki słomy z węglanem wapnia proces aglomeracji zachodził w optymalnych warunkach przy stężeniu CC 10%, ale przemieszczenie tłoka i gęstość pojedynczego peletu uzyskiwano przy zerowym stężeniu tego dodatku. Próba optymalizacji procesu dla wszystkich rodzajów mieszanek biomasy wskazuje, że maksymalną gęstość pojedynczych peletów uzyskano przy stężeniu dodatków 4%. Ogólnie można stwierdzić, że korzystniejsze było dodanie węglanu wapnia niż skrobi maniokowej, gdyż gęstość pojedynczych peletów z dodatkiem CC była największa i wynosiła $853 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$, a dla dodatku CS była mniejsza o 20% (Table S3).

Uwzględniając gęstość pojedynczych peletów, jako ważną funkcję celu można stwierdzić, że optymalna wilgotność słomy pszennej bez dodatków wynosiła 13% w.b. Podczas aglomeracji mieszanki słomy pszennej ze skrobią maniokową wszystkie pięć kryteriów funkcyjnych osiągnęły optymalne wartości przy największej wilgotności 30% w.b., ale gęstość pojedynczych peletów była najmniejsza ($682 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$). Zastosowanie węglanu wapnia do słomy pszennej nie dawało już tak powtarzanego wyniku, ale uwzględniając pracę jednostkową zagęszczania i gęstość pojedynczych peletów, jako dominujące funkcje celu, optymalny proces zachodził przy wilgotności około 18% w.b.

Optymalna wysokość matrycy podczas aglomeracji słomy pszennej bez dodatków powinna być największa, 86 mm, a zagęszczanie mieszanek słomy z dodatkami może być realizowane przy średniej wysokości matrycy, 76 mm.

Proces zagęszczania i jego efekt w postaci optymalnej gęstości pojedynczych peletów powinien się odbywać przy niższej temperaturze materiału 78-86°C (z zakresu 78-108°C). Oceniając jakość procesu przez osiągnięty efekt w postaci maksymalnej wartości gęstości pojedynczych peletów można stwierdzić, że peletowanie zachodziło przy następujących optymalnych zmiennych sterujących; stężenie dodatku 4% wt/wt, wilgotność materiału 23,3% w.b., wysokość matrycy 78 mm, temperatura materiału 80,2°C (Table S3, Fig. 6). W tych optymalnych warunkach przemieszczenie tłoka do osiągnięcia maksymalnej siły/ciśnienia zagęszczania wynosiło $s_m = 14,2$ mm, przesunięcie pletetu $v_p = 2,35$ mm (równoważne wysokości zagęszczonej pojedynczej dawki), jednostkowa praca zagęszczania $L_s = 22,1 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ i jednostkowa praca przesuwania peletu $L_v = 15,4 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$. Wartości te obliczono na podstawie modeli matematycznych (Table 2).

4.2. Publikacja 2

Charakterystyka pojedynczych peletów wytworzonych ze słomy pszennej i w połączeniu ze skrobią maniokową lub węglanem wapnia w różnych warunkach zagęszczania: Określenie wytrzymałości peletów i zdolności absorpcji wody przez pelety

Matkowski P., Lisowski A., Świętochowski A. Characterisation of Wheat Straw Pellets Individually and in Combination with Cassava Starch or Calcium Carbonate under Various Compaction Conditions: Determination of Pellet Strength and Water Absorption Capacity. *Materials*. 2020;13(19):1-15. doi:10.3390/ma13194375

Celem pracy było wyznaczenie najkorzystniejszej kombinacji parametrów zagęszczania słomy pszennej oraz zmieszanej z dodatkami wiążącymi skrobi maniokowej lub węglanu wapnia przez maksymalizację wytrzymałości peletów na ściskanie i absorpcji wody przez pelety zgniecone. Parametrami charakteryzującymi wytrzymałość peletów na ściskanie były jednostkowa praca ściskania, przy której pelety pękały, moduł sprężystości i maksymalne naprężenia ściskające. Pelety zgniecone, jako potencjalny materiał na ściółkę, oceniono na podstawie absorpcji wody. W analizie tych wyników badań uwzględniono również gęstość pojedynczych peletów, którą rozważano w ocenie procesu zagęszczania.

Największą jednostkową pracą ściskania ($2,66 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$) podczas deformacji próbek aż do wystąpienia pęknięcia cechowały się pelety wytworzone z mieszanki słomy pszennej z

dodatkiem węglanu wapnia (Table 2). Nieco mniejszej pracy niszczącej (o 5%), ale bez statystycznie istotnej różnicy, wymagały pelety wytworzone z czystej słomy pszennej. Najmniejszą jednostkową pracę ściskania ($1,28 \text{ mJ} \cdot \text{mm}^{-2}$), przy której próbki pękały, charakteryzowały się pelety wytworzone z mieszanki słomy pszennej z dodatkiem skrobi maniokowej.

Pelety wytworzone przy zwiększającej się wilgotności cechowały się większą odpornością na obciążenia ściskające i przyrost jednostkowej pracy ściskania był zdecydowanie większy w pierwszym przedziale wilgotności (10-20%) niż w drugim (20-30%) i wynosił odpowiednio 124% i 2%. Znaczący przyrost jednostkowej pracy ściskania miał miejsce przy największej temperaturze materiału 108°C , a w temperaturach 78°C i 93°C przebiegi zmian E_j osiągnęły plateau (Fig. 1). Odwrotnie niż wilgotność materiału wzrost temperatury materiału zmniejszył odporność peletów na ściskanie i w przedziałach $78-93^\circ\text{C}$ i $93-108^\circ\text{C}$ spadek wynosił odpowiednio 1% i 60%.

Jednostkowa praca ściskania, potrzebna do pęknienia peletu była tym większa im większa była gęstość jednostkowa peletu, gdyż korelacje między tymi parametrami były wysokie; $r=0,514$ dla mieszanki słomy pszennej ze skrobią maniokową lub bardzo wysokie; $r=0,813$ i $r=0,816$, odpowiednio dla słomy pszennej i mieszanki słomy pszennej z węglanem wapnia (Table S1). Wysokie lub bardzo wysokie korelacje zarejestrowano między jednostkową pracą ściskania a modułem sprężystości i maksymalnym naprężeniem ściskającym. Ujemna, dość wysoka korelacja ($r \approx -0,5$) była między jednostkową pracą ściskania a absorpcją wody. Im pelet był bardziej odporny na pęknienie tym w mniejszym stopniu nasiąkał wodą.

Można stwierdzić, że wpływ węglanu wapnia był bardziej efektywny niż skrobi maniokową jako dodatek do słomy pszennej ze względu na potrzebę użycia większej jednostkowej pracy ściskania w celu pęknienia peletów. Udział dodatków wiążących nie miał większego wpływu na jednostkową pracę ściskania. Wpływ wilgotności i temperatury materiału był przeciwny i o wykładniczej zmianie z rosnącą charakterystyką do plateau dla jednostkowej pracy ściskania przy zwiększającej się wilgotności oraz z odwróconą charakterystyką przy zmniejszającej się temperaturze materiału (Table 2, Fig. 4).

Wartość średnia modułu sprężystości była największa (7,42 MPa) dla peletów wytworzonych z mieszanek słomy pszennej z dodatkiem skrobi maniokowej, a najmniejsza (2,39 MPa) dla peletów uzyskanych z mieszanki słomy pszennej z dodatkiem węglanu wapnia. Moduł sprężystości dla peletów wytworzonych z czystej słomy pszennej wynosił 4,62 MPa (Table 2).

Wartość udziału dodatków nie miała wpływu na zróżnicowanie wartości modułu sprężystości, które tworzyły wspólną grupę jednorodną o średniej wartości 4,83 MPa, ale wzrost udziału dodatków przekładał się na nieznaczną tendencję malejącą modułu sprężystości.

Moduł sprężystości zwiększał się progresywnie wraz z wilgotnością materiału i w przedziałach wilgotności 10-20% i 20-30% przyrost wynosił odpowiednio 15% i 21%. Częstki słomy pszennej oraz dodatki pęczniały wraz z absorpcją wody i mogły się cechować lepszą sprężystością przy większej wilgotności. Ponadto woda jest nieściśliwa, stąd jej większy udział w materiale zwiększa jego sprężystość.

Największy moduł sprężystości (5,83 MPa) wykazywały pelety wytworzone przy temperaturze materiału 93°C. W temperaturze 78°C wartość modułu sprężystości zmniejszyła się o 10%, a w temperaturze największej 108°C wartość tego parametru zmniejszyła się aż o 40% (Table 2). Z tego wynika, że istnieje optymalna wilgotność, dla której moduł sprężystości osiąga wartość maksymalną. Korelacja między modułem sprężystości a temperaturą materiału była ujemna i słaba (Table S1). Moduł sprężystości bardzo dobrze korelował z jednostkową pracą ściskania oraz naprężeniem ściskającym i wartości współczynników korelacji były większe dla peletów z mieszanek słomy pszennej z węglanem wapnia niż ze skrobią maniokową i były o podobnej wartości dla peletów z czystej słomy pszennej, o średniej wartości $r \approx 0,7$ (Table S1).

Największymi, wartościami średnimi naprężeń ściskających (2,11 MPa) cechowały się pelety wytworzone z mieszanki słomy pszennej z dodatkiem węglanu wapnia (Table 2). Były one większe o 71% od naprężień ściskających dla peletów z mieszanki słomy pszennej z dodatkiem skrobi maniokowej. Moduł sprężystości dla peletów ze słomy pszennej był mniejszy od wartości maksymalnej o 8%. Udział dodatku nie miał istotnego wpływu na maksymalne naprężenia ściskające, ale można wskazać na jego tendencję malejącą. Największy przyrost naprężzeń ściskających zarejestrowano przy zwiększeniu wilgotności materiału z 10°C do 20%, który wynosił 133%. W zakresie wilgotności 20-30% ten przyrost zmniejszył się do 17%. Podobną tendencję, ale przy ponad 4-krotnym mniejszym poziomie gradientu zauważono dla przedziałów wysokości matrycy 66-76 mm i 76-86 mm, dla których przyrost naprżeń ściskających wynosił odpowiednio 28% i 4%. Odwrotna tendencja do wilgotności i wysokości matrycy była dla temperatury, gdyż w zakresie temperatur 78-93°C i 93-108°C spadek wartości naprżeń ściskających wynosił odpowiednio 6% i 63%.

Naprężenia ściskające wysoko korelowały z modułem sprężystości, $r=0,515-0,702$, ale przede wszystkim bardzo wysoko korelowały z jednostkową pracą ściskania, $r=0,830-0,928$ (Table S1).

Ze względu na cel pracy bardzo ważna jest ocena zdolności absorpcji wody przez pelety zgniecione. Największą absorpcję wody ($5,45 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$) cechowały się pelety zgniecione wytworzone z czystej słomy pszennej (Table 2). Dodanie węglanu wapnia spowodowało zmniejszenie absorpcji wody przez pelety zgniecione o 12%, a dodanie CS aż o 59%. Zwiększenie udziału dodatków z 2% do 6% zwiększyło absorpcję wody z 3,56 do $3,69 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$, o 4%, a w większym zakresie przedziałów tych dodatków (6-10% wt/wt) nastąpiło zmniejszenie tej absorpcji z $3,69$ do $3,30 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$, o 34%.

Wraz z wilgotnością materiału zmniejszała się absorpcja wody przez pelety zgniecione, ale nie było jednoznacznej tendencji między rodzajami dodatków. Na podstawie równań regresyjnych (Table S2) stwierdzono, że mimo iż dla wszystkich mieszanek największa absorpcja wody była przy wilgotności najmniejszej, to dla dodatku węglanu wapnia uzyskano minimalną wartość absorpcji wody przy wilgotności materiału 20-22%, a dla dodatku skrobi maniokowej absorpcja wody była najmniejsza przy największej wilgotności materiału.

Pelety wytworzone przy mniejszej wysokości matrycy (66 mm) cechowały się największą absorpcją wody $4,00 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$ (Table 2). Zwiększenie wysokości matrycy do 76 mm spowodowało zmniejszenie absorpcji wody o 4%, a dalsze zwiększenie tej wysokości do 86 mm zmniejszało zdolność pochłaniania wody przez pelety zgniecione o kolejne 11%. Gradient spadku absorpcji wody był więc progresywny.

W przeciwnym kierunku oddziaływała temperatura materiału, przy której wytworzono pelety. Pelety wytworzone przy najniższej temperaturze 78°C miały najmniejszą zdolność absorpcji wody $3,35 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$ (Table 2). Wzrost temperatury materiału o 15°C spowodował zwiększenie nasycenia wodą peletów zgniecionych o 7%, a dalszy wzrost tej temperatury o kolejne 15°C zwiększył absorpcję wody o 23%.

W podsumowaniu należy stwierdzić, że czynniki główne; rodzaj materiału, udział dodatków, wilgotność materiału, wysokość matrycy i temperatura materiału, które były zmieniane podczas wytwarzania peletów wpływały odmiennie na absorpcję wody przez pelety zgniecione niż na gęstość jednostkową i wytrzymałość peletów na obciążenia ściskające. Dlatego też relacje między tymi parametrami kryterialnymi a absorpcją wody przez pelety zgniecione były przeciwnie, czego dowodem są wysokie, ale ujemne wartości współczynników korelacji (Table S1). Mimo że proces namaczania był przeprowadzony na peletach zgniecionych, to te pelety, które cechowały się większą gęstością jednostkową i wytrzymałością na deformację podczas obciążenia ściskającego charakteryzowały się mniejszą absorpcją wody.

Spójność między absorpcją wody a gęstością pojedynczych peletów była największa, gdyż wartości współczynników korelacji zawierały się w przedziale od $r=-0,502$ do $r=-0,645$ (Table S1). Spośród parametrów wytrzymałościowych naprężenia ściskające najlepiej korelowały z absorpcją wody, dla których wartość współczynników korelacji wynosiła od $r=-0,505$ do $r=-0,574$ (Table S1). Ze względu na kryterium zdolności absorpcji wody przez pelety zgniecione korzystniej było wytwarzać pelety o mniejszej gęstości jednostkowej i wytrzymałości na ściskanie.

Dla kontrastu absorpcja wody przez czystą rozdrobnioną słomę pszenną o wilgotności 10% wb wynosiła $4,97 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$ i była mniejsza od słomy pszennej speletowanej, a dla mieszanki słomy pszennej ze skrobią maniokową lub węglanem wapnia była większa i wynosiła odpowiednio $6,27$ i $6,43 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$. Udział dodatków (2-10%) nie miał statystycznie istotnego wpływu na zróżnicowanie wartości absorpcji wody, gdyż wyniki zawierały się w wąskim zakresie $6,20$ - $6,51 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$ i tworzyły grupę jednorodną. Wyniki badań zaprezentowano tylko dla najmniejszej wilgotności słomy pszennej, gdyż tylko suchą słomę jest sens stosować jako ściółkę.

Wnioski z wyników badań i analiz statystycznych pozwoliły na opracowanie modeli matematycznych dla parametrów wytrzymałościowych peletów i absorpcji wody przez pelety zgniecione (Table S2). Na podstawie modeli wyznaczono optymalne wartości zmiennych sterujących procesem zagęszczania (Table 3). Analizowane funkcje celu osiągały optymalne wartości przy zróżnicowanych zmiennych decyzyjnych, ale ze względu na cel pracy ważną wartością był udział dodatków. Interesujące, że optymalny udział skrobi maniokowej wynosił 4% dla maksymalnych naprężen ściskających i 6,1% dla absorpcji wody (Table 3). Optymalny udział węglanu wapnia był w pobliżu wartości zero dla wszystkich innych funkcji celu. Przy uogólnionym podejściu wartość udziału dodatku dla funkcji celu ρ_p , E_j , E and σ_c wynosiła 4%.

Najlepsze parametry wytrzymałościowe peletów ze czystej słomy pszennej uzyskano w podobnych warunkach peletowania; przy wilgotności 23-30% w.b., wysokości matrycy 86 mm i temperaturze materiału około 91°C (Table 3).

W porównaniu do czystej słomy pszennej z mieszanki słomy pszennej ze skrobią maniokową najlepsze pelety pod względem wytrzymałości osiągnięto w warunkach większej wilgotności 30% w.b., mniejszej wysokości matrycy, około 70 mm i niższej temperaturze materiału 80°C .

Dodanie węglanu wapnia do słomy pszennej zmieniło warunki peletowania, głównie w odniesieniu do wilgotności materiału, która nie powinna być większa niż 16%. W tych warunkach, z uwzględnieniem wysokości matrycy, około 76 mm i temperatury materiału 78°C

wytworzono pelety o najlepszych parametrach wytrzymałościowych. Wymagana wilgotność materiału i temperatura materiału mieszanki słomy pszennej z węglanem wapnia były najmniejsze w porównaniu do obu pozostałych materiałów. Zagęszczanie mieszanki słomy pszennej z węglanem wapnia wymagało mniejszej wysokości matrycy niż podczas peletowania czystej słomy pszennej i większej niż dla mieszanki słomy pszennej ze skrobią maniokową.

Warunki peletowania mieszanki słomy pszennej ze skrobią maniokową były odmienne niż dla czystej słomy pszennej i mieszanki słomy pszennej z węglanem wapnia.

Z mieszanki słomy pszennej z węglanem wapnia wytworzono pelety cechujące się największą gęstością pojedynczych peletów $853 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ i największymi naprężeniem ściskającym $4,17 \text{ MPa}$, które wymagały największej jednostkowej pracy ściskającej $6,10 \text{ mJ} \cdot \text{mm}^{-2}$ do ich zgniecenia.

W porównaniu do wymagań wytrzymałościowych kryterium największej absorpcji wody wymagało innych warunków peletowania. Aby osiągnąć największą absorpcję wody przez pelety zgniecone zagęszczanie materiału powinno się odbywać w warunkach najmniejszej wilgotności materiał 10% , przy najmniejszej wysokości matrycy 66 mm i najwyższej temperaturze materiału 108°C (z badanego zakresu zmiennych sterujących). Zagęszczanie mieszanki słomy pszennej ze skrobią maniokową wymaga niższej temperatury materiału 81°C , ale w obszarze optymalnej wilgotności materiału i wysokości matrycy charakterystyka absorpcji wody była tylko nieznacznie zróżnicowana. Między temperaturą materiał 81°C a 108°C różnica w wartości absorpcji wody wnosiła 9% , gdyż absorpcja wody zmniejszyła się z $3,15 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$ do $2,85 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$.

Dla optymalnych warunków, dla których absorpcja wody była największa, wartości parametrów wytrzymałościowych są nie do zaakceptowania, a nawet są nierealistyczne dla jednostkowej pracy ściskania i naprżeń ściskających.

Dlatego przyjęto założenie, że kryterium wyboru warunków peletowania powinno bazować na wymaganiach wytrzymałościowych peletów i gęstości jednostkowej peletów. Uwzględniono fakt, że parametry wytrzymałościowe peletów, a zwłaszcza praca jednostkowa ściskania i naprżenia ściskające bardzo wysoko korelowały z gęstością jednostkową peletów. Ponadto ocenę peletowania wyrażono przez kryterium gęstości jednostkowej peletów. Biorąc pod uwagę dotychczasowe analizy i wyjaśnienia założono, że gęstość jednostkowa peletów będzie również kryterium do wyznaczenia warunków peletowania względem E_j , E i σ_c . W tych warunkach technicznych otrzymano pelety o dobrych właściwościach wytrzymałościowych, a absorpcja wody była pochodną tych kryteriów. Dla optymalnych warunków peletowania przy udziale dodatków 4% , wilgotności materiału $23,3\%$, wysokości matrycy $78,5 \text{ mm}$ i

temperaturze materiału 80,2°C obliczono wartości parametrów na podstawie modeli matematycznych (Table S2). W tych warunkach technicznych wytworzono pelety, które obciążone promieniowo siłą ściskającą cechowały się jednostkową pracą ściskania 3,22 $\text{mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$, modelem sprężystości 5,78 MPa i naprężeniem ściskającym 2,68 MPa, a zdolność absorpcji wody przez pelety zgniecone wynosiła $2,60 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$. Ta wartość absorpcji wody była zbliżona do wartości podawanych w dostępnej literaturze (Pearson et al., 2000).

Dla tego scenariusza obliczone wartości parametrów były mniejsze od wartości największych, które uzyskano z modeli matematycznych dla warunków optymalnych. Dla tych warunków optymalnych wartości funkcji celów wynosiły odpowiednio $3,66 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$, 6,77 MPa, 3,06 MPa and $6,28 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$ (Table 3). Różnica względna między wartościami obliczonymi w odniesieniu do wartości najkorzystniejszych, wynosiła odpowiednio 12, 15, 12 i 59%. Z tego wynika, że wytrzymałość peletów wytwarzanych w warunkach optymalnych ze względu na gęstość pojedynczych peletów była tylko nieznacznie mniejsza od peletów uzyskanych w warunkach optymalnych osobno dla każdego parametru wytrzymałościowego. Dla tych rozpatrywanych warunków różnice między wartościami absorpcji wody przez pelety zgniecone były znaczące. Przedstawiona analiza i interpretacja wyników badań wskazuje, że w ocenie jakości peletów nie można bazować na kryterium zdolności absorpcji wody przez pelety zgniecone. Pelety wytworzone w takich warunkach byłyby nie do zaakceptowania ze względu na zbyt małą gęstość i wytrzymałość. Podczas transportu, przechowywania i manipulacji uległyby rozkruszeniu, zwiększyłoby się zapylenie, co ostatnie mogłoby się przełożyć na mniejszą jakość peletów zgniecionych jako śródmiejskie.

4.3. Publikacja 3

Wpływ zagęszczanej dawki czystej słomy pszennej i mieszanki słomy z węglanem wapnia lub skrobią maniokową na proces peletowania i jakość peletów

Matkowski P., Lisowski A., Świętochowski A. Effect of compacted dose of pure straw and blends of straw with calcium carbonate or cassava starch on pelletising process and pellet quality. *Journal of Cleaner Production*. 2020;277:1-12. doi:10.1016/j.jclepro.2020.124006.

Celem pracy było wyznaczenie charakterystyk rozmiarów cząstek i średniej geometrycznej wymiarów cząstek rozdrobnionej czystej słomy pszennej oraz mieszanek słomy pszennej z dodatkami skrobi maniokowej lub węglanu wapnia o zróżnicowanym udziale oraz

przeprowadzenie badań zagęszczenia tego materiału o różnej pojedynczej dawce wraz z wyznaczeniem gęstości peletów i parametrów wytrzymałościowych peletów podczas ich ściskania: modułu sprężystości, jednostkowej pracy pękania i naprężen ścisakujących. Niezgniecone i zgniecone pelety scharakteryzowano pod względem ich zdolności absorpcji wody.

Rozkład wymiarów cząstek dla mieszanek z 2% wt/wt udziałem dodatków o prawostronnej skośności były zbliżone kształtem do rozkładu czystej słomy pszennej (Fig. 2a) i znaczaco różniły się od rozkładów dla mieszanek z 6% udziałem dodatków o prawostronnej skośności (Fig. 2b), niezależnie od rodzaju dodatku. Średnia geometryczna wymiarów cząstek x_g dla czystej słomy pszennej była największa, 1,18 mm (Table S1). Dodatek o udziale 2% wt/wt spowodował zmniejszenie tej średniej do 0,95-0,96 mm, a o udziale 6% wt/wt do 0,71-0,74 mm, odpowiednio o 19% i 39%. Udział dodatków wpłynął statystycznie istotnie na zróżnicowanie wartości x_g , ale między rodzajami dodatków nie było takich różnic. Rozkład wymiarów cząstek mieszanek materiałów były wizualnie mniej strome niż czystej słomy pszennej (Fig. 4), ale różnice dla K_g między udziałem dodatków były bardzo małe i wynosiły 0,01.

Udział cząstek drobniejszych w rozkładach był znaczaco większy po dodaniu dodatków o udziale 6% niż 2%. Największe różnice wystąpiły w obszarze wartości średniej x_g i dla CS i CC wynosiły odpowiednio 13,06% i 15,94%. Przy małej ilości dodatków (2%) cząstki proszków przyczepiały się do powierzchni zewnętrznej cząstek słomy i tylko w nieznacznym stopniu wpłynęły na relacje między sąsiednimi cząstkami. Przy wilgotności 20% większa ilość proszku CS i CC (6%) w większym stopniu związała najdrobniejsze cząstki WS, przez tworzenie małych agregatów z najdrobniejszych cząstek, czego dowodem było 2-3-krotne zwiększenie udziału cząstek drobnych w rozkładzie mieszanek niż czystej słomy pszennej. W porównaniu do czystej słomy pszennej ten większy udział drobnych cząstek wpłynął znaczaco na zmniejszenie udziału cząstek średnich o wymiarze 1,94 mm w mieszankach CC i CS z 39,08% do odpowiednio 5,76% i 7,53%. Udział cząstek długich, powyżej 4 mm, się nie zmienił. Większa zmiana udziału cząstek w rozkładzie mieszanki z dodatkiem węglanu wapnia wynikała prawdopodobnie z lepszej zdolności łączenia się cząstek węglanu wapnia z cząstками słomy pszennej i lepszego wiążania wody z biomasy, zapewniając trwalsze wiązania, które utrzymały się nawet pod wpływem vibracji separatora, na którym separacja materiału się odbywała.

O większym udziale drobniejszych cząstek w mieszance z 6% wt/wt dodatkiem CC wskazuje wartość mass S_l , która wynosiła 1,95 (Table S1). Rozpiętość S_l była nieznacznie większa niż 1,0, co jest zgodne z opisywanym trendem. Wartości S_l były w odwrotnej relacji do wskaźnika jednorodności I_u . Jednorodność mieszanek była większa i rozkład wymiarów cząstek był bardziej płaski i zbliżony do symetrycznego.

Najbardziej zróżnicowanymi wymiarami cząstek charakteryzowały się rozkłady mieszanek z 2% udziałem dodatków, gdyż bezwymiarowe odchylenie standardowe s_g było największe i wynosiło 2,17-2,22 (Table S1). Zwiększenie dodatków do 6% przyczyniło się do zmniejszenia s_g do 2,08-2,10. Najmniejszym rozrzutem cechowały się wymiary cząstek czystej słomy pszennej, $s_g = 2,03$.

Krzywe przyrostu ciśnienia vs. przemieszczenia tłoka podczas zęgaczania dawki materiału miały typowy przebieg wykładowczy do chwili, gdy rozpoczął się ruch peletu (Fig. 3). W początkowych próbach, gdy nie było wystarczającego przeciwcisnienia w matrycy, po rozpoczęciu ruchu peletu ciśnienie w dalszym ciągu zwiększało się, aż do zakończenia skoku tłoka ustalonego czujnikiem krańcowym. Po uzyskaniu stabilności procesu, gdy przeciwcisnienie było wystarczające, ruch peletu rozpoczynał się po osiągnięciu ciśnienia maksymalnego, które natychmiast spadało. Było to normalne zachowanie się procesu (Stelte et al., 2011).

Przy zgęszczaniu mieszanki z dodatkiem CS przebiegi krzywych zagęszczania były mniej regularne i ciśnienie maksymalne było mniejsze zarówno w porównaniu do mieszanki z dodatkiem CC, jak i do czystej słomy pszennej. Te różnice w charakterystyce zagęszczania materiałów mogą wynikać z siły tarcia, które należało pokonać. Czysta słoma, zawierająca naturalne woski, wymagała największego ciśnienia (135 MPa) do pokonania tarcia. Mimo że zwiększające się tarcie generowało wzrost temperatury, to przy stosunkowo niskiej temperaturze materiału 78°C przyrost tej temperatury nie był na tyle duży, aby zmienić znacząco strukturę ligniny słomy pszennej. W niskich temperaturach powierzchniowe substancje ekstrakcyjne, w tym wypadku woski, mają działanie smarujące i zmniejszają tarcie w kanale matrycy, podczas gdy takiego efektu nie obserwuje się w podwyższonych temperaturach (Stelte et al., 2012). Z tego powodu w warunkach procesu ($t = 78^\circ\text{C}$, $MC = 20\%$), dla słomy pszennej istnieje maksymalne tarcie, które rozwija się wcześnie, przed wprawieniem peletu w ruch, po czym tendencja się zmniejsza, ze względu na charakter tarcia kinetycznego oraz zmniejszenia sumarycznej rzeczywistej powierzchni styku wierzchołków cząstek materiału z powierzchnią kanału matrycy.

Dodanie skrobi maniokowej o udziale 2%, której proszek przyczepiony do powierzchni wilgotnych cząstek (20% w.b.) wytworzył kleik, powodując zwiększenie adhezji do powierzchni otworu matrycy i między sąsiadującymi cząstками. Przyczyniło się to do wcześniejszego pojawienia się tarcia, które należało pokonać (Fig 3b). Po skoku tłoka 5 mm zaobserwowano zwiększenie się ciśnienia zagęszczania. Z tego powodu droga zagęszczania mieszanki z 2% udziałem skrobi maniokowej była najdłuższa. W porównaniu do czystej WS nie przełożyło się to do osiągnięcia większego ciśnienia maksymalnego. Przy większej koncentracji skrobi maniokowej (6%) prawdopodobnie doszedł większy efekt zmiany właściwości skrobi maniokowej pod wpływem temperatury 78°C powiązany z wilgotnością 20%, w których to warunkach skrobi maniokowej ulega plastyfikacji. Przy efekcie plastyfikacji tarcie było zbyt małe, aby powstało wystarczające przeciwcisnienie w komorze matrycy. Stąd podczas zagęszczania mieszanki z 6% skrobi maniokowej zauważalne ciśnienie zagęszczania zarejestrowano najpóźniej ze wszystkich analizowanych przypadków, gdy skok tłoka wynosił około 10 mm.

W porównaniu do skrobi maniokowej dodanie węglanu wapnia znacznie poprawiło charakterystyki zagęszczania. Największy efekt osiągnięto przy 6% (Fig. 3e) udziale dodatku węglanu wapnia. Początek zwiększenia się ciśnienia zagęszczania dla mieszanki z CC był podobny jak dla czystej słomy pszennej, który zaobserwowano przy skoku tłoka 9 mm. Wzrost ciśnienia dla mieszanki z węglanem wapnia był bardziej stromy, ale maksymalne ciśnienie, około 100 MPa, było o $\frac{1}{4}$ mniejsze niż dla czystej słomy pszennej. Krzywe ciśnienie-przemieszczenie dla mieszanki z 6% dodatkiem węglanu wapnia były najgładsze ze wszystkich kombinacji. Prawdopodobnie węglan wapnia połączony z wodą dał efekt środka smarnego, który zapobiegał zjawisku drgań ciernych (stick-slip). Temperatura materiału 78°C miała mały wpływ na zmianę właściwości termicznych czystego węglanu wapnia, gdyż do temperatury 224°C zachowuje on dość stabilne właściwości struktury (Rodriguez-Navarro et al., 2016). Wpływ węglanu wapnia na peletowanie należy rozpatrywać w połączeniu z podstawnym materiałem słomy pszennej jako mieszanki o określonej wilgotności i temperaturze materiału. Wilgotność materiału 20% była na tyle duża, że w połączeniu z temperaturą zwiększyła się podatność mieszanki materiału z węglanem wapnia na odkształcenia plastyczne i zmniejszyła się sprężystość materiału oraz zmniejszyło się tarcie w komorze matrycy i wymagane ciśnienie maksymalne zagęszczania było mniejsze niż dla czystej słomy pszennej. Materiał CC migrował do wody na powierzchni cząstek zwiększać lepkość wilgoci, a zwilżony obszar cząstek stawał się coraz bardziej plastyczny, również pod wpływem zmieniającej się wilgotności materiału w wyniku schnięcia cząstek stykających się z komorą matrycy co wpłynęło na kształt profilu

zagęszczania. Zidentyfikowany większy udział częstek drobniejszych w rozkładzie wymiarów mieszanki z węglanem wapnia i mniejsza średnia geometryczna wymiarów częstek dodatkowo korzystniej wpłynęły na wymienione procesy oraz dyslokację częstek podczas zagęszczania. Zachodziły zatem sprzężenia zwrotne, które powinny być bardziej szczegółowo zbadane.

Zgodnie z założeniami przeanalizowano 12 parametrów opisujących peletowanie i jakość peletów, które w połączeniu ze zmiennymi sterującymi przeanalizowano pod kątem wzajemnej spójności, których wyniki zestawiono w formie macierzy współczynników korelacji. Wykorzystując metodę korelacji cech ze wcześniej zaproponowanych parametrów usunięto dwa; naprężenia ściskające σ_c i przemieszczenie tła do maksymalnego ciśnienia aglomeracji s_m . Oba parametry miały duże wartości współczynników korelacji (Table S2), odpowiednio z jednostkową pracą zagęszczania E_j , $r = 0,861$ (dodatnia korelacja bardzo wysoka) i przesunięciem peletu w matrycy v_p , $r = -0,991$ (ujemna korelacja prawie pełna).

W większości przypadków czynniki główne (rodzaj dodatku, udział dodatku i dawka) miały statystycznie istotny wpływ na zróżnicowanie wartości parametrów kryterialnych. Długość peletów nie była statystycznie istotnie zróżnicowana względem czynników głównych (wartość poziomu istotności $p=0,1374-0,7467$), co jest logiczne, gdyż pelety były pocięte na założone odcinki. Długość peletów zawierała się w przedziale 15,80-16,77 mm. Ponadto absorpcja wody przez pelety zgniecone była statystycznie istotnie zróżnicowana względem dawki ($p < 0,0001$), a nie stwierdzono takich różnic w odniesieniu do rodzaju dodatku i jego udziału, gdyż wartości p wynosiły odpowiednio 0,9116 i 0,5337.

Średnica peletu była większa niż średnica konstrukcyjna otworu matrycy, co oznacza, że pelety ekspandowały po opuszczeniu matrycy oraz w czasie ich tygodniowego przechowywania. Pelety uformowane przy dawce 50 mg miały średnicę 8,04 mm, a przy dawkach 100 i 150 mg średnica peletów była większa i jednakowa, 8,07 mm. Przy najmniejszej dawce ekspansja peletów była najmniejsza, a zatem trwałość wiązań między częstekami materiałów była największa. Pelety z czystej WS miały najmniejszą średnicę 8,03 mm, a z dodatkami CS i CC średnica peletów wynosiła odpowiednio 8,06 mm i 8,08 mm. Podobnie udział dodatków spowodował zwiększenie ekspansji, gdyż średnica peletów dla mieszanek wynosiła 8,07-8,08 mm. Średnica peletów przeciętnie korelowała z gęstością pojedynczych peletów ($r = 0,73$), mimo ich ekspansji.

Przesunięcie peletu w matrycy v_p było najmniejsze przy średniej dawce materiału 100 mg i wynosiło 0,37 mm. Statystycznie istotnie większe $v_p = 0,42$ mm (o 13%) było przy najwyższej dawce 50 mg i największe $v_p = 1,13$ mm (3-krotne) zarejestrowano przy największej dawce 150 mg. Z tego wynika, że istnienie wartość optymalna dawki materiału, przy której v_p jest

najmniejsze. Przesunięcie peletu w matrycy odzwierciedla wysokość peletu uformowanego przy jednorazowej dawce materiału. Mniejsza dawka materiału oznaczała mniejszą wysokość materiału do zagęszczania i zgodnie z teorią łatwiej jest zagęścić materiał o mniejszej grubości. Przesunięcie peletu w matrycy było najmniejsze podczas peletowania czystej słomy pszennej, 0,39 mm i zwiększyło się dla mieszanek z dodatkami skrobi maniokowej i węglanu wapnia, odpowiednio o 51% i 97%. W stosunku do czystej słomy pszennej 2% udział dodatków spowodował wydłużenie drogi przesunięcia peletu w matrycy o 100%, a przy 6% v_p zwiększyło się o 64%.

Najmniejsze wartości przesunięcia peletu w matrycy można osiągnąć przy dawkach materiału 80-100 mg i bez udziału dodatków, przy czym udział dodatków w paśmie tego zakresu dawek nie wpływał znaczco na zwiększenie v_p .

Jednostkowa praca zagęszczania, odniesiona do suchej substancji L_s , była największa podczas peletowania materiału przy dawce 100 mg i wynosiła $70,8 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$. Zmniejszenie dawki o połowę zmniejszyło zapotrzebowanie na tę pracę o 48%. Przy dawce materiału 150 mg L_s zmniejszyła się nieznacznie (o 5%) względem dawki 100 mg. Praca L_s była ujemnie skorelowana z przesunięciem peletu w matrycy, $r = -0,435$ (korelacja przeciętna) oraz dodatnio skorelowana z przemieszczeniem tłoka, $r = 0,477$ (korelacja przeciętna). Im dłuższą drogę pokonywał tło tym większą pracę należało wykonać w celu zagęszczania materiału.

Podczas zagęszczania czystej słomy pszennej wykonano największą pracę $L_s 99,77 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$, a po dodaniu skrobi maniokowej i węglanu wapnia jednostkowa praca zgęszczania zmniejszyła się, odpowiednio ponad 3,3- i 2,8-krotnie. Udział dodatków miał zatem istotny i odwrotnie proporcjonalnie wpływ, gdyż dla dodatku 2% i 6% jednostkowa praca zgęszczania zmniejszyła się odpowiednio o 2,1- i 3,6-krotnie.

Wartości jednostkowej pracy zagęszczania były stosunkowo duże, gdyż ustawniona wysokość matrycy wynosiła 80 mm, a wilgotność materiału 20% była w pobliżu wartości optymalnej. W tych warunkach wytworzyło się relatywnie wysokie przeciwiśnienie w komorze matrycy, które należało pokonać, wykonując dużą pracę zagęszczania.

Jednostkowa praca przesuwania peletu (L_v) ($5,75-27,31 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$) była 3,6-4,8-krotnie mniejsza od jednostkowej pracy zagęszczania (L_s) ($27,37-99,77 \text{ kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$)(Table 1). Obie prace były ze sobą skorelowane, $r = 0,427$ (korelacja przeciętna), co oznacza, że większe przeciwiśnienie w komorze matrycy, które sprzyjało lepszemu zagęszczaniu należało pokonać podczas peletowania, jak i podczas przesuwania uformowanego peletu w komorze matrycy. Duże różnice w wartościach tych prac wskazują, że korzystne było zagęszczanie małych dawek materiału.

Gęstość pojedynczych peletów, odniesiona do suchej substancji ρ_p , uformowanych przy dawce 100 mg była największa, $722 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ (Table 1). Zmniejszenie dawki do 50 mg lub zwiększenie do 150 mg spowodowało zmniejszenie gęstości odpowiednio o 14% i 8%. Wysoka korelacja ($r = 0,615$)(Tabela S2) między jednostkową pracą zgęszczania a gęstością pojedynczych peletów jest dowodem na efektywność peletowania. Efekt zagęszczania i wytrzymałości peletów na ściskanie (bardzo wysoka dodatnia korelacja, $r = 0.806$) wskazuje, że powstałe wiązania między cząstkami były trwałe. Warunki do powstania trwałych mechanizmów wiązań były tym lepsze im większe było przeciwiśnienie w komorze matrycy, które należało pokonać, wykonując jednostkową pracę zagęszczania. Dodanie dodatków skrobi maniokowej i węglanu wapnia zwiększyło gęstość pojedynczych peletów, odpowiednio o 24% i 39%. Zastosowanie i węglanu wapnia jako dodatku było statystycznie istotnie korzystniejsze niż dodanie skrobi maniokowej, a względna różnica wynosiła 12%. Udział dodatków 2 i 6% zwiększył ρ_p , odpowiednio o 30% i 33%, ale dynamika przyrostu wartości między 2 i 6% wt/wt była silnie spłaszczone(Fig. S3). Wyniki tych badań potwierdzają wnioskowanie, że zwiększenie dodatku CC powyżej 2% wt/wt, przy których powstały samoistnie drobne agregaty z częstek najdrobniejszych skutecznie poprawiły podatność materiału na zagęszczanie uzyskanie peletów o większej gęstości.

Pelety wytworzone w tych warunkach miały nie tylko największą gęstość, ale cechowały się największą odpornością na obciążenie ściskające, gdyż jednostkowa praca ściskania E_j osiągnęła wartość maksymalną, $5,52 \text{ J}\cdot\text{mm}^{-2}$ (Fig. S4). Oba parametry były wysoko skorelowane, $r = 0,615$ (Table S2). Wyniki jednostkowej pracy ściskającej, przy których pelety pękały, potwierdzają dotychczasowe analizy odnośnie dawki materiału 100 mg, korzystniejszego dodatku w formie węglanu wapnia niż skrobi maniokowej, gdyż E_j wynosiły, odpowiednio $4,85 \text{ J}\cdot\text{mm}^{-2}$ i $3,19 \text{ J}\cdot\text{mm}^{-2}$ (Table 1). Jak wspomniano E_j bardzo wysoko korelowała z naprężeniami maksymalnymi, które należało pokonać podczas ściekania ($r=0,861$). Można zatem wnioskować, że wiązania między cząstkami materiałów były trwałe i że dodanie dodatków CS, a zwłaszcza CC o udziale 2-4% wt/wt poprawiło warunki tych wiązań, zwłaszcza przy wilgotności materiału 20% i temperaturze materiału 78°C .

Moduł sprężystości przy ściskaniu E był silnie uzależnionych od udziału dodatku (Fig. S5), ale relacje między tymi wielkościami były odwrotne, gdyż współczynnik korelacji był ujemny, $r = -0,420$. Praktycznie w zakresie udziału dodatków do 2% wartości modułu sprężystości były statystycznie nieistotne i wynosiły około 7 MPa. Rodzaj dodatków praktycznie nie zmieniał wartości modułu sprężystości, ale dodatek węglanu wapnia poprawił plastyczność mieszanek, zmniejszając nieznacznie moduł sprężystości.

Pelety uformowane przy dawce materiału 100 mg charakteryzowały się relatywnie największym modułem sprężystości, 6,67 MPa. Moduł sprężystości zmniejszył się dla peletów wytworzonych przy zastosowaniu, zarówno mniejszej dawki 50 mg, jak i większej dawki 150 mg i wynosił odpowiednio 6,37 MPa i 5,79 MPa (Table 1).

Moduł sprężystości E ujemnie korelował z absorpcją wody przez pelety niezgniecione, $r = -0,388$ (korelacja przeciwna), natomiast nie stwierdzono korelacji z absorpcją wody przez pelety zgniecione, mimo że tendencja relacji była również ujemna (Table S2).

Ważnym parametrem cechującym jakość peletów przeznaczonych na ściółkę jest absorpcja wody przez pelety zgniecione, odniesiona do suchej substancji. Najlepszą absorpcją wody $5,98 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1}$ cechowały się pelety wytworzone przy najmniejszej dawce materiału 50 mg (Table 1). W zakresie stosowanej dawki materiału relacja między absorpcją wody przez pelety zgniecione a dawką miała postać pełnej funkcji parabolicznej, dla której $k_{\min} = 3,85 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1}$ osiągnęło przy $D = 112 \text{ mg}$ (Fig. S6). Rodzaj dodatku oraz jego udział nie miały wpływu na zróżnicowanie wartości absorpcji wody przez pelety zgniecione. Ujemne korelacje absorpcji wody przez pelety zgniecione z jednostkową pracą przesunięcia peletów w matrycy ($r = -0,410$), gęstością pojedynczych peletów ($r = -0,375$) i naprężeniami ściskającymi ($r = -0,278$) są dowodem, że warunki peletowania, które korzystnie wpływają na proces zagęszczania, jak i jakość peletów nie pozwoliły na uformowanie peletów, które po ściśnięciu cechowały się dobrą absorpcją wody. Pelety o mniejszej gęstości i ulegające łatwiejszemu pęknięciu pod wpływem obciążenia ściskającego, ze względu na mniejsze naprężenia wewnętrzne, które należało pokonać, cechowały się zapewne również słabszymi wiązaniami między częstekami uzyskały większe jednostkowe pole powierzchni ułatwiające wchłanianie wody.

Dla porównania wyniki absorpcji wody przez pelety niezgniecione są dowodem, że zasadnicze relacje między czynnikami zostały utrzymane, a dodatnia korelacja z absorpcją wody przez pelety zgniecione jest tego potwierdzeniem, mimo że jest korelacja słaba, $r = 0,285$ (Table S2). Więcej było statystycznie istotnych korelacji między absorpcją wody przez pelety niezgniecione z parametrami charakteryzującymi peletowanie i jakość peletów. Wysoką absorpcję wody przez pelety niezgniecione (około $5 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1}$) cechowały się zarówno te produkty wytworzone przy małej dawce materiału 50 mg, jak i największej 150 mg oraz przy największym udziale dodatków 6% (Fig. S7). Dodatek skrobi maniokowej miał większy wpływ na absorpcję wody przez pelety niezgniecione niż dodatek węglanu wapnia, gdyż wartości absorpcji wynosiły odpowiednio $3,36 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1}$ i $2,96 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1}$, a pelety wytworzone z czystej słomy pszennej cechowały się najmniejszą absorpcją wody, $2,29 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1}$.

5. Wnioski

Szczegółowe konkluzje znajdują się w poszczególnych artykułach w języku angielskim.

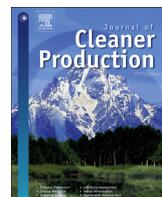
Na podstawie rezultatów przedstawionych w trzech spójnych tematycznie publikacjach naukowych stanowiących niniejszą rozprawę doktorską sformułowano następujące wnioski, które odnoszą się do celu pracy i sformułowanych hipotez:

1. Optymalne warunki peletowania (wilgotność, temperatura i dawka materiału, rodzaj i udział dodatków wiążących oraz wysokość matrycy) były odmienne dla kryteriów wytrzymałościowych i gęstości peletów niż dla kryterium absorpcji wody przez pelety zgniecione.
2. Proces peletowania mieszanki słomy pszennej z dodatkami był bardziej efektywny niż ten z czystą słomą pszenną.
3. Pelety wytworzone z mieszanki WS z dodatkiem CC cechowały się większą gęstością i lepszymi parametrami wytrzymałościowymi, a pelety zgniecione lepszą absorpcją wody niż z dodatkiem CS.
4. Jednostkowa praca ściskania, moduł sprężystości i naprężenia ściskające peletów dodatnio i wysoko korelowały między wzajemnymi wartościami, a wszystkie trzy wskaźniki wytrzymałościowe ujemnie korelowały z absorpcją wody przez pelety zgniecione.
5. Optymalną gęstość pojedynczych peletów osiągnięto przy 100 g dawki materiału, 4% stężeniu dodatków, 23% wilgotności materiału, 78 mm wysokości matrycy i 80°C temperaturze materiału.
6. Pelety wytworzone w optymalnych warunkach dla gęstości charakteryzowały się dobrymi wskaźnikami wytrzymałościowymi na ściskanie, a pelety po zgnieceniu cechowały się dobrą zdolnością absorpcji wody.
7. Dla warunków optymalnych jednostkowa prac ściskania peletów wynosiła $3,22 \text{ mJ} \cdot \text{mm}^{-2}$, moduł sprężystości 5,78 MPa i naprężenia ściskające 2,68 MPa, a absorpcja wody przez pelety zgniecione $2,60 \text{ g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1} \text{ DM}$.

6. Spis piśmiennictwa

- Baxter, M., Bailie, C.L., O'Connell, N.E., 2018. An evaluation of potential dustbathing substrates for commercial broiler chickens. *Animal* 12, 1933–1941. doi.org/10.1017/S1751731117003408
- Berghel, J., Frodeson, S., Granström, K., Renström, R., Ståhl, M., Nordgren, D., Tomani, P., 2013. The effects of kraft lignin additives on wood fuel pellet quality, energy use and shelf life. *Fuel Processing Technology* 112, 64–69. https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2013.02.011
- Braccini, I., Pérez, S., 2001. Molecular basis of Ca²⁺-induced gelation in alginates and pectins: The egg-box model revisited. *Biomacromolecules* 2, 1089–1096. doi.org/10.1021/bm010008g
- Burt, C.D., Cabrera, M.L., Rothrock, M.J., Kissel, D.E., 2018. Urea Hydrolysis and Calcium Carbonate Precipitation in Gypsum-Amended Broiler Litter. *Journal of Environmental Quality* 47, 162–169. doi.org/10.2134/jeq2017.08.0337
- Cengiz, Ö., Hess, J.B., Bilgili, S.F., 2011. Effect of bedding type and transient wetness on footpad dermatitis in broiler chickens. *Journal of Applied Poultry Research* 20, 554–560. doi.org/10.3382/japr.2011-00368
- Chevanan, N., Womac, A.R., Bitra, V.S.P., Igathinathane, C., Yang, Y.T., Miu, P.I., Sokhansanj, S., 2010. Bulk density and compaction behavior of knife mill chopped switchgrass, wheat straw, and corn stover. *Bioresource Technology* 101, 207–214. doi.org/10.1016/j.biortech.2009.07.083
- Frodeson, S., Henriksson, G., Berghel, J., 2019. Effects of moisture content during densification of biomass pellets, focusing on polysaccharide substances. *Biomass and Bioenergy* 122, 322–330. doi.org/10.1016/j.biombioe.2019.01.048
- Frodeson, S., Henriksson, G., Berghel, J., 2018. Pelletizing pure biomass substances to investigate the mechanical properties and bonding mechanisms. *BioResources* 13, 1202–1222. doi.org/10.15376/biores.13.1.1202-1222
- Hafeez, A., Suhail, S.F., Durrani, F.R., Dawood, J., Ahmad, I., Chand, N., ALTAFUR, R., 2009. Effect of different types of locally available litter materials on the performance of broiler chicks. *Sarhad J. of Agric* 25, 581–586.
- Hammes, F., Boon, N., de Villiers, J., Verstraete, W., Siciliano, S.D., 2003. Strain-specific ureolytic microbial calcium carbonate precipitation. *Applied and Environmental Microbiology* 69, 4901–4909. doi.org/10.1128/AEM.69.8.4901-4909.2003
- Huang, Y., Yoo, J.S., Kim, H.J., Wang, Y., Chen, Y.J., Cho, J.H., Kim, I.H., 2009. Effect of bedding types and different nutrient densities on growth performance, visceral organ weight, and blood characteristics in broiler chickens. *Journal of Applied Poultry Research* 18, 1–7. doi.org/10.3382/japr.2007-00069
- Kheravii, S.K., Swick, R.A., Choct, M., Wu, S.B., 2017. Potential of pelleted wheat straw as an alternative bedding material for broilers. *Poultry science* 96, 1641–1647. doi.org/10.3382/ps/pew473
- Labbé, R., Paczkowski, S., Knappe, V., Russ, M., Wöhler, M., Pelz, S., 2020. Effect of feedstock particle size distribution and feedstock moisture content on pellet production efficiency, pellet quality, transport and combustion emissions. *Fuel* 263. doi.org/10.1016/j.fuel.2019.116662
- Lisowski, A., Dąbrowska-Salwin, M., Ostrowska-Ligęza, E., Nawrocka, A., Stasiak, M., Świętochowski, A., Klonowski, J., Sypuła, M., Lisowska, B., 2017. Effects of the biomass moisture content and pelleting temperature on the pressure-induced agglomeration process. *Biomass and Bioenergy* 107, 376–383. doi.org/10.1016/j.biombioe.2017.10.029
- Lisowski, A., Dąbrowska-Salwin, M., Świętochowski, A., Motyl, T., Pajewski, M., 2013. Pressure agglomeration of biomass with additive of rapeseed oil cake or calcium carbonate. *Commission Motorization Energétiques Agriculture* 13, 95–102.
- Lisowski, A., Matkowski, P., Dąbrowska, M., Piątek, M., Świętochowski, A., Klonowski, J., Mieszkalski, L., Reshetiuk, V., 2020. Particle Size Distribution and Physicochemical Properties of Pellets Made of Straw, Hay, and Their Blends. *Waste and Biomass Valorization* 11, 63–75. doi.org/10.1007/s12649-018-0458-8
- Lisowski, A., Pajor, M., Świętochowski, A., Dąbrowska, M., Klonowski, J., Mieszkalski, L., Ekielski, A., Stasiak, M., Piątek, M., 2019. Effects of moisture content, temperature, and die thickness on the compaction process, and the density and strength of walnut shell pellets. *Renewable Energy* 141, 770–781. doi.org/10.1016/j.renene.2019.04.050
- Malone, G., Gedamu, N., 1995. Pelleted newspaper as a broiler litter material. *Applied Poultry Science* 4, 49–54. doi.org/doi.org/10.1093/japr/4.1.49
- Mani, S., Tabil, L.G., Sokhansanj, S., 2003. An overview of compaction of biomass grinds. *Powder Handling & Processing*. 15, 160–168.

- Miller, J., 2004. Alternative litter materials for poultry. NSW Agriculture.
- Monira, K.N., Islam, M.A., Alam, M.J., Wahid, M.A., 2003. Effect of litter materials on broiler performance and evaluation of manureal value of used litter in late autumn. *Asian-Australasian Journal of Animal Sciences* 16. doi.org/10.5713/ajas.2003.555
- Nielsen, N.P.K., Gardner, D.J., Poulsen, T., Felby, C., 2009. IMPORTANCE OF TEMPERATURE, MOISTURE CONTENT, AND SPECIES FOR THE CONVERSION PROCESS OF WOOD RESIDUES INTO FUEL PELLETS. *Wood and Fiber Science* 41, 414–425.
- Pearson, E.G., Leavengood, S., Reeb, J.E., 2000. Comparison of the absorptive capacity of shavings of western juniper, western redcedar, and Douglas-fir for animal bedding. *Forest Products Journal* 50, 57–60.
- Podlaski, S.Z., Wzorek, H., Chomontowski, C.M., 2019. Effects of the physicochemical properties of pellets on the germination of pelleted sugar beet seeds. *International Agrophysics* 33, 175–183. doi.org/10.31545/intagr/109239
- Rodriguez-Navarro, C., Elert, K., Ševčík, R., 2016. Amorphous and crystalline calcium carbonate phases during carbonation of nanolimes: Implications in heritage conservation. *CrystEngComm* 18, 6594–6607. doi.org/10.1039/c6ce01202g
- Roffael, E., 2016. Significance of wood extractives for wood bonding. *Applied Microbiology and Biotechnology* 100, 1589–1596. https://doi.org/10.1007/s00253-015-7207-8
- Rossouw, P.E., Kamelchuk, L.S., Kusy, R.P., 2003. A fundamental review of variables associated with low velocity frictional dynamics. *Seminars in Orthodontics* 9, 223–235. doi.org/10.1016/j.sodo.2003.08.003
- Sedláček, P., Mucha, N., Pečtová, I., Fečko, P., 2007. Ekologické pelety z hnědého uhlí a biomasy. *Acta Montanistica Slovaca Ročník* 12, 274–277.
- Stasiak, M., Molenda, M., Bańda, M., Wiącek, J., Parafiniuk, P., Gondek, E., 2017. Mechanical and combustion properties of sawdust—Straw pellets blended in different proportions. *Fuel Processing Technology* 156, 366–375. doi.org/10.1016/j.fuproc.2016.09.021
- Stasiak, M., Molenda, M., Gancarz, M., Wiącek, J., Parafiniuk, P., Lisowski, A., 2018. Characterization of shear behaviour in consolidated granular biomass. *Powder Technology* 327, 120–127. doi.org/10.1016/j.powtec.2017.12.037
- Stelte, W., Clemons, C., Holm, J.K., Ahrenfeldt, J., Henriksen, U.B., Sanadi, A.R., 2012. Fuel Pellets from Wheat Straw: The Effect of Lignin Glass Transition and Surface Waxes on Pelletizing Properties. *Bioenergy Research* 5, 450–458. doi.org/10.1007/s12155-011-9169-8
- Stelte, W., Holm, J.K., Sanadi, A.R., Barsberg, S., Ahrenfeldt, J., Henriksen, U.B., 2011. Fuel pellets from biomass: The importance of the pelletizing pressure and its dependency on the processing conditions. *Fuel* 90, 3285–3290. doi.org/10.1016/j.fuel.2011.05.011
- Tarasov, D., Shahi, C., Leitch, M., 2013. Effect of Additives on Wood Pellet Physical and Thermal Characteristics: A Review. *ISRN Forestry* 2013, 1–6. doi.org/10.1155/2013/876939
- Uzun, B.B., Yaman, E., 2014. Thermogravimetric characteristics and kinetics of scrap tyre and Juglans regia shell co-pyrolysis. *Waste Management and Research* 32, 961–970. doi.org/10.1177/0734242X14539722
- Whittaker, C., Shield, I., 2017. Factors affecting wood, energy grass and straw pellet durability – A review. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 71, 1–11. doi.org/10.1016/j.rser.2016.12.119
- Xia, X., Zhang, K., Xiao, H., Xiao, S., Song, Z., Yang, Z., 2019. Effects of additives and hydrothermal pretreatment on the pelleting process of rice straw: Energy consumption and pellets quality. *Industrial Crops and Products* 133, 178–184. https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2019.03.007
- Xu, H., Zhou, S., Jin, X., Liu, Y., 2014. Monte Carlo simulation of the induction time and particle size distribution in the nucleation of calcium carbonate. *Powder Technology* 253, 242–246. doi.org/10.1016/j.powtec.2013.11.003
- Youssef, I.M.I., Beineke, A., Rohn, K., Kamphues, J., 2010. Experimental study on effects of litter material and its quality on foot pad dermatitis in growing Turkeys. *International Journal of Poultry Science* 9, 1125–1135. doi.org/10.3923/ijps.2010.1125.1135
- Zamri, M.H., Akil, H.M., Bakar, A.A., Ishak, Z.A.M., Cheng, L.W., 2012. Effect of water absorption on pultruded jute/glass fiber-reinforced unsaturated polyester hybrid composites. *Journal of Composite Materials* 46, 51–61. doi.org/10.1177/0021998311410488



Pelletising pure wheat straw and blends of straw with calcium carbonate or cassava starch at different moisture, temperature, and die height values: Modelling and optimisation

Patryk Matkowski, Aleksander Lisowski*, Adam Świętochowski

Department of Biosystems Engineering, Institute of Mechanical Engineering, Warsaw University of Life Sciences, Nowoursynowska 166, 02-787, Warsaw, Poland



ARTICLE INFO

Article history:

Received 29 April 2020

Received in revised form

9 June 2020

Accepted 18 June 2020

Available online 12 July 2020

Handling editor: Zhihu Mi

Keywords:

Biomass

Blending

Pelletising process

Pellet density

Regression models

ABSTRACT

This study aimed to identify the optimal conditions for pelletising wheat straw (WS) and blends with cassava starch (CS) or calcium carbonate (CC) at a 2–10% wt/wt additive ratio. The process was investigated in a die with an open chamber having an opening diameter of 8 mm and heights of 66, 76, and 86 mm. The moisture and temperature of the material were 10–30% w.b. and 78–108 °C, respectively. The piston displacement at maximum agglomeration pressure, pellet shift in the die, specific compaction work, specific work for pellet shifting, and additional single pellet density were suitable characterising features of the pelletising process. Regression models were developed for the prediction of the features; these models were optimised by determining the most favourable control variables and target function values. The optimal single pellet density was achieved at 4% wt/wt additive ratio, 23% w.b. moisture content, 78 mm die height, and 80 °C material temperature. Under these conditions, the piston displacement, specific compaction work, and specific work for pellet shifting in the die were 27, 43, and 34% lower than their respective maximum values, while the pellet shift was higher by 29% because of the minimum target function. Adding CC was more favourable than adding CS because the single pellet density of the WS blend with CC (853 kg m^{-3}) was 20% higher than that of the blend with CS as the additive. Optimal conditions for pellet forming are an important indication for their use in actual industrial production.

© 2020 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

An interesting approach to producing alternative bedding material is straw pelletising, which has been the subject of various recent studies (Baxter et al., 2018; Kheravii et al., 2017). The idea is not new; in 1995, Malone and Gedamu used pellet straw with binders as additives (Malone and Gedamu, 1995). The pellets were degraded to a dark brown, moisture-absorbing material having a consistency that is similar to that of sawdust (Baxter et al., 2018). Pelleted straw, chopped wheat straw (WS), wood chips, rice straw, and shredded paper have been compared as materials for litter (Kheravii et al., 2017). The litter on pelleted straw was less clumped than that on chopped straw and shredded paper. Various studies suggest that the type of litter and litter blends affect the production

efficiency and welfare of birds (Huang et al., 2009; Youssef et al., 2010). However, certain studies have shown that the type of litter does not affect the performance and welfare of the birds (Hafeez et al., 2009). Because the test results were inconclusive and because pelleted WS has a positive effect on the efficiency and broiler welfare at an early age (Kheravii et al., 2017), a more accurate investigation of the conditions to produce pellets and the influence of additives in improving the conditions of the densification process and the quality of litter of pelleted straw is required. Blending different types of biomass to achieve better pelletising features represents a potential method for upgrading the pelletising process of biomass (Wang et al., 2017). Other widely used solutions include the optimisation of devices and processes, preliminary processing of the raw material, and pellet cooling (Stelte et al., 2012a). Favourable pelletising results were obtained by adding wood biomass to straw (Stasiak et al., 2017). The results show that sawdust can act as a good binder, lower the energy requirement, and improve the pellet quality.

* Corresponding author.

E-mail address: aleksander_lisowski@sggw.edu.pl (A. Lisowski).

Nomenclature

A	additive ratio (%)
d	pellet diameter; die hole diameter (mm)
F	compaction force (N)
l_a	agglomerate length (mm)
l_c	die height (mm)
l_p	pellet length (mm)
L_s	specific compaction work ($\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$)
L_v	specific work for pellet shifting in the die ($\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$)
MC	moisture content (% w.b.)
P	compaction pressure (MPa)
s_e	end piston displacement (mm)
s_m	piston displacement to the maximum pressure (during pellet formation) (mm)
t	material temperature (°C)
v_p	pellet shift in the die (mm)
ρ_p	single pellet density ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)
CC	calcium carbonate
CS	cassava starch
WS	wheat straw

Adding neutral materials, for example calcium compounds (calcium hydroxide and calcium carbonate (CC)), improves the flexibility of organic substances, and the substances can be granulated. It also makes obtaining the granules in the form of pellets easier (Sedláček et al., 2007), and a small addition of such material often significantly reduces dustiness (Greinert et al., 2019). CC increases the melting point of ash, thereby decreasing the risk of contamination of the grate slag. Calcium additive absorbs decaying heat, simultaneously lowering the burning temperature and decreasing the amount of NOx. Adding calcium or dolomite ashes containing calcium compounds such as CaCO₃, CaO, and Ca(OH)₂ decreases the emission of gases apart from CO₂, such as NOx, CO, and SO₂, and reduces the emission of ash in the atmosphere, especially when burning is not conducted under the optimal conditions (Greinert et al., 2019).

However, the densification process leads to binding of water present in the plant material (Lisowski et al., 2013). Furthermore, the addition of gypsum to the litter lowers its pH because of the precipitation of CC from gypsum-derived calcium and litter bicarbonate (Hammes et al., 2003). The addition of calcium to straw may increase the mineralisation of N and help in the formation of NH₄⁺ by increasing the activity of urease and buffering against significant growth of pH (Burt et al., 2018). This is another inspiration to undertake research on the production of pellets from a blend of straw with added CC.

Based on state-of-the-art studies, it can be concluded that additives improve the quality and ecological features of the pellets. Using binders increases the durability of pellets and enhances the energetic efficiency of the pressurised agglomeration process (Mani et al., 2003). Binders can be natural substances or special additives; an example of a binder is CC. CC particles agglomerate and then randomly combine with larger agglomerates (Xu et al., 2014). This indicates that CC can bind with other particles and can form durable bonds with them. CC binds with water molecules in biomass and allows for the agglomeration of materials with a higher MC without any requirement of drying.

Cassava starch (CS) is characterised by a high viscosity and freeze resistance, and its gelatinizing properties improve at 80–90 °C, which is important in pellets production. CS is used as a thickener, binder, texturizer, stabilizer and filler. It has a high

viscosity and long texture which increase the compaction effect, and have a low gelation temperature (Breuninger et al., 2009).

The selection of additives was dictated by their physicochemical properties. Both powders are characterised by a relatively high hygroscopicity and can change the external friction between the particles of the blends and the internal die wall.

The conversion of biomaterials into densified pellets is influenced by various physical properties, such as MC, particle size distribution, bulk density, specific material density, pre-treatment, type and amount of additives, and operating parameters such as die size, die height/diameter ratio, material temperature (t), and compaction pressure (Lisowski et al., 2017).

The relationships between input variables and parameters are described by various empirical models. Considering the purpose of the present study, various models linking the density of straw grinds with pressure have been proposed (Spencer et al., 1950). The stress-density model explains the behaviour of volumetric feed materials and can be used to calculate the particle stiffness, which may be required to develop numerical models (Bilanski et al., 1985). The behaviour of densified straw when compacted to a high density in a circular die has been studied (O'Dogherty, 1989). A second-order polynomial relation between the pressure and density of the compacted coconut core at different moisture and particle sizes was proposed (Viswanathan and Gothandapani, 1999). The compaction models of Cooper and Eaton (1962) suited majority of agricultural materials well. The optimal pelleting conditions for a blend of wheat and rice straw were set based on regressive models by applying the five-factor Box-Behnken experimental design technique (Wang et al., 2017). The available literature lacks a generalised approach to modelling process parameters of pelleting with respect to the blend of WS with CS and CC as additives.

The aim of this study was to investigate the process of pelleting pure WS with CC and CS as additives. The influence of several factors on the piston displacement during pellet formation (s_m), pellet shift in the die (v_p), specific compaction work (L_s), specific work for pellet shifting in the die (L_v), and single pellet density (ρ_p) was investigated. Variable factors were MC and t, die height (l_c), and additive ratio (A) expressed as a percentage. The experimental data were processed via variation analysis, regression analysis, and feature correlation analysis. After selecting the parameters, mathematical models were developed and pelleting conditions were optimised based on the adapted factors of the process. The novelty of the work was the selection of parameters describing the compaction process and determination of optimal conditions for pelleting blends of wheat straw with binding additives.

Optimisation of formulation and process input variables, with respect to pellets density and parameters characterising the pelleting process, is not trivial because among steering variables the temperature and moisture move in opposite directions of each other. Models-predicted conditions with complicated relationships should be a guide in making decisions about the moisture and temperature of the material and the additive ratio and die height to achieve acceptable pellets density.

2. Material and methods

2.1. Material and additives

Milled WS, with a MC of 10, 20, and 30% w.b. and geometric mean particles size of 1.18 mm, and the blend with added CS and CC at 2, 6, and 10% wt/wt were used for the formation of pellets. After initial WS moisture testing (about 7.5% w.b.), the demineralized water was added according to the relation: $m_{\text{H}_2\text{O}} = m_1(1 - MC_1)/(1 - MC_2)$, where $m_{\text{H}_2\text{O}}$ is the mass of water to refill, g; m_1 is the initial mass of WS, g; MC_1 is the initial WS moisture; MC_2 is the

desired WS moisture. The material was stabilized in a climatic chamber for at least one week. The material was compacted in the die with an open chamber having heights of 66, 76, and 86 mm and temperature of 78, 93, and 108 °C (Table S1 of the SI).

2.2. Pelleting platform and process

The pelleting set included a chrome-plated steel die with outer and interior diameters and height of 60 mm, 8 mm, and 300 mm, respectively; two heating elements with a total power of 1.3 kW; type J thermocouples and an 3710 ESM controller to control the temperature of the heating elements; three integrated pressure and temperature sensors (CT6V-15M-TCJ-M14, OneHalf20 Ontario, Canada) which were used to measure the temperature at heights of 15, 30, and 45 mm of the die base; and a limit sensor (Fig. S1 of the SI). The Matest programme was used to control the operation of the universal test machine TIRATest, which was also used to record data for the force-displacement relation with a 0.03-mm step. The temperature of the heating elements was set at 116, 140, or 164 °C which corresponded to a *t* of 78, 93, and 108 °C. The heating elements were switched on for 1 h before pelleting to evenly distribute heat within the die. The limit sensor determined the position of the piston relative to the bottom of the die at heights of 60, 70, and 80 mm. The length of the agglomerate filling the die hole was given by *l_a* (Fig. 1a). The mass of a single material dose was 0.2 g and was estimated based on tests in the range of 0.05–0.30 g to assess the durability of the obtained pellets and guided by the economics of conducting the experiment. The material dose was weighed on an analytical balance (WPA 40/160/C/1, Radwag, Radom, Poland) with an accuracy of ±0.0001 g.

Pelleting involved the following steps. The open chamber of the die was clogged from the bottom with pellets, and a portion of the designated volume, equivalent to a final piston position in the range of 60–80 mm, was added. A dose of 0.2 g was added to the loose material, and the material was compacted until the limit sensor was switched on by the limiter fixed on the guide, which determined the assumed *l_c*. In the pelleting process, the pressure increased to the maximum value; at this time, the piston moved a distance of *s_m*. Next, the piston moved the formed pellet in the die by a distance of *v_p*. The entire displacement route of the piston *s_e* was *s_e = s_m + v_p*, where *s_m* is the piston displacement to the maximum pressure in mm and *v_p* is the pellet shift in the die in mm. The effective hole length (thickness) of the die *l_c*, through which the current agglomerate and the agglomerate located below it had to be moved on the *v_p* distance was *l_c = v_p + l_a*; where *v_p* is the average value of shift of the formed pellet in mm; *l_a* is the length of the agglomerate filling the die hole in mm. For one measuring system, under stable pelleting conditions, at least three pellets were produced.

2.3. Parameters of the compaction process and pellets

The pelleting process was characterised by piston displacement to the maximum pressure, *s_m*, pellet shift in the die, *v_p*, maximum compaction pressure, *p_m*, specific compaction work, *L_s*, and specific work for pellet shifting in the die, *L_v*. For the single pellet: pellet diameter, *d*, pellet length, *l_p*, and single pellet density, *ρ_p* were developed. The parameters *L_s*, *L_v*, and *ρ_p* were related to the mass of dry matter (DM).

2.3.1. Parameters of the compaction process

The co-ordinates of points for the maximum value, *B(s_m, F_{max})*, and the end of piston movement, *C(s_e, F_e)*, were determined directly using data from force-displacement charts recorded during pressure agglomeration (Fig. 1a). For one measuring system there were

20 points on an average. The maximum pressure was determined from the relationship

$$p_{\max} = \frac{4F_{\max}}{\pi d^2} \quad (1)$$

where *p_{max}* is the maximum compaction pressure in MPa; *F_{max}* is the maximum compaction force in N; and *d* is the diameter of the die hole in mm.

A good energy indicator is *L_s* and *L_v*, which was determined based on the force-displacement data obtained during pressure agglomeration using the following equations (Lisowski et al., 2019b)

$$L_s = \int_0^{s_m} F dx \Big/ [m_s(1 - MC / 100)] \quad (2)$$

$$L_v = \int_{s_m}^{(s_e - s_m)} F dx \Big/ [m_s(1 - MC / 100)] \quad (3)$$

where *L_s* and *L_v* are DM specific work of compaction and pellet shifting in the die, respectively in J·kg⁻¹; *s_m* and *s_e* are the piston displacement during pellet formation and final piston position after shifting the pellet in the die, respectively, (*v_p = s_e - s_m*) in mm; *v_p* is the pellet shift in the die in mm; *F* is the compaction force in N; *m_s* is the sample mass in g; *MC* is the material moisture with respect to the wet basis in %; and *x* is the piston displacement during material compaction in mm.

2.3.2. Physical properties of pellets

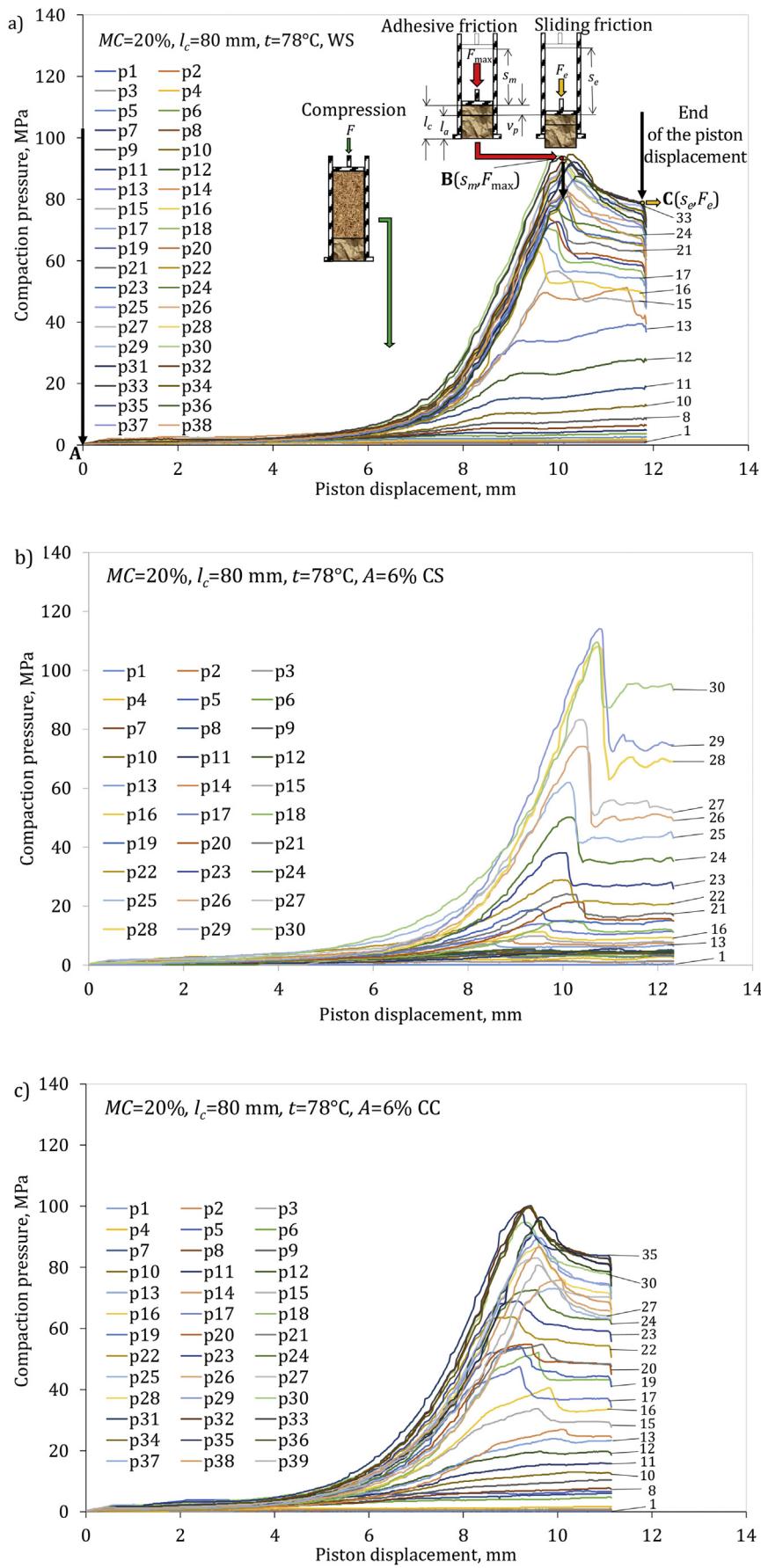
Physical measurements of the pellets were conducted one week from the date of production. The front surfaces of the pellets were levelled using a grinder by placing the samples in a triangular holder to keep the surface perpendicular to the pellet axis. The diameter (at half the pellet length) and pellet length were measured in two perpendicular directions using electronic callipers (MAUa-E2 4F, FK Vis, Warsaw, Poland) with an accuracy of ±0.0 mm. The pellets were weighed using an electronic balance (WPS 600/C, Radwag, Poland) with an accuracy of 0.01 g. The *ρ_p* was converted to the mass of the DM, as follows:

$$\rho_p = \frac{32m(1 - MC/100)}{\pi(d_1 + d_2)^2(l_1 + l_2)} \quad (4)$$

where *ρ_p* is the DM single pellet density in kg·m⁻³; *m* is the pellet mass in kg; *MC* is the material moisture content with respect to the wet basis in %; *d₁* and *d₂* are pellet diameters in two perpendicular directions in m; and *l₁* and *l₂* are the pellet lengths in two perpendicular directions in m.

2.4. Selection of the compaction parameters and pellets

Following a previous study (Miller et al., 1994) which stated that a person has a specific perception of processing at most 7 ± 2 pieces of information, the possibilities of limiting the parameters characterising the pressure agglomeration process and the pellet parameters were analysed. The pressure parameters of the agglomeration process and pellets were selected using the feature correlation method, which is based on eliminating features whose numerical values are strongly correlated with each other (Lisowski et al., 2019a).



2.5. Method for parameter optimisation of the pressure agglomeration process and pellets

The steering variables for the type of the material (WS blended with additional CS and CC) were A , MC , l_c , and t .

The response of the dependent variables: s_m , v_p , L_s , L_v and ρ_p was calculated based on experimental values and can be defined as an overall regressive equation:

$$y_n = \beta_0 + \sum_{i=1}^4 \beta_i x_i + \sum_{i=1}^4 \beta_{ii} x_i^2 + \sum_{i=1}^3 \times \sum_{j=i+1}^4 \beta_{ij} x_i x_j, \quad (n = 1, 2, 3, 4, 5) \quad (5)$$

where y_1 is the piston displacement during pellet formation (s_m in mm); y_2 is the pellet shift in the die (v_p in mm); y_3 is the specific compaction work (L_s in $\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$); y_4 is the specific work for pellet shifting in the die (L_v in $\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$); y_5 is the DM single pellet density (ρ_p in $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$); x_1 is the additive ratio (A in % wt/wt); x_2 is the material MC (in% w.b.); x_3 is the die height (l_c in mm); x_4 is the material temperature (t in $^\circ\text{C}$); and β_0 , β_i , β_{ii} , and β_{ij} are the coefficients of intercept terms, linear terms, quadratic terms, and interaction terms in the equation, respectively.

Minimising the function, $y_n(A, MC, l_c, t)$ was calculated at the initial conditions of decision variables A_0 , MC_0 , l_{c0} , and t_0 , e.g., initial assumption [4% wt/wt, 15% w.b., 70 mm, 90 $^\circ\text{C}$], and of bound constraints: 0% wt/wt $\leq A \leq$ 10% wt/wt, 10% w.b. $\leq MC \leq$ 30% w.b., 66 mm $\leq l_c \leq$ 86 mm, and 78 $^\circ\text{C} \leq t \leq$ 108 $^\circ\text{C}$.

To minimise the non-linear function, an "optimum" function with the Quasi-Newton algorithm was used.

The optimal process parameters for the objective function and graphs were developed using the open-source software package Scilab v.6.0.2.

2.6. Statistical analysis

The data were analysed in terms of the influence of the factors (the type of material, A , MC , l_c , and t) on the parameters of the pressure agglomeration process and pellets based on the MANOVA multicriteria analysis of variance using F test (Fisher-Snedecor) and Tukey's multiple comparison test. The analysis was conducted with an assumed significance level of $p \leq 0.05$. Statistica v.13.3 was used for the statistical analysis.

3. Results and discussion

3.1. Pressure agglomeration process

After the first material dose is added, the formed pellet becomes unsteady because of significant resistance caused by the friction between the wall of the die hole and the cylindrical surface of the pellet. When the resistance was small, the piston pressure on the material causes a slight elastic and plastic deformation of large and medium-sized particles and spontaneous agglomerates are formed from finer and wetter particles of WS or blends of WS with CS or CC. In addition, regrouping of particles occurs, thereby filling the empty spaces between them, and the air between the adjacent particles is removed. After the eight dose, higher friction developed at the surface and the increased resistance by the agglomerate allowed

the formation of higher density pellets. This growth of resistances was enhanced by increasing the lateral pressure, which is proportional to the axial pressure (Miao et al., 2015). Increasing lateral pressure on the surface generated friction, which is a product of pressure force and the coefficient of friction. In addition, the expansion of the compacted material in the radial direction intensified the lateral pressure. The expansion in the axial direction was restrained during the compaction of the next material dose.

After the dislocation phase of the particles and a slow increase in the compaction pressure, the process characteristics passed through the inflection point; for example, for WS, the inflection point occurred after a s_m of 8 mm (Fig. 1a). From this point, plastic deformation of particles followed, with a high compaction pressure gradient. The characteristics of the increase in compaction pressure with the s_m had a typical shape, similar to an exponential function, until the maximum pressure was obtained. After exceeding this pressure, the pressure rapidly decreased because of the breaking of bonds on the contact surfaces of the pellet and the wall of the die hole.

At the beginning of movements of the compacted dose (equivalent to v_p) and agglomerate in the die l_a , the friction was overcome. This friction was involved with the pressure and static friction coefficient, as well as with shear stresses showed on the summed effective contact area of the material particles and the surface of the die hole (Rossouw et al., 2003).

Most often, up till the first eight doses, there was no visible maximum point, and the compaction pressure curve formed a plateau. After this stage, till the 14th dose, the pressure increased when the densified dose shifted and agglomeration occurred without reaching a clear maximum value. This can be explained by the fact that the positive pressure gradient could have been a result of the greater axial expansion of the still poorly compacted agglomerate in the die characterised by greater elasticity. Cumulatively, the piston compacted the new dose and re-expanded the agglomerate. Because the density of the expanded agglomerate started from the piston pressure side, successive layers of material were gradually activated through a chain reaction. The movement of the densified agglomerate occurred in a similar manner, especially in its initial phase. After removing the expansion in the agglomerate, the agglomerate was moved in an integrated manner.

From the 15th dose, the maximum pressure point could be seen. At this stationary point, the static friction had to be overcome, and after the agglomerate began to move, the pressure dropped because of the appearance of lower kinetic friction. A further reduction of resistance to motion was observed because of the decrease in the total actual contact area of the ejected agglomerate from the die (Rossouw et al., 2003) and systematic purification of particles stuck to the top surface of the die. With a higher agglomerate density and plastic deformation of particles and a more durable connection between particles, the expansion of agglomerate was very low, and the movement of the densified dose and agglomerate became simultaneous. Under these conditions, the pressure gradient was negative. The explanation of these different processes of pressure gradient happening in the pellet shifting phase in the die has not been previously described.

For WS without additives, the increase in pressure while pellet shifting was the highest. The addition of CS contributed to the lag, and the addition of CC increased the agglomeration pressure gradient. The influence of these additives were analysed after the selection of the parameters of the pressure agglomeration process

Fig. 1. Compaction pressure vs. piston displacement for a) wheat straw (WS), b) wheat straw and cassava starch (CS) blend and c) wheat straw and calcium carbonate (CC) blend at different technical parameters of moisture content (MC), die height (l_c), material temperature (t), and additive ratio (A). a) Schematic diagram of the pelleting cycle. (To improve the readability of the graphs, some number samples were removed from the plots).

and pellets.

3.2. Parameter selection of the pressure agglomeration process and pellets

Because of the maximum p was very highly correlated with the L_s ($r = 0.951$); thus, p was discarded from further analysis. In addition, the diameter and length of the pellets were removed because they directly influence ρ_p . The final matrix of the correlation coefficients (Table S2 of the SI) contained five criterion parameters characterising the process of pressure agglomeration and pellets. These parameters were: s_m , v_p , L_s , L_v , and ρ_p . Steering variables such as additive type, A , MC , l_c , and t were added to this set of parameters. The five parameters agree with the results of a previous study (Miller et al., 1994) and allow easier interpretation of factors affecting the process and accelerate its assessment. The separated parameters characterising the process of pressure agglomeration and pellets are logical and will be further analysed in detail.

3.3. Parameters of the pressure agglomeration process and pellets

An exemplary set of pellets made by blending WS with CS is shown in Fig. S2 of the SI. Based on the analysis of variance, it can be concluded that all five factors (additive type, A , MC , l_c , and t) had a statistically significant effect on the parameters of the compacting process and pellets (Table 1). In most cases, the p-value was less than 0.0001. Only for the ρ_p , the p-value was higher (0.0285).

3.3.1. Piston displacement to the maximum compaction pressure s_m and pellet shift in the die v_p

The greater the s_m , the more the work that was needed to compact the material. The highest s_m occurred during the

compaction of WS without additives ($A = 0\% \text{ wt/wt}$) and was 13.2 mm (Table 1). For the blend of straw with CS and CC, s_m reduced by 21% and 25%, respectively. The straw was covered with wax, which reduces friction. Thus, a greater s_m was observed during pressure agglomeration.

CS, as an additive to straw, absorbed water and underwent swelling, creating a gruel that increased the adhesion between the particles and the die surface, creating resistance related to shearing of these bonds. It has been observed (Kaliyan and Vance Morey, 2009) that gelatinisation of CS can be conducted using two mechanisms. First, they are conditioned with a hydration reaction and swelling of CS granules, leading to the destruction of the crystal structure because of the combined influence of temperature and moisture. The second process involves breaking the CS granules by shear friction. CC as an inorganic substance changed friction conditions to a greater extent than CS did, mainly because of its hygroscopic properties and the friction coefficient.

The most significant influence of the additives on s_m was observed at the lowest A . With an A of 2% wt/wt, the average value of s_m was 9.38 mm, which was 29% lower than the s_m during WS agglomeration without additives. Increments in the A to 6% wt/wt and 10% wt/wt resulted in relatively less significant differences in the s_m (23% and 22%, respectively). Most likely, a higher amount of additive was absorbed on the surface of the die hole, generating friction which had to be overcome.

To achieve maximum compaction pressure, an increase in material moisture in the range of 10–20% w.b. extended the s_m from 10.2 mm to 11.5 mm (by 2.6%), and in the moisture range of 20–30% w.b., the s_m was shortened from 11.5 mm to 9.9 mm (by 13.6%). Because the moisture was not sufficient, the friction coefficient was greater, and more free moisture (not bonded by the additives) was present between the particles, which contributed to the generation of a cohesion force between adjacent particles. Thus, the optimum

Table 1
Results of analysis of variance, mean values, and standard error (SE) of the piston displacement at maximum agglomeration pressure, pellet shift in the die, specific compaction work, specific work for pellet shifting in the die, and single pellet density for different type of additive, additive ratio (A), material moisture contents (MC), agglomerate lengths (l_c), and material temperature (t).

Factor	s_m mm	v_p mm	$L_s \text{ kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$	$L_v \text{ kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$	$\rho_p \text{ kg m}^{-3}$
p-value					
Additive	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	0.0285
A	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
MC	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
l_c	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
t	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
Mean ± SE for type of material					
CS	10.41 ^b ± 0.22	5.96 ^b ± 0.20	14.67 ^b ± 1.16	8.45 ^a ± 0.66	405 ^a ± 11
CC	9.83 ^a ± 0.11	4.95 ^a ± 0.10	12.51 ^a ± 0.48	9.83 ^b ± 0.29	475 ^b ± 18
Mean ± SE for additive ratio A (%wt)					
0	13.17 ^c ± 0.34	5.20 ^b ± 0.22	18.09 ^b ± 1.34	14.63 ^c ± 0.95	490 ^c ± 23
2	9.38 ^a ± 0.18	5.25 ^b ± 0.16	12.90 ^a ± 0.83	9.69 ^b ± 0.50	446 ^b ± 18
6	10.17 ^b ± 0.19	5.45 ^b ± 0.17	12.95 ^a ± 0.85	9.92 ^b ± 0.52	430 ^a ± 18
10	10.32 ^b ± 0.14	4.89 ^a ± 0.15	13.18 ^a ± 0.70	8.98 ^a ± 0.38	443 ^{ab} ± 19
Mean ± SE for material moisture content MC (% w.b.)					
10	10.22 ^b ± 0.23	8.45 ^c ± 0.19	6.03 ^a ± 0.55	4.17 ^a ± 0.23	372 ^a ± 15
20	11.49 ^c ± 0.19	4.69 ^b ± 0.14	17.35 ^c ± 0.74	13.62 ^b ± 0.60	495 ^c ± 19
30	9.93 ^a ± 0.12	3.49 ^a ± 0.07	16.18 ^b ± 0.79	11.82 ^c ± 0.42	479 ^b ± 14
Mean ± SE for agglomerate length l_c (mm)					
66	9.82 ^a ± 0.20	5.61 ^b ± 0.20	13.32 ^a ± 0.80	10.33 ^b ± 0.54	402 ^a ± 15
76	10.49 ^b ± 0.18	5.06 ^a ± 0.14	13.00 ^a ± 0.68	9.67 ^a ± 0.46	479 ^c ± 17
86	10.98 ^c ± 0.15	5.02 ^a ± 0.12	14.99 ^b ± 0.79	11.01 ^c ± 0.46	466 ^b ± 17
Mean ± SE for material temperature t (°C)					
78	12.55 ^c ± 0.13	3.48 ^a ± 0.10	20.45 ^c ± 0.65	17.15 ^c ± 0.54	542 ^c ± 18
93	10.81 ^b ± 0.18	5.72 ^b ± 0.16	12.84 ^b ± 0.86	7.67 ^b ± 0.41	494 ^b ± 16
108	7.14 ^a ± 0.16	7.08 ^c ± 0.17	5.36 ^a ± 0.66	3.53 ^a ± 0.37	310 ^a ± 10

s_m , piston displacement at maximum agglomeration pressure; v_p , pellet shift in the die; L_s , specific compaction work; L_v , specific work for pellet shifting in the die; ρ_p , DM single pellet density; A , additive ratio; MC , material moisture content; l_c , agglomerate length; t , material temperature.

*different letters in each column and factors within a value represent a significant difference at $p < 0.05$ using Tukey's test.

MC at which the s_m will have a maximum value was obtained.

Following this logic, increasing the l_c had a positive effect on the increase in the s_m , but the gradient of growth of this displacement was higher by one third in the height range of $l_c = 66–76$ mm than that in the range of $l_c = 76–86$ mm (0.067 mm mm^{-1} and 0.049 mm mm^{-1} , respectively). Although friction does not depend on surface area, the friction coefficient was dependent on the sum of the contact area of the particles with the die hole, which affected adhesion and increased shear resistance.

As the temperature of the heated material increased (78, 93, and 108°C), the s_m decreased (12.6, 10.8, and 7.1 mm, respectively). The increase in s_m in the temperature ranges of $78–93^\circ\text{C}$ and $93–108^\circ\text{C}$ was 14% and 34%, respectively. Temperature growth contributed to the physicochemical changes of material particles. The increase in temperature increased the softening of the lignocellulosic compounds of WS (glass transition), increased the gelatinisation of CS (Alcázar-Alay and Meireles, 2015), and reduced the solubility of CC (Coto et al., 2012).

The pellet shift in the die v_p was inversely proportional to s_m , as evidenced by a high but negative correlation coefficient between these two parameters, $r = -0.667$. This is logical because the longer the piston travelled to make the material dose dense, the formed current pellets became shorter, and a shorter distance had to be travelled to move it. Material moisture had the greatest impact on the diversity of pellet shift in the die, and in the moisture range of 10–30% w.b., the pellet shift decreased from 8.5 mm to 2.5 mm. Therefore, the pellet shift was inversely correlated with moisture, $r = -0.571$. The pellet shift was also significantly influenced by the temperature, and in the range of $78–108^\circ\text{C}$, the v_p value increased from 3.5 mm to 7.1 mm. The value of the correlation coefficient between v_p and t amounted 0.349.

Displacement s_m had an average positive correlation with L_s (0.408), L_v (0.332), and ρ_p (0.468).

The pellet shift v_p was highly negatively correlated with the L_s (-0.547), L_v (-0.515), and ρ_p (-0.553).

Physically, the v_p corresponded to the length of the pellet formed during the material dose compaction.

3.3.2. Specific compaction work L_s and pellet shifting in the die L_v with respect to DM

The work L_s with respect to DM was the largest for WS without additives and amounted to 18.1 kJ kg^{-1} (Table 1). The addition of CS reduced this work to 14.7 kJ kg^{-1} (by 19%), and the addition of CC reduced it to 12.5 kJ kg^{-1} (by 31%). The concentration of these additives, however, did not have a significant impact on the L_s , because the values of this work formed a homogeneous group with an average value of 13.0 kJ kg^{-1} .

The MC had an average influence on the L_s ($r = 0.405$). Similarly, for s_m , the influence of moisture on this work was not linear, and for a MC of 20% w.b., the value of this work was the highest (17.4 kJ kg^{-1}). Increasing the l_c only insignificantly increased the L_s , from approximately 13.2 kJ kg^{-1} which is the average value of the homogenous group for a l_c of 66 mm and 76 mm to 15.0 kJ kg^{-1} for $l_c = 86$ mm.

The temperature t had a negative ($r = -0.255$) influence on the L_s . For t of 78, 93, and 108°C , the L_s values were 20.5, 12.8, and 5.4 kJ kg^{-1} , respectively. L_s of spent coffee grounds was similar and amounted to $4.2–23.8 \text{ kJ kg}^{-1}$ (Lisowski et al., 2019a) and that of walnut shell was $9.9–33.3 \text{ kJ kg}^{-1}$ (Lisowski et al., 2019b). However, the work for Miscanthus and switchgrass was smaller and amounted to $2.5–7.7 \text{ kJ kg}^{-1}$ (Miao et al., 2015).

The influence of various factors on the L_s was similar to that of the s_m , and the changes of both parameters were determined by the same physical phenomena. The L_s considers the shape of the characteristics of pressure-displacement (Fig. 1) and not only the

co-ordinates of the specific point. This work (L_s) better shows the process of compaction than displacement s_m .

The $L_v = 3.5–17.2 \text{ kJ kg}^{-1}$ was lower than the $L_s = 5.4–20.5 \text{ kJ kg}^{-1}$. Although the L_v was on a shorter segment than the compaction work was, the pellet shifting occurred at a relatively high pressure. The L_v from the walnut shell was even higher than the compaction work because of the low susceptibility on the compaction of milled walnut shells and the creation of long pellets which had to be shifted to a longer distance in the die (Lisowski et al., 2019b). Materials with lower bulk density and high susceptibility to compaction, e.g. straw, can be subjected to higher doses because the formed agglomerate is shorter and the work required to move it is lower.

The influence of the main factors on the variety of L_v values was slightly higher than that on the values of L_s . The values of L_s and L_v were highly correlated with themselves ($r = 0.839$). The values of correlation coefficients between the L_s and L_v and ρ_p were 0.593 and 0.588 (high correlation), respectively.

3.3.3. Single pellet density ρ_p

The average density ρ_p with respect to DM was the highest for straw without additives and amounted to 490 kg m^{-3} (Table 1). Adding CS to the straw decreased the density to 405 kg m^{-3} , and adding CC reduced the density to 475 kg m^{-3} (representing reductions of 17 and 3%, respectively). Increasing the concentration of these additives within the range 2–10% wt/wt caused an unclear change in the ρ_p . The ρ_p was well correlated with the process parameters (Table S2 of the SI). The value of the correlation coefficient of ρ_p with the L_s was 0.593 (high correlation), and that with L_v was 0.588, s_m was 0.468 (average correlation), and v_p was -0.553 (negative high correlation). This shows that the same phenomena which characterised the compaction process contributed to the formation of pellets with a given density. The effect of the material compaction in the form of a pellet was linked with the outer friction, cohesion between the adjacent particles, capillary adsorption, interfacial forces, solid bridges, attractive forces between solid particles, and mechanical internal bonds. These binding mechanisms have been observed not only for biomass but also for pharmaceutical powders and feed (Tumuluru et al., 2011). The higher the resistance forces of agglomerate movement in the die hole were and particle dislocation forces had to be overcome, the better conditions for producing the pellets with higher densities were. The formation of larger forces between adjacent particles, mostly caused by cohesive bonds, lowered the risk of their breakdown during tension loosening, leading to elastic expansion (Stelte et al., 2012b). The elastic expansion of the material occurred in pellets after they left the die hole and some bonds were broken, leading to a decrease in the density and strength of the agglomerate (Nielsen et al., 2020).

Similar to the case of process parameters, the highest ρ_p of 495 kg m^{-3} was achieved at a material MC of 20% w.b. The ρ_p produced at a material MC of 10% w.b. had significantly lower density (372 kg m^{-3}) (decreased by 25%). Increasing the material MC by the same interval up to 30% w.b. only contributed to a slight decrease in density to 479 kg m^{-3} (by 3%). Obtaining an increasing pellets density was possible to a certain moisture limit, and further increase in moisture caused decrease in density, what has been observed by many researchers (Kaliyan and Vance Morey, 2009; Nielsen et al., 2020). At 10% w.b. moisture, the material was too dry, and CS and CC additives worsened the conditions for the creation of more durable connections between particles. With moisture above 25% w.b., the effect of not-compacting water trapped in the material particles, has increased. The water prevented particles flattening and the release of the natural bonds between the particles. Straw fibres and additives were not able to absorb moisture that

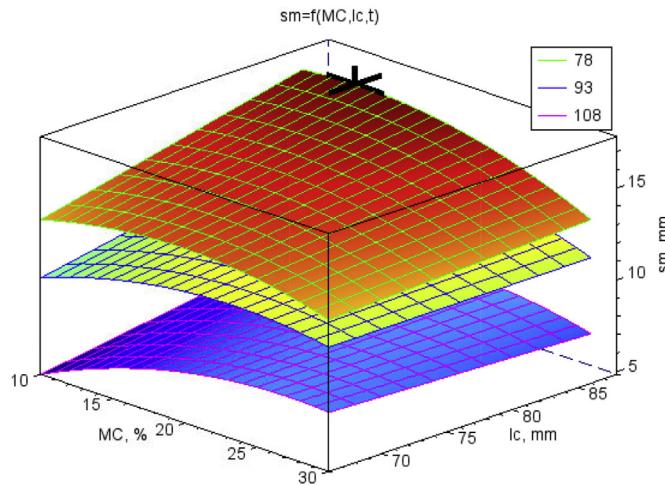


Fig. 2. Surface charts of piston displacement at maximum agglomeration pressure s_m vs. material moisture MC and die height l_c for three material temperatures t (78, 93, and 108 °C) with marked optimal point at $A = 0\%$, $MC = 13.6\%$, $l_c = 86\text{ mm}$, $t = 78\text{ }^{\circ}\text{C}$, for which the optimum value of s_m is 16.8 mm.

remained on the surface of the particles, causing a lubricating effect between adjacent particles and between the particles and the surface of the die hole. Other researchers have pointed out these phenomena (Huang et al., 2017; Mani et al., 2003). Our previous studies on the compaction of spent coffee grounds (Lisowski et al., 2019a) and walnut shell (Lisowski et al., 2019b) showed an optimal MC of these materials in the range of 18–20% w.b.

As the height of the die increased, the ρ_p exhibited an increasing tendency, but this increase was not unambiguous.

A one-way, negative effect of t on the ρ_p was observed ($r = -0.404$). The pellets with the highest density (542 kg m^{-3}) were formed at a t of 78 °C. Increasing the t by 15 °C (to 93 °C) resulted in a reduction of the ρ_p to 494 kg m^{-3} , i.e. by 9%. A further increase in the t by 15 °C (to 108 °C) led to a significant decrease in the ρ_p (up to 310 kg m^{-3} , i.e. by a further 37%). At high temperatures, lignocellulosic material became plasticised and more amorphous, and lignin and water in particular act as lubricants, although a part of the water can evaporate. When the temperature was reduced, the moisture effect became less significant, especially when CS and CC additives were used. Relatively more water could evaporate from the particles stuck to the surface of the die. The decomposition of hemicellulose and cellulose occurs at an average temperature (80–200 °C), and that of lignin begins at room temperature (Uzun and Yaman, 2014).

3.4. Optimisation of the pelleting conditions

Based on the research and statistical analysis data presented so far, mathematical models for the compaction parameters and the specific pellets density were developed, and based on them, the optimal values of process control variables were compared (Table S3 of the SI). A graphical interpretation of the response function is presented in Figures 2–6. The analyses were conducted separately for WS and for its blend with the CS and CC additives, as well as for all associated data, to verify the possibility of generalising the mathematical models. In Table 2, only the regressive factors relevant from the statistical viewpoint and for regression of the results of the Fisher-Snedecor F-test evaluation and the values of the multiple correlation factors were collected. The functions of objectives were limited to basic restrictions which were the largest s_m , the smallest v_p , the smallest L_s , the smallest L_v , and the highest

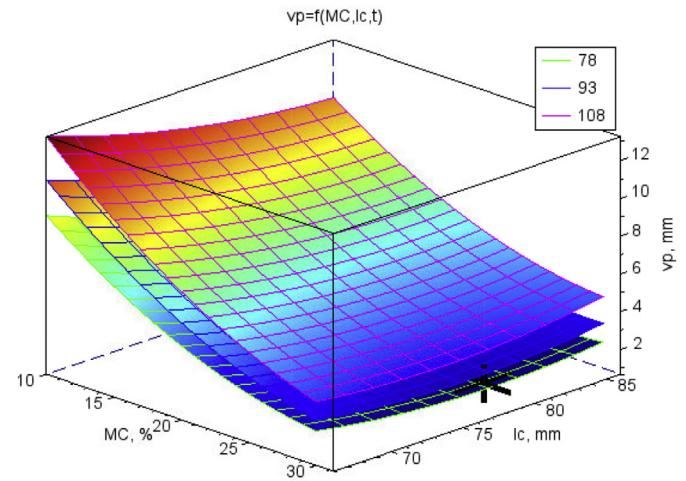


Fig. 3. The surface charts of pellet shift in the die v_p vs. material moisture MC and die height l_c for three temperatures t (78, 93, and 108 °C) with market optimal point at $A = 10\%$, $MC = 29.3\%$, $l_c = 78.3\text{ mm}$, $t = 78\text{ }^{\circ}\text{C}$, for which the optimum value of v_p is 1.67 mm.

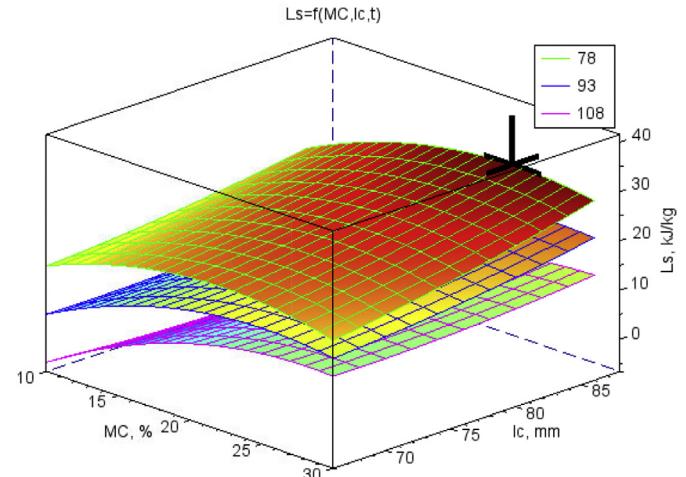


Fig. 4. The surface charts of specific compaction work L_s vs. material moisture MC and die height l_c for three material temperatures t (78, 93, and 108 °C) with marked optimal point $A = 0\%$, $MC = 24.3\%$, $l_c = 86\text{ mm}$, $t = 78\text{ }^{\circ}\text{C}$, for which the optimum value of L_s is 31.6 kJ kg⁻¹.

ρ_p . Because of mathematical reasons, in Figures 2–6, the optimum points have been marked, indicating the maximum or minimum values which are not equal to the assumed goals. L_s and L_v reached maximum values. This fact is included in the analysis and interpretation of the results.

The analysed objective functions reached optimal values at diverse decision variables, but because of the aim of the present study, the most important value was the concentration of the additives. For the WS blend with CS, L_s reached the optimal value at a CS concentration of 4% wt/wt but this did not correspond to the ρ_p . For the blend of straw with CC, the agglomeration process was conducted under optimal conditions at a CC concentration of 10% wt/wt but the s_m and the ρ_p reached zero concentration of the additive. When the process was optimised for all types of material blends, the maximum ρ_p was obtained at a concentration of 4% wt/wt. Generally, one can state that adding CC was more beneficial than adding CS because the ρ_p with CC additive was the highest and amounted to 853 kg m^{-3} , which was lower by 20% for the CS

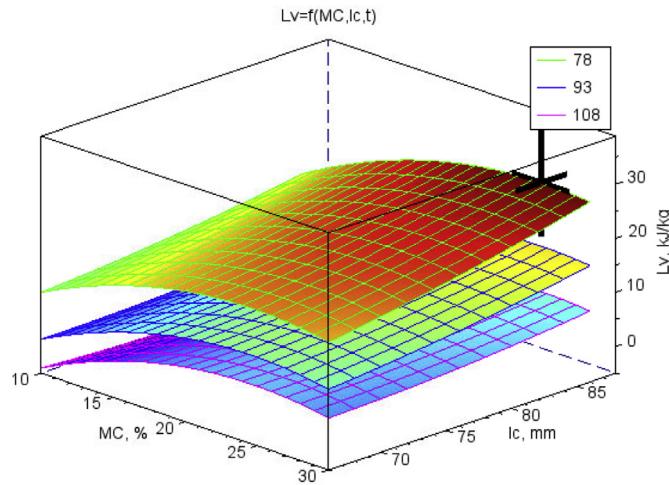


Fig. 5. The surface chart of specific work for pellet shifting in the die L_v vs. material moisture MC and die height l_c for three material temperatures t (78, 93, and 108 °C) with marked optimum point $A = 0\%$, $MC = 26.6\%$, $l_c = 86$ mm, $t = 78$ °C, for which the optimum value of L_v is 28.9 kJ kg^{-1} .

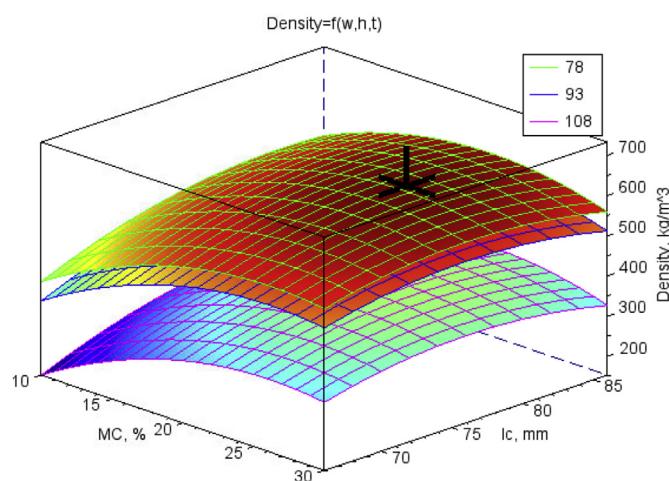


Fig. 6. The surface charts of single pellet density, related to the dry matter ρ_p vs. material moisture MC and die height l_c for three material temperatures t (78, 93, and 108 °C) with marked optimum point $A = 4\%$, $MC = 23.3\%$, $l_c = 78.5$ mm, $t = 80.2$ °C, for which the optimum value of ρ_p is 633 kg m^{-3} .

additive.

By considering the ρ_p as an important objective function, one can state that the optimal moisture of WS without additives was 13% w.b. For the agglomeration of the blend of WS with CS, all five functional criteria reached the optimal values at the highest moisture of 30% w.b., and the ρ_p was the lowest (682 kg m^{-3}).

Using CC for WS did not provide such a repetitive outcome, but by considering the L_s and the ρ_p as the dominant objective functions, the optimal process occurred at a MC of approximately 18%.

The optimal l_c for WS agglomeration without additives was 86 mm (which was the highest), and the compaction of the straw blend with additives can be undertaken at an average l_c of 76 mm.

The compaction process and its effect in a form of optimal ρ_p should take place at the lowest t of 78–86 °C (within the range of 78–108 °C). Figures 2–6 clearly show that the differences between the surface charts for lower temperature values (78–86 °C) are

smaller than for the temperature of 108 °C, for which the values of the criteria parameters of the compaction process were the least favourable.

When pelletising a blend of WS and rice straw, the optimum temperatures and MC were 100 °C and 15%, respectively (Wang et al., 2017). At a compaction pressure of 20 MPa, the geometric mean of the particle size was 0.285 mm; without the addition of WS, using a L_s of 3.63–3.80 kJ kg^{-1} (smaller than given in Table 1), pellets with a density of 995–1010 kg m^{-3} were obtained. However, other researchers achieved values similar to those in Table 1. The optimal work of rice straw compaction pre-treated with the addition of 4% paraffin was 31.4 kJ kg^{-1} , and the ρ_p was 1132 kg m^{-3} (Xia et al., 2019). In other studies, the L_s needed for pelleting rice straw was 36.69 kJ kg^{-1} (Hammes et al., 2003). For walnut shell compaction at an 18.3% MC , 93 °C t , and 60–70 mm l_c , the L_s was 27.7 kJ kg^{-1} , and the ρ_p was 838 kg m^{-3} (Lisowski et al., 2019b). Under similar conditions of pressure agglomeration of coffee grounds, these parameters were 10.7 kJ kg^{-1} and 1016 kg m^{-3} , respectively (Lisowski et al., 2019a).

While evaluating the quality of the process based on the obtained effects in the form of maximum value of the ρ_p , one can say that pelletising took place at the following optimal steering variables: 4% wt/wt A , material MC of 23.3% w.b., l_c of 78 mm, and t of 80.2 °C (Table S3 of the SI, Fig. 6). Under the optimal conditions: $s_m = 12.3$ mm, $v_p = 2.35$ mm (equal to the height of the compacted single dose), $L_s = 22.1$ kJ kg^{-1} , and $L_v = 19.0$ kJ kg^{-1} . These values were calculated based on mathematical models (Table 2). In this scenario, the values of the parameters were lower than the maximum values (for ρ_p greater than the minimum value), which were $s_m = 16.8$ mm (by 27%), $v_p = 1.67$ mm (by 29%, the function has a minimum), $L_s = 31.6$ kJ kg^{-1} (by 43%), and $L_v = 28.9$ kJ kg^{-1} (by 34%, Table S3 of the SI), respectively. However, the water absorption value of crushed pellets produced under these optimal pelletising conditions remains unclear. The presented tests can be an indication for the preservation of pellets production conditions in actual production. The limitation of these tests is the laboratory scale and technological tests in a larger scale will be needed. Further research should also concern the behaviour of broilers on litter prepared from crushed pellets.

4. Conclusions

Milled WS and its blends with CS or CC with an A of 2–10% wt/wt were pelleted.

Adding CS contributed to a lag and addition of CC to an increase of gradient agglomeration pressure.

Through an analysis of feature correlations, the number of characterising parameters for the pressure agglomeration process and pellets was limited to five: s_m , v_p , L_s , L_v , and ρ_p .

Based on five steering variables, regression models were developed, and the optimal values of objective functions with basic constraints for prediction of pelletising parameters were determined.

In general, the process of pelletising blends of WS with additives was more effective than that with pure WS. In summary, the optimal density of specific pellets was reached at 4% wt/wt A , 23% w.b. material MC , 78 mm l_c , and 80 °C t . In this scenario, the values of parameters characterising the process were lower than the maximum values. The s_m was lower by 27%, L_s by 43%, and L_v by 34%; however, pellet shift in the die was higher by 29% because of the minimum function objective. Adding CC was more beneficial than adding CS because the ρ_p of the WS and CC blend was higher (853 kg m^{-3}) by 20% than that of WS and CS blend. Optimal conditions for pellet forming are an important indication for their use in actual industrial production.

Table 2

Regression coefficients of the variables for piston displacement at maximum agglomeration pressure (s_m), pellet shift in the die (v_p), specific compaction work (L_s), specific work for pellet shifting in the die (L_v), and single pellet density (ρ_p).

	s_m β_i	p-value	v_p β_i	p-value	L_s β_i	p-value	L_v β_i	p-value	ρ_p β_i	p-value
Wheat straw (WS)										
Intercept	-218	<0.0001	16.6	<0.0001	-364	0.0004	-57.2	<0.0001	-2864	0.0216
MC	1.02	0.0220	-0.87	<0.0001	-	-	2.38	0.0097	-	-
l_c	3.53	<0.0001	-	-	-	-	1.85	<0.0001	-	-
t	2.12	<0.0001	-	-	8.63	0.0001	-	-	77.27	0.0047
MC^2	-0.015	0.0034	-	-	-	-	-0.09	<0.0001	-0.64	0.0237
l_c^2	-0.020	0.0004	-0.002	<0.0001	0.03	<0.0001	-	-	0.11	<0.0001
t^2	-0.015	<0.0001	-	-	-0.04	0.0003	-	-	-0.54	0.0003
$MC \times l_c$	-0.019	<0.0001	0.017	<0.0001	-0.05	<0.0001	-	-	-0.37	0.0318
$MC \times t$	0.012	<0.0001	-0.008	<0.0001	0.06	<0.0001	0.02	0.0125	0.61	<0.0001
$l_c \times t$	-	-	-0.002	0.0444	-0.04	0.0009	-0.02	<0.0001	-	-
F test	359		396		54		110		169	
R	0.6966		0.8423		0.5254		0.6525		0.7646	
Wheat straw + cassava starch (WS + CS)										
Intercept	13.2	<0.0001	-35.7	0.0044	-	-	-	-	-6231	<0.0001
A	-1.36	0.0046	-	-	-	-	-	-	-	-
MC	-	-	-	-	-4.07	<0.0001	-1.69	0.0001	44.94	0.0028
l_c	-	-	-	-	10.06	<0.0001	5.77	<0.0001	166	<0.0001
t	-	-	0.92	0.0008	-7.50	<0.0001	-4.38	<0.0001	-	-
A^2	-	-	-0.021	0.0219	-	-	-	-	-	-
MC^2	0.005	<0.0001	-	-	0.15	<0.0001	0.07	<0.0001	0.49	0.0093
l_c^2	0.001	0.0003	-	-	-0.07	<0.0001	-0.04	-	-1.10	<0.0001
t^2	-	-	-0.004	0.0042	0.04	<0.0001	0.02	<0.0001	-	-
$A \times MC$	-	-	0.016	0.0026	-	-	-0.04	0.0242	-0.69	0.0303
$A \times l_c$	-	-	-	-	-	-	0.04	0.0022	0.21	0.0203
$A \times t$	0.015	0.0032	-	-	-	-	-0.02	0.0188	-	-
$MC \times l_c$	-	-	-	-	-	-	-	-	-0.30	0.0220
$MC \times t$	-	-	-0.004	<0.001	-	-	-	-	-0.33	0.0001
$l_c \times t$	-0.002	0.0002	-	-	-	-	-	-	0.06	0.0199
F test	433		292		126		68		226	
R	0.3895		0.6413		0.7226		0.6726		0.5784	
Wheat straw + calcium carbonate (WS + CC)										
Intercept	-	-	85.0	<0.0001	-	-	120	<0.0001	-4175	0.0044
A	-0.84	0.0021	1.83	<0.0001	4.35	0.0002	2.22	0.0002	-23.41	0.0300
MC	0.37	0.0090	-1.37	<0.0001	-	-	1.69	<0.0001	38.05	0.0262
l_c	0.16	<0.0001	-1.94	<0.0001	-2.69	0.0003	-2.94	<0.0001	29.24	0.0198
t	0.213	0.0013	-	-	2.89	<0.0001	-	-	80.50	0.0018
A^2	-0.025	0.0164	-	-	-	-	-	-	-	-
MC^2	-0.015	<0.0001	0.018	<0.0001	-0.11	<0.0001	-0.07	<0.0001	-1.88	<0.0001
l_c^2	-	-	0.011	<0.0001	0.02	0.0008	0.02	<0.0001	-	-
t^2	-0.003	<0.0001	0.002	<0.0001	-0.02	<0.0001	-	-	-0.43	0.0007
$A \times MC$	0.013	<0.0001	-0.009	0.0005	-	-	-	-	1.03	0.0382
$A \times l_c$	0.013	<0.0001	-0.010	0.0001	-0.06	0.0002	-0.03	0.0001	-	-
$A \times t$	-	-	-0.011	<0.0001	-	-	-	-	-	-
$MC \times l_c$	-0.008	<0.0001	0.013	<0.0001	0.03	<0.0001	0.02	<0.0001	-	-
$MC \times t$	0.009	<0.0001	-0.006	<0.0001	0.03	<0.0001	-	-	0.38	0.0042
$l_c \times t$	-	-	-	-	-	-	-0.01	<0.0001	-0.26	0.0487
F test	1632		709		181		420		149	
R	0.7016		0.8018		0.5685		0.7164		0.6873	
For all										
Intercept	-28.1	0.0031	61.2	<0.0001	29.1	-	62.2	0.0023	-5050	<0.0001
A	1.97	<0.0000	0.86	<0.0001	-	0.0002	-	-	-	-
MC	0.46	0.0031	-1.04	<0.0001	-	-	1.69	<0.0001	56.5	<0.0001
l_c	0.39	<0.0001	-1.27	<0.0001	-	0.0003	-	-	78.1	0.0035
t	0.64	0.0001	-	-	-	<0.0001	-1.17	0.0080	48.80	0.0008
A^2	0.070	<0.0001	-0.014	0.0157	0.12	-	0.06	0.0031	-	-
MC^2	-0.011	<0.0001	0.012	<0.0001	-0.05	<0.0001	-0.05	<0.0001	-0.70	0.0001
l_c^2	-	-	0.006	<0.0001	0.008	0.0008	0.006	<0.0001	-0.45	0.0098
t^2	-0.005	<0.0001	0.001	0.0001	-	<0.0001	0.007	0.0007	-0.30	0.0001
$A \times MC$	0.009	0.0022	-	-	-	-	-0.02	0.0252	-	-
$A \times l_c$	-	-	-	-	-0.02	0.0002	-0.03	<0.0001	-	-
$A \times t$	0.011	<0.0001	-0.009	<0.0001	-	-	0.02	<0.0001	-	-
$MC \times l_c$	-0.007	<0.0001	0.009	<0.0001	0.01	<0.0001	0.01	0.0045	-0.30	0.0137
$MC \times t$	0.006	<0.0001	-0.004	<0.0001	0.02	<0.0001	-	-	-	-
$l_c \times t$	-0.002	0.0243	0.001	0.0120	-0.01	-	-0.01	<0.0001	-	-
F test	1275		843		208		267		399	
R	0.5695		0.7310		0.4308		0.5900		0.5184	

A: additive ratio, MC: material moisture content, l_c : die height, t : material temperature, R: goodness of fit.

CRediT authorship contribution statement

Patryk Matkowski: Conceptualization, Funding acquisition, Formal analysis, Writing - original draft. **Aleksander Lisowski:** Conceptualization. **Adam Świętochowski:** Conceptualization.

Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

Acknowledgements

This research was partially supported by the Ministry of Science and Higher Education of Poland.

Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2020.122955>.

References

- Alcázar-Alay, S.C., Meireles, M.A.A., 2015. Physicochemical properties, modifications and applications of starches from different botanical sources. *Food Sci. Technol.* 35, 215–236. <https://doi.org/10.1590/1678-457X.6749>.
- Baxter, M., Baille, C.L., O'Connell, N.E., 2018. An evaluation of potential dustbathing substrates for commercial broiler chickens. *Anim* 12, 1933–1941. <https://doi.org/10.1017/S1751731117003408>.
- Bilanski, W.K., Graham, V.A., Hanusiaik, J.A., 1985. Mechanics of bulk forage deformation with application to wafering. *ASAE* 24, 829–832. <https://doi.org/10.13031/2013.32322>.
- Breuninger, W.F., Piyachomkwan, K., Sriroth, K., 2009. In: James, B., Roy, W. (Eds.), Chapter 12 – Tapioca/Cassava Starch: Production and Use, Starch 3rd Ed.. Academic Press, San Diego, pp. 541–568.
- Burt, C.D., Cabrera, M.L., Rothrock, M.J., Kissel, D.E., 2018. Urea hydrolysis and calcium carbonate precipitation in gypsum-amended broiler litter. *J. Environ. Qual.* 47, 162–169. <https://doi.org/10.2134/jeq2017.08.0337>.
- Cooper, A.R., Eaton, L.E., 1962. Compaction behavior of several ceramic powders. *J. Am. Ceram. Soc.* 45, 97–101. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1962.tb11092.x>.
- Coto, B., Martos, C., Peña, J.L., Rodríguez, R., Pastor, G., 2012. Effects in the solubility of CaCO₃: experimental study and model description. *Fluid Phase Equil.* 324, 1–7. <https://doi.org/10.1016/j.fluid.2012.03.020>.
- Greinert, A., Mrówczyńska, M., Szefner, W., 2019. The use of waste biomass from the wood industry and municipal sources for energy production. *Sustainability* 11, 1–19. <https://doi.org/10.3390/su11113083>.
- Hafeez, A., Suhail, S.F., Durrani, F.R., Dawood, J., Ahmad, I., Chand, N., Altafur, R., 2009. Effect of different types of locally available litter materials on the performance of broiler chicks. *Sarhad J. Agric.* 25, 581–586.
- Hammes, F., Boon, N., de Villiers, J., Verstraete, W., Siciliano, S.D., 2003. Strain-specific ureolytic microbial calcium carbonate precipitation. *Appl. Environ. Microbiol.* 69, 4901–4909. <https://doi.org/10.1128/AEM.69.8.4901-4909.2003>.
- Huang, Y., Finell, M., Larsson, S., Wang, X., Zhang, J., Wei, R., Liu, L., 2017. Biofuel pellets made at low moisture content – influence of water in the binding mechanism of densified biomass. *Biomass Bioenergy* 98, 8–14. <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2017.01.002>.
- Huang, Y., Yoo, J.S., Kim, H.J., Wang, Y., Chen, Y.J., Cho, J.H., Kim, I.H., 2009. Effect of bedding types and different nutrient densities on growth performance, visceral organ weight, and blood characteristics in broiler chickens. *J. Appl. Poult. Res.* 18, 1–7. <https://doi.org/10.3382/japr.2007-00069>.
- Kaliyan, N., Vance Morey, R., 2009. Factors affecting strength and durability of densified biomass products. *Biomass Bioenergy* 33, 337–359. <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2008.08.005>.
- Kheravii, S.K., Swick, R.A., Choct, M., Wu, S.B., 2017. Potential of pelleted wheat straw as an alternative bedding material for broilers. *Poultry Sci.* 96, 1641–1647.
- Lisowski, A., Dąbrowska-Salwin, M., Ostrowska-Ligęza, E., Nawrocka, A., Stasiak, M., Świętochowski, A., Klonowski, J., Sypuła, M., Lisowska, B., 2017. Effects of the biomass moisture content and pelleting temperature on the pressure-induced agglomeration process. *Biomass Bioenergy* 107, 376–383. <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2017.10.029>.
- Lisowski, A., Dąbrowska-Salwin, M., Świętochowski, A., Motyl, T., Pajewski, M., 2013. Pressure agglomeration of biomass with additive of rapeseed oil cake or calcium carbonate. *Comm. Mot. Energ. Agric.* 13, 95–102.
- Lisowski, A., Olendzki, D., Świętochowski, A., Dąbrowska, M., Mieszkalski, L., Ostrowska-Ligęza, E., Stasiak, M., Klonowski, J., Piątek, M., 2019a. Spent coffee grounds compaction process: its effects on the strength properties of biofuel pellets. *Renew. Energy* 142, 173–183. <https://doi.org/10.1016/j.renene.2019.04.114>.
- Lisowski, A., Pajor, M., Świętochowski, A., Dąbrowska, M., Klonowski, J., Mieszkalski, L., Ekielski, A., Stasiak, M., Piątek, M., 2019b. Effects of moisture content, temperature, and die thickness on the compaction process, and the density and strength of walnut shell pellets. *Renew. Energy* 141, 770–781. <https://doi.org/10.1016/j.renene.2019.04.050>.
- Malone, G., Gedamu, N., 1995. Pelleted newspaper as a broiler litter material. *App. Poult. Sci.* 4, 49–54. <https://doi.org/10.1093/japr/4.1.49>.
- Mani, S., Tabil, L.G., Sokhansanj, S., 2003. An overview of compaction of biomass grinds. *Powder Handling Process.* 15, 160–168.
- Miao, Z., Phillips, J.W., Griff, T.E., Mathanker, S.K., 2015. Measurement of mechanical compressive properties and densification energy requirement of Miscanthus × giganteus and switchgrass. *Bioenergy Res.* 8, 152–164. <https://doi.org/10.1007/s12155-014-9495-8>.
- Miller, G.A., Baddeley, A., Shiffrin, R.M., Nosofsky, R.M., 1994. The magical number seven, plus or minus two: some limits on our capacity for processing information. *Psychol. Rev.* 101, 343–352.
- Nielsen, S.K., Mandø, M., Rosenørn, A.B., 2020. Review of die design and process parameters in the biomass pelletizing process. *Powder Technol.* <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2019.10.051>.
- O'Dogherty, M.J., 1989. A review of the mechanical behaviour of straw when compressed to high densities. *J. agric. Engng. Res.* 44, 241–265.
- Rossouw, P.E., Kamelchuk, L.S., Kusy, R.P., 2003. A fundamental review of variables associated with low velocity frictional dynamics. *Semin. Orthod.* 9, 223–235. <https://doi.org/10.1016/j.sodo.2003.08.003>.
- Sedláček, P., Mucha, N., Pectová, I., Fečko, P., 2007. Ekologické pelety z hnědoho uhlí a biomasy. *Acta Montan. Slovaca* 12, 274–277.
- Spencer, R.S., Gilmore, G.D., Wiley, R.M., 1950. Behavior of granulated polymers under pressure. *J. Appl. Phys.* 21, 527–531. <https://doi.org/10.1063/1.1699700>.
- Stasiak, M., Molenda, M., Barida, M., Wiącek, J., Parafiniuk, P., Gondek, E., 2017. Mechanical and combustion properties of sawdust–straw pellets blended in different proportions. *Fuel Process. Technol.* 156, 366–375. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2016.09.021>.
- Stelte, W., Clemons, C., Holm, J.K., Ahrenfeldt, J., Henriksen, U.B., Sanadi, A.R., 2012a. Fuel pellets from wheat straw: the effect of lignin glass transition and surface waxes on pelletizing properties. *Bioenergy Res.* 5, 450–458. <https://doi.org/10.1007/s12155-011-9169-8>.
- Stelte, W., Sanadi, A.R., Shang, L., Holm, J.K., Ahrenfeldt, J., Henriksen, U.B., 2012b. Recent developments in biomass pelletization- a review. *Bio Res.* 7, 4451–4490.
- Tumuluru, J.S., Wright, C.T., Hess, J.R., Kenney, K.L., 2011. A review of biomass densification systems to develop uniform feedstock commodities for bioenergy application. *Biofuel. Bioprod. Bior.* 5, 683–707. <https://doi.org/10.1002/bbb.324>.
- Uzun, B.B., Yaman, E., 2014. Thermogravimetric characteristics and kinetics of scrap tyre and Juglans regia shell co-pyrolysis. *Waste Manag. Res.* 32, 961–970. <https://doi.org/10.1177/0734242X14539722>.
- Viswanathan, R., Gothandapani, L., 1999. Pressure density relationships and stress relaxation characteristics of coir pith. *J. Agric. Eng. Res.* 73, 217–225.
- Wang, Y., Wu, K., Sun, Y., 2017. Pelletizing properties of wheat straw blending with rice straw. *Energy Fuels* 31, 5126–5134. <https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.7b00097>.
- Xia, X., Zhang, K., Xiao, H., Xiao, S., Song, Z., Yang, Z., 2019. Effects of additives and hydrothermal pretreatment on the pelletizing process of rice straw: energy consumption and pellets quality. *Ind. Crop. Prod.* 133, 178–184. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2019.03.007>.
- Xu, H., Zhou, S., Jin, X., Liu, Y., 2014. Monte Carlo simulation of the induction time and particle size distribution in the nucleation of calcium carbonate. *Powder Technol.* 253, 242–246. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2013.11.003>.
- Youssef, I.M.I., Beineke, A., Rohn, K., Kamphues, J., 2010. Experimental study on effects of litter material and its quality on foot pad dermatitis in growing Turkeys. *Int. J. Poultry Sci.* 9, 1125–1135. <https://doi.org/10.3923/ijps.2010.1125.1135>.

SI APPENDIX

Table S1. Pelleting factors and levels of mixed-level orthogonal array design

Level	Moisture content, <i>MC</i> , % w.b.	Material temperature, <i>t</i> , °C	Die height <i>l_c</i> , mm	Additive ratio <i>A</i> , %	Additive type
1	10	78	66	0	CS
2	20	93	76	2	CC
3	30	108	86	6	
4				10	

Table S2. Correlation matrix for type of additive, additive ratio (A), material moisture content (MC), agglomerate length (die height) (l_c), material temperature (t), DM single pellet density (ρ_p), piston displacement at maximum agglomeration pressure (s_m), pellet shift in the die (v_p), specific compaction work (L_s), and specific work for pellet shifting in the die (L_v).

Parameter	Additive	A	MC	l_c	t	ρ_p	s_m	v_p	L_s	L_v
Additive	1.000									
A	0.486 ^a	1.000								
MC	0.001	-0.004	1.000							
l_c	0.004	-0.001	-0.005	1.000						
t	-0.003	0.003	0.008	0.005	1.000					
ρ_p	0.021	-0.056	0.186 ^a	0.112 ^a	-0.404 ^a	1.000				
s_m	-0.225 ^a	-0.063	0.156 ^a	0.143 ^a	-0.377 ^a	0.468 ^a	1.000			
v_p	0.033	-0.010	-0.571 ^a	-0.183 ^a	0.349 ^a	-0.553 ^a	-0.667 ^a	1.000		
L_s	-0.071	-0.022	0.405 ^a	0.049	-0.255 ^a	0.593 ^a	0.408 ^a	-0.547 ^a	1.000	
L_v	-0.088 ^a	-0.088 ^a	0.400 ^a	0.097 ^a	-0.343 ^a	0.588 ^a	0.332 ^a	-0.515 ^a	0.839 ^a	1.000

^a statistically significant at p-value = 0.05

Table S3. Optimum condition for characteristic parameters of forming pellets with three different types of materials

	s_m	v_p	L_s	L_v	ρ_p
Wheat straw (WS)					
MC , %	13.9	30.0	30.0	22.1	13.2
l_c , mm	83.0	86.0	66.0	86.0	86.0
t , °C	78.3	78.0	93.8	78.0	78.9
Optimum value	18.7 mm	1.48 mm	33.5 kJ·kg ⁻¹	34.8 kJ·kg ⁻¹	785 kg·m ⁻³
Wheat straw and cassava starch (WS+CS)					
A , %	0.00	0.00	4.00	0.00	0.00
l_c , mm	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0
t , °C	66.0	71.0	71.6	72.9	73.3
l_c , mm	78.0	78.0	78.0	108.0	78.0
Optimum value	7.49 mm	2.27 mm	32.7 kJ·kg ⁻¹	28.7 kJ·kg ⁻¹	682 kg·m ⁻³
Wheat straw and calcium carbonate (WS+CC)					
A , %	0.00	10.0	10.0	10.0	0.00
l_c , mm	10.0	25.7	18.7	21.1	18.1
t , °C	66.0	77.3	66.0	66.0	86.0
l_c , mm	108	78.0	78.0	78.0	78.0
Optimum value	5.14 mm	2.96 mm	29.2 kJ·kg ⁻¹	21.7 kJ·kg ⁻¹	853 kg·m ⁻³
For all					
A , %	0.00	10.00	0.00	0.00	4.00
l_c , mm	13.6	29.3	24.3	26.6	23.3
t , °C	86.0	78.3	86.0	86.0	78.5
l_c , mm	78.0	78.0	78.0	78.0	80.2
Optimum value	16.8 mm	1.67 mm	31.6 kJ·kg ⁻¹	28.9 kJ·kg ⁻¹	633 kg·m ⁻³

A : additive ratio, MC : moisture content, l_c : die height, t : material temperature, s_m : piston

displacement at maximum agglomeration pressure, v_p : pellet shift in the die, L_s : specific compaction work, L_v : specific work for pellet shifting in the die, and ρ_p : single pellet density.

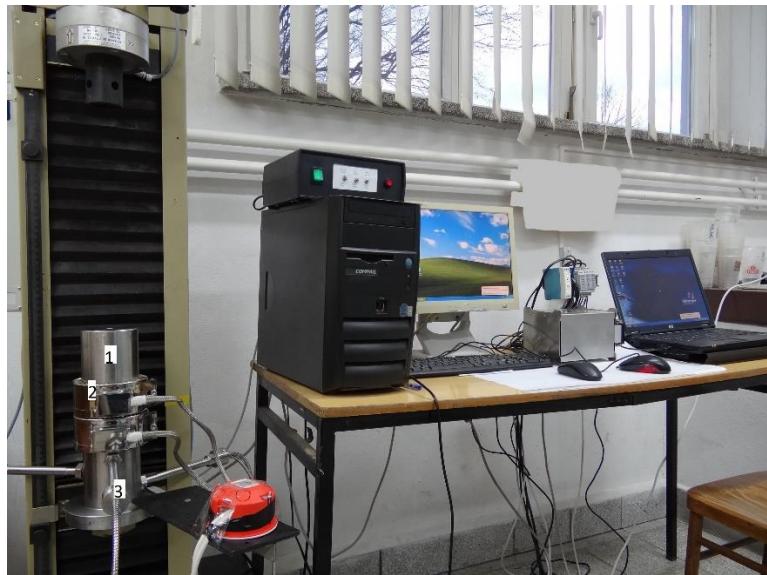


Fig. S1. A stand for densification of material with a single die, with an open chamber, with a universal test machine and the steering system. System for registration of the parameters of the compaction process: 1 – die, 2 – electric bands (2 pieces), 3 – integrated temperature and pressure sensor (3 pieces).



Fig. S2. An exemplary photo of pellets made of the blend of WS and CS at different technical parameters of compaction: material moisture content, die height, material temperature, and additive ratio

Article

Characterisation of Wheat Straw Pellets Individually and in Combination with Cassava Starch or Calcium Carbonate under Various Compaction Conditions: Determination of Pellet Strength and Water Absorption Capacity

Patryk Matkowski, Aleksander Lisowski * and Adam Świętochowski

Department of Biosystems Engineering, Institute of Mechanical Engineering, Warsaw University of Life Sciences, Nowoursynowska 166, 02-787 Warsaw, Poland; patryk_matkowski@sggw.edu.pl (P.M.); adam_swietochowski@sggw.edu.pl (A.Ś.)

* Correspondence: aleksander_lisowski@sggw.pl

Received: 9 September 2020; Accepted: 28 September 2020; Published: 1 October 2020



Abstract: This study aimed to optimise the production conditions of wheat straw (WS) pellets and pellets with the additives of cassava starch (CS) or calcium carbonate (CC) based on the criteria of pellet strength and water absorption by crushed pellets. The pellets produced using a 2–10%-wt/wt additive ratio, material moisture of 10–30% w.b., die height of 66–86 mm, and material temperature of 78–108 °C were tested. The influence these factors on the strength parameters of pellets was different than on the water absorption by the crushed pellets. The pellets made of WS blended with CC additive were characterised by better strength parameters and the compressed pellets were characterised by better water absorption than those with CS. High and positive correlation among specific pellet compression work, elasticity modulus for pellet compression, and tensile strength values were observed. As the strength parameters of pellets showed high correlation with single pellet density, for the consistency of conclusions, the optimal conditions for pellet production were assumed based on the density. For optimal conditions at 4% wt/wt additive ratio, 23% w.b. material moisture, 78 mm die height, and 80 °C material temperature, the specific pellet compression work was 3.22 mJ·mm⁻², elasticity modulus was 5.78 MPa, and maximum tensile strength of the pellets was 2.68 MPa; moreover, the water absorption by crushed pellets amounted to 2.60 g H₂O·g⁻¹ of dry matter.

Keywords: additives; crushed pellets; optimization; regression models; tensile strength

1. Introduction

The bedding material type, particles size, as well as moisture bedding and caking, have been identified as the main factors to birds' welfare [1]. In comparative tests of pelleted straw, chopped wheat straw (WS), wood chips, rice straw, and shredded paper as bedding material, pelleted straw showed the lowest incidence of foot-pad dermatitis (FPD) [2]. The occurrence or appearance of FPD is less frequent by 24 to 29 days among birds kept on pelleted straw in compared to birds kept on chopped straw and paper. This may be connected with its ability to absorb water and vaporisation speed as pelleted straw is denser than chopped straw, causing less crushing of the bedding material and creation of small particles. The results of comparative studies of four classes of western red cedar (*Thuja plicata*) wood chips and Douglas fir (*Pseudotsuga menziesii*) with western juniper (*Juniperus occidentalis*) show that the absorption capacity and rate of moisture release increase with decreasing particle size [3]. Smaller bedding particle sizes and increased bedding quality are associated with reduced FPD [4].

Sharp edges of chopped straw may be responsible for the occurrence of FPD [1]. Bedding material with large particle size and high moisture content also had an impact on the development of FPD [4]. The significantly high correlation between high bedding material moisture, caking results, and FPD occurrence frequency has been previously recorded [1]. Chipped pine, chopped straw, cotton-gin trash, and pine shaving bedding have shown the highest correlation. Mortar sand and ground door filler (a wood fibre-based material used in insulating metal doors) showed the lowest value of FDP occurrence. The ability of bedding to absorb and quickly release moisture may be the most important bedding feature for preventing FDP [1].

The evaluation of pellet quality can be conducted using various indicators. Previous considerations that take into account the relationships among parameters indicate the effect of pellet production, with its ability to absorb water, is important and significant to this study [2,5]. These parameters are also relevant to energy pellets, where their ability to absorb water or moisture should be as low as possible. Water absorption by biomass is the process of resulting molecules, atoms, or ions and adsorption is a surface phenomenon. Often these phenomena occur simultaneously and are referred to as sorption. The absorption mechanism of bedding or fluid-treated pellets by the entire volume of particles dominates and whose intensity is time, is defined as the diffusion coefficient. Moisture diffusion in the material structure depends on the type of the material, volume of micro gaps among particles, and volume of particles or pellets, fibre fraction volumes, the speed of the mass stream, time, additives, moisture, relative humidity, and air temperature [6,7]. Smaller particles and higher temperature increase the speed of absorption. The modification of the structure of the pellets intended for the bedding should be directed on enhancing hygroscopic characteristics, contrary to energy pellets. There are more moisture absorption data results from the air by energy pellets made of blends of various materials, than by the pellets intended for bedding. If the fuel pellets do not meet the trade conditions, they can be used for bedding [5].

The moisture content of crushed straw was statistically higher than pelleted wheat straw, chipwood, and rice straw [2,8]. This result may be linked with the higher ability of crushed straw to absorb and release the water.

The comparative studies with pine shavings and sawdust have shown that shredded pellets have a good moisture retention capacity, an acceptable level of fine particles, and a low level of chemical contamination [9].

The production of stable pellets with high density requires the optimal range of biomass moisture. In the defined temperature, water acts as a bonding agent, enhancing the bonds among material particles, helping to develop van der Waals forces, and increasing the area of contact among moister particles [10]. The lignin melting point can be lowered from 140 °C [11] to 100–135 °C (usually achieved during commercial pelleting) using moisture of 8–15% in biomass raw materials [12].

The analysis of several factors influencing the quality of pellets, especially density and strength, requires optimisation methods. For this purpose, linear and nonlinear regression equations are used, as well as more advanced analytic methods. The optimisation is based on linking all these aims with respect to the relevant factors [13].

There are not enough research results in the available literature for bedding pellets made of WS with cassava starch (CS) or calcium carbonate (CC) additives at various moisture and density parameters. There is also not enough information about the optimal conditions for undertaking the process of densification of such blends due to the strength of pellets and water absorption ability by crushed pellets intended for bedding.

The aim of this study was to determine the most favourable combinations of the density parameters of WS by itself and blended with CS or CC as bonding additives by maximising the pellets' compressive strength and water absorption by crushed pellets (k). The parameters characterising the pellets compressive strength were specific pellet compression work (E_j), during which the pellets cracked; elasticity modulus (E); and maximum tensile strength (σ_c). Crushed pellets as a potential material for bedding were accessed on the basis of k . In the analysis of these research results, the single pellet

density (ρ_p) was also taken into account in the evaluation of the compression process. The control variables were the participation of bonding additives CC and CS, material moisture content (MC), die height (l_c), and material temperature (t) during agglomeration pressure. The obtained data results, being criterion indicators for the quality of pellets, were elaborated in a statistical manner using variant analysis and features correlation. For the response function, mathematical models and optimisation of compaction conditions due to assumed criterion indicators were developed. The novelty in the work was the type of logically selected bonding additives to WS in the production of pellets for bedding and its influence on the quality of pellets, including on k and the optimisation of compaction conditions using Scilab v.6.02 software.

The selection of additives and factors with their level of values were presented in our two previous articles [14,15].

2. Materials and Methods

2.1. Materials

For this study, the pellets made of WS were used with CC or CS as bonding additives, with the involvement of three additive ratios (A) (2, 6, and 10% wt/wt) and three levels of MC (10, 20, and 30% w.b.). The pellets were made of die in an open chamber with adjustable heights of 66, 76, and 86 mm at temperatures of 78, 93, and 108 °C (Table 1). The additive ratio of 0% wt/wt means pure WS. These described factors are the most important characteristics of the material and the pelleting process. The range of values for these factors was selected on the basis of preliminary research with taking into account the practical use. More information about the selection of factors were provided in our first article [15]. The selection of additives was dictated by their physicochemical properties, hygroscopicity, neutrality towards the environment and the positive effect on the litter properties. A wide range of factor values will allow for more reliable determination of optimal pelleting conditions, due to the strength of the pellets and their water absorption capacity. In order to receive the more reliable database, the tests for each combination of factors and levels were performed.

Table 1. Pelleting factors and levels.

Level	Moisture Content, MC, % w.b.	Material Temperature, t , °C	Die Height, l_c , mm	Additive Ratio, A , %	Additive Type
1	10	78	66	0	CS
2	20	93	76	2	CC
3	30	108	86	6	—
4	—	—	—	10	—

2.2. Material Moisture Content (MC)

Immediately before the measurements of pellet compression and k , the MC was determined [16]. The samples of the milled material with a weight of 2 g each were weighed on an analytical balance (WPA 40/160/C/1, Radwag, Radom, Poland) with a 0.00001 g accuracy and dried at a temperature of 105 ± 2 °C for 24 h using an SLW 115 laboratory dryer (Pol-Eko Aparatura, Wodzisław Śląski, Poland). The moisture measurements were reported three times for every combination. As the samples were stored in a room with the same temperature of 20 ± 2 °C and relative humidity of $68\% \pm 5\%$, they achieved moisture equilibrium moisture. The average value of the MC of all combinations was estimated as $8.15\% \pm 0.03\%$ w.b. The research results were converted into a dry matter (DM).

2.3. Pellets Strength to Compressive Loads

The strength of single pellets for compressive loads was determined by diametric compression tests, which have been widely used by researchers [17–19]. The pellets were cut in 20 mm pieces using a scalpel. The front surfaces of the pellets were ground and the samples placed in triangular element

to keep the surfaces perpendicular to the pellet axis. The diameter of pellets was measured at half of their length in two perpendicular directions. Their length was measured using a MAUa-E2 4F digital calliper (FK Vis, Warsaw, Poland) with an accuracy of 0.01 mm. Each pellet was weighed on an electronic scale (WPS 600/C, Radwag, Radom, Poland) with an accuracy of 0.01 g.

The pellets were placed individually on the steel plate of the TIRAtest (Matest, Łódź, Poland) universal testing machine and were compressed with a $25 \times 50 \text{ mm}^2$ punch with a speed of $5 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$ until the moment when the piston shifted 4 mm (8 mm pellet diameter) (Figure S1 in Supplementary Materials). The measurements were performed three times for each combination of the pellet production. The pellets compressive strength was assessed by determining E_j , E , and σ_c [20]. As this parameter is defined differently in the literature, the term more commonly used has been adopted [21].

2.4. Pellet Strength Parameters during Compression

Based on the set of data force-displacement, the strength parameters during compression were set as E_j , E , and σ_c at which the pellet cracked based on the following relationships:

$$E_j = \frac{1}{S} \int_0^{\Delta l} F dx \quad (1)$$

$$E = \frac{Fd}{S\Delta l} \quad (2)$$

$$\sigma_c = \frac{2F_{max}}{\pi d l_p}, \quad (3)$$

where E_j is the specific compression work, in $\text{mJ} \cdot \text{mm}^{-2}$, until pellet cracking is achieved; F is the compression force in N; S is the surface of the pellet subjected to load in mm^2 ; x is the punch displacement in mm, equal to pellet deformation; E is the elasticity modulus at compression in MPa; d is the pellet diameter in mm before loading; Δl is the radial displacement of the punch (pellet deformation under load) in mm; σ_c is the maximum tensile strength during pellet cracking in MPa; F_{max} is the maximum compression force in N; and l_p is the pellet length in mm.

2.5. Water Absorption

Directly after the pellet compression tests, the samples of the crushed pellets were placed in a coffee brewer of known weight (tare) and weighed on an electronic scale (WLC1/A2, Radwag, Radom, Poland) with an accuracy ± 0.01 g. These tests were conducted by immersing the samples in purified water at $20 \pm 1^\circ\text{C}$ for 30 min. The coffee brewers with pellets were left to drain for 5 min. After taking them out of the water, they were gently shaken three times to remove excess water from the screen of the sieve and weighed again (Figure S2).

The difference in mass of the sample after and before immersing is k . The value of k , based on dry matter mass, was calculated according to the following formula:

$$k = (m_{s1} - m_{s0}) / m_{s0} (1 - MC/100), \quad (4)$$

where k is water absorption by crushed pellets in $\text{g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$ DM; m_{s1} is the weight in g of the sample of pellets crushed after immersion in water; m_{s0} is a mass in g of sample of pellets crushed before immersion in water; and MC is the moisture in % of the pellets crushed before immersing in water

In the same way, for contrast, the water absorption of chopped WS and blends of WS with CS or CC with A values of 2%, 6%, and 10% wt/wt was tested. In the comparative research, only the material with the lowest moisture 10% w.b. was used because only dry material was used as bedding.

2.6. A Method for Optimising Compaction Conditions Due to the Pellets' Strength and Their Water Absorption Capacity

The control variables for WS with CS or CC were: A , MC , l_c , and t . The responses of the dependent variables, E_j , E , σ_c , and k , were calculated based on values obtained from experiments and can be defined as a general regression Equation:

$$y_n = \beta_0 + \sum_{i=1}^4 \beta_i x_i + \sum_{i=1}^4 \beta_{ii} x_i^2 + \sum_{i=1}^3 \sum_{j=i+1}^4 \beta_{ij} x_i x_j, \quad (n = 1, 2, 3, 4), \quad (5)$$

where y_1 is the specific pellet compression work (E_j in $\text{mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$); y_2 is elasticity modulus (E in MPa); y_3 is a tensile strength of pellets (σ_c in MPa); y_4 is water absorption by crushed pellets (k in $\text{g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$ DM); x_1 is the additive ratio (A in % wt/wt); x_2 is the material moisture content (MC in % w.b.); x_3 is the die height (l_c in mm); x_4 is the material temperature (t in $^\circ\text{C}$); β_0 , β_i , β_{ii} , and β_{ij} are the coefficients of intercept terms, linear terms, quadratic terms, and interaction terms in the equation, respectively.

For the objective function (Equation (5)) relative to the four control variables A , MC , l_c , and t , the gradient g_n was determined using finite differences in the matrix equation form.

$$g_n = \left[\frac{\partial g_n}{\partial A}, \frac{\partial g_n}{\partial MC}, \frac{\partial g_n}{\partial l_c}, \frac{\partial g_n}{\partial t} \right] \quad (6)$$

The minimising function, $y_n(A, MC, l_c, t)$ was calculated at the initial conditions of the decision variables A_0 , MC_0 , l_{c0} , and t_0 being 4% wt/wt, 15% w.b., 70 mm, 90 $^\circ\text{C}$, respectively, with the bound constraints being 0% wt/wt $\leq A \leq$ 10% wt/wt, 10% w.b. $\leq MC \leq$ 30% w.b., 66 mm $\leq l_c \leq$ 86 mm, and 78 $^\circ\text{C} \leq t \leq$ 108 $^\circ\text{C}$.

To minimise the non-linear function $\min_{MC, l_c, t, A} y_n(MC, l_c, t, A)$, an "optim" function with the Quasi-Newton algorithm was used.

The optimal process parameters for the objective function and graphs were developed using the open-source software package Scilab v.6.0.2.

2.7. Statistical Analysis

The data were analysed for the influence of factors (the type of material, A , MC , l_c , and t) on the resistance features of pellets (E_j , E , σ_c) and k using the multi-criteria MANOVA variance analysis with an F test (Fisher-Snedecor). The statistical importance of the differences between the average values of the parameters was determined using the Tukey test method in relation to criterion parameters characterising pellet strength and k . The analysis was conducted with an assumed significance level of $p \leq 0.05$. Statistica v.13.3 (StatSoft Polska Ltd., Cracow, Poland) was used for the statistical analysis.

3. Results and Discussion

3.1. Research Results

In majority of the cases, the main factors (additive type, A , MC , l_c , and t) of pellet quality parameters ($p < 0.0002$, Table 2) showed highly significant statistical differences.

Factor A was insignificant for E_j ($p = 0.0523$), E ($p = 0.5438$), and σ_c ($p = 0.2428$). The feature l_c did not significantly affect the differences in the E ($p = 0.4100$). The matrix of correlation coefficients among the quality parameters of pellets and control variables is presented in Table. The ρ_p value was included in the joint interpretation of the strength parameters and k .

The values of the regression coefficients for the mathematical models of strength parameters and k are shown in Table S2. Their graphic interpretation is shown in Figures 1–4. The optimal values of control variables, for which the objective functions characterising the quality of pellets reached their optimum tested limits of control variables, are presented in Table 3.

Table 2. Results of analysis of variance, mean values, and standard deviation (SD) of dry matter (DM) single pellet density, specific pellet compression work, elasticity modulus for pellet compression, tensile strength, water absorption by crushed pellets for different type of additive, A , MC , l_c , and t .

Factor	ρ_p , kg m ⁻³	E_j , mJ·mm ⁻²	E , MPa	σ_c , MPa	k , g H ₂ O·g ⁻¹ DM
<i>p</i> -value					
Additive	0.0285	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
A	<0.0001	0.0523	0.5438	0.2428	<0.0001
MC	<0.0001	0.0002	<0.0001	<0.0001	<0.0001
l_c	<0.0001	<0.0001	0.4100	<0.0001	<0.0001
t	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
Mean and \pm SD for type of additive					
WS	490 c* \pm 23	2.53 b \pm 0.19	4.62 b \pm 0.30	1.95 b \pm 0.17	5.45 c \pm 0.16
CS	405 a \pm 11	1.28 a \pm 0.08	7.42 c \pm 0.26	1.23 a \pm 0.09	2.24 a \pm 0.04
CC	475 b \pm 18	2.66 b \pm 0.20	2.39 a \pm 0.12	2.11 b \pm 0.15	4.80 b \pm 0.11
Mean and \pm SD for additive ratio A (% wt/wt)					
0	490 c \pm 23	2.53 c \pm 0.19	4.62 a \pm 0.30	1.95 a \pm 0.17	5.45 c \pm 0.16
2	446 b \pm 18	2.07 b \pm 0.19	5.19 a \pm 0.32	1.75 a \pm 0.15	3.56 b \pm 0.15
6	430 a \pm 18	1.92 a \pm 0.19	4.80 a \pm 0.31	1.68 a \pm 0.15	3.69 b \pm 0.15
10	443 ab \pm 19	1.92 a \pm 0.21	4.73 a \pm 0.32	1.58 a \pm 0.15	3.30 a \pm 0.12
Mean and \pm SD for material moisture content MC (% w.b.)					
10	372 a \pm 15	1.12 a \pm 0.11	4.12 a \pm 0.24	0.85 a \pm 0.09	4.40 c \pm 0.14
20	495 c \pm 19	2.51 b \pm 0.20	4.73 b \pm 0.25	1.98 b \pm 0.15	3.35 a \pm 0.11
30	479 b \pm 14	2.57 b \pm 0.17	5.71 c \pm 0.32	2.31 c \pm 0.14	3.64 b \pm 0.14
Mean and \pm SD for die height l_c (mm)					
66	402 a \pm 15	1.81 a \pm 0.17	4.75 a \pm 0.30	1.43 a \pm 0.13	4.00 c \pm 0.15
76	479 c \pm 17	2.12 b \pm 0.18	4.98 a \pm 0.27	1.83 b \pm 0.14	3.83 b \pm 0.14
86	466 b \pm 17	2.28 b \pm 0.17	4.84 a \pm 0.26	1.90 b \pm 0.14	3.56 a \pm 0.12
Mean and \pm SD for material temperature t (°C)					
78	542 c \pm 18	2.60 b \pm 0.19	5.25 b \pm 0.28	2.25 b \pm 0.15	3.35 a \pm 0.12
93	494 b \pm 16	2.57 b \pm 0.19	5.83 c \pm 0.27	2.11 b \pm 0.15	3.60 b \pm 0.12
108	310 a \pm 10	1.03 a \pm 0.08	3.48 a \pm 0.25	0.79 a \pm 0.07	4.44 c \pm 0.15

ρ_p , single pellet density; E_j , specific pellet compression work; E , elasticity modulus for pellet compression; σ_c , tensile strength; k , water absorption by crushed pellets; A , additive ratio; MC , material moisture contents; l_c , die height; t , material temperatures. * different letters in each column and factors within a value represent a significant difference at $p < 0.05$ using Tukey's test.

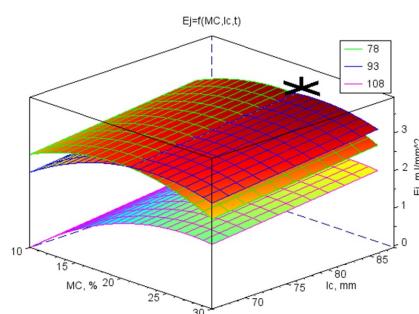


Figure 1. The surface chart of specific pellet compression work E_j vs. material moisture MC and die height l_c for three material temperature levels t (78, 93, and 108 °C) with the marked optimal point $A = 0.00\%$ wt/wt, $MC = 21.6\%$ w.b., $l_c = 86$ mm, $t = 86$ °C, for which optimum value of E_j is $3.66 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$.

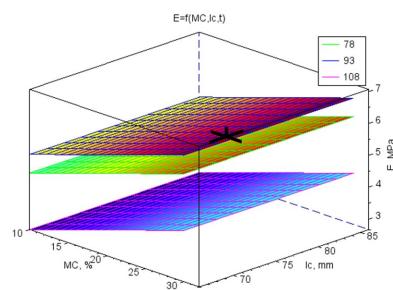


Figure 2. The surface chart of the elasticity modulus for pellet compression E vs. material moisture MC and die height l_c for three material temperature levels t (78, 93 and 108 °C) with the marked highest point $A = 4.00\% \text{ wt/wt}$, $MC = 30.0\% \text{ w.b.}$, $l_c = 71.0 \text{ mm}$, $t = 88.5 \text{ °C}$, for which the optimal value of E is 6.77 MPa.

Table 3. The most favourable condition for characteristics parameters of pellets strength and the single pellets density and water absorption by crushed pellets with three different types of materials.

	ρ_p	E_j	E	σ_c	k
Wheat straw (WS)					
$MC, \%$	13.2	30.0	23.2	30.0	10.0
l_c, mm	86.0	86.0	86.0	86.0	66.0
$t, \text{°C}$	78.9	91.6	91.2	90.9	108
Optimum value	$785 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$	$4.64 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$	8.69 MPa	3.56 MPa	$6.99 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$
Wheat straw and cassava starch (WS + CS)					
$A, \%$	0.00	0.00	0.00	4.00	6.10
$MC, \%$	30.0	30.0	30.0	30.0	10.0
l_c, mm	73.3	71.0	66.0	76.1	66.0
$t, \text{°C}$	78.0	78.0	87.8	78.0	81.2
Optimum value	$682 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$	$2.30 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$	11.96 MPa	3.16 MPa	$3.15 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$
Wheat straw and calcium carbonate (WS + CC)					
$A, \%$	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
$MC, \%$	18.1	16.1	10.0	16.9	10.0
l_c, mm	86.0	71.0	86.0	71.0	66.0
$t, \text{°C}$	78.0	78.0	78.0	78.0	108.0
Optimum value	$853 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$	$6.10 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$	5.54 MPa	4.17 MPa	$6.99 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$
For all					
$A, \%$	4.00	0.00	4.00	4.00	0.00
$MC, \%$	23.3	21.6	30.0	30.0	10.0
l_c, mm	78.5	86.0	71.0	86.0	66.0
$t, \text{°C}$	80.2	86.0	88.5	87.6	108.0
Optimum value	$633 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$	$3.66 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$	6.77 MPa	3.06 MPa	$6.28 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$

A: additive ratio, MC: moisture content, l_c : die height, t : material temperature, ρ_p : DM single pellet density, E_j : specific pellet compression work, E : elasticity modulus for pellet compression, σ_c : pellets tensile strength, k : water absorption by crushed pellets.

3.2. Specific Pellet Compression Work E_j

The pellets made of the WS blend with CC were characterised by the largest E_j ($2.66 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$) during the deformation until cracking. The pellets made of pure WS required slightly less destructive work (by 5%) but without a statistically significant difference. The pellets made of the WS blend with CS were characterised by the lowest of E_j ($1.28 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$).

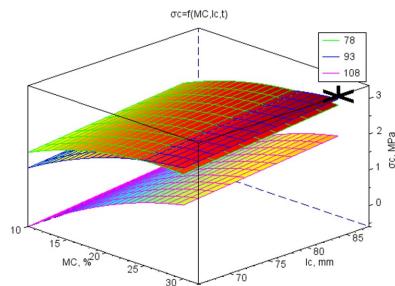


Figure 3. The surface chart of pellet tensile strength σ_c vs. material moisture MC and die height l_c for three material temperature levels t (78, 93, and 108 °C) with the marked optimal point $A = 4.00\%$ wt/wt, $MC = 30.0\%$ w.b., $l_c = 86$ mm, $t = 87.6$ °C, for which the optimal value of σ_c is 3.06 MPa.

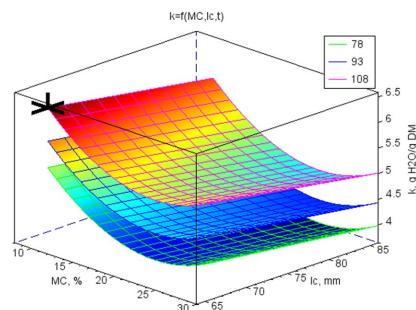


Figure 4. The surface chart of water absorption by crushed pellets k vs. material moisture MC and die height l_c for three material temperature levels t (78, 93, and 108 °C) with marked highest point $A = 0.00\%$ wt/wt, $MC = 10.0\%$ w.b., $l_c = 66$ mm, $t = 108.0$ °C, for which the optimal value of k is 6.28 g H₂O·g⁻¹ DM.

Cracking cross-sections depend on the particle size arrangement [22] and amount of adhesive bonds associated with surface wettability [23]. There is a positive relationship between wettability and wood adhesion [24].

The CS additive probably reduced the wettability of the surface and reduced the adhesion among particles whose grains were crystalline and finely porous [25]. CC grains form clusters that combine randomly with larger aggregates and have the ability to combine with lignocellulose particles, which makes the bonds durable [26].

Increasing the additive ratio to WS contributed to an insignificant decrease of E_j . The CS additive decided of this averaged, negative downward trend of decreasing work vs. additive ratio. It can only be pointed out the tendency, because the statistical analysis shows that the influence of involvement of additives was not unambiguous ($p = 0.0523$), and the values of correlation coefficients were not correlated (Table S1).

The pellets with increased moisture content were characterised by higher resistance to compression loads. The growth of E_j was significantly higher in the first moisture range (10–20% w.b.) than in the second (20–30% w.b.), amounting to 124% and 2%, respectively.

In the second range, the differences were statistically insignificant and at the moisture level slightly higher than 20% w.b. the parameter reached the stabilisation state. The significant growth of E_j was recorded at the highest t of 108 °C. At 78 °C and 93 °C, the change courses of E_j reached plateaus (Figure 1). Contrary to the MC , the growth of the t decreased σ_c . At ranges of 78–93 °C and 93–108 °C, the decline amounted to 1% and 60%, respectively. For lignocellulose pellets, temperature was the most important factor for σ_c , followed by the compaction pressure, particles size, and MC [19]. On the other hand, the changes of E_j vs. l_c were proportional and had a digressive gradient. It is logical because at the higher l_c , pellets were more densified and higher work was needed in order to the pellets cracking.

The work E_j needed for the pellet to crack increased with an increase in the value of ρ_p because the correlations between these parameters were either high, $r = 0.514$ for the blend of WS with CS or very

high, with $r = 0.813$ and $r = 0.816$ for WS and the blend of WS with CC, respectively (Table S1). High or very high correlations were recorded among E_j , E , and σ_c . A negatively high correlation ($r \approx -0.5$) was recorded between E_j and k ; the less the pellet was immersed in water, the more it was resistant to cracking.

In summary, the influence of CC was more significant than CS as an additive to WS due to the need to use larger E_j for the pellets to crack. The involvement of bonding additives did not have a higher influence on the E_j . The influence of the l_c on the resistance of the pellet to cracking during radial compressive load was also confirmed [19]. The influences of MC and t were contrary and with an exponential shift, with characteristics increasing to a plateau for E_j as the moisture increased and with inverted characteristics as t decreased (Figure 1).

The increase in temperature caused changes in the physicochemical properties of the lignocellulosic compounds of WS, leading partially to the decrystallisation of particles. At higher MC, this caused a shift of the glass transition temperature towards lower values [27]. The moisture effect vs. temperature was more visible for pure WS. For the WS bonded with CC, it densified at the highest t of 108 °C. The characteristics of E_j for the CS and CC additives were different; the former was characterised by concavity with a minimum for the temperature of 108 °C and the latter by convexity with a maximum at 78 °C.

3.3. Elasticity Modulus for Pellet Compression E

The average value of E was the highest (7.42 MPa) for the pellets made of WS and CS blends and lowest (2.39 MPa) for the pellets made of WS and CC blends. The E for the pellets made of pure WS was 4.62 MPa.

The CS has a low porosity crystal structure and is characterised by high adhesiveness and long texture; its addition increased the density effect as indicated in the starch characteristics [28]. Adding CC and improving the plasticity of the blends, including WS, contributed to decreasing the elasticity of pellets.

E increased progressively along with MC; within the following moisture ranges 10–20% w.b. and 20–30% w.b., E growth amounted to 15% and 21%, respectively. WS particles and additives filled out with moisture absorption and could have better elasticity at higher moisture. Moreover, water is incompressible; hence its greater share in the material increases its elasticity. Water absorption by 5–25 µ starch grains occurred at relatively low temperatures [25] and, as a result, E was higher within these temperature ranges. The highest E (5.83 MPa) was recorded for pellets produced at 93 °C. At 78 °C, the value of E decreased by 10% and at the highest temperature (108 °C), it decreased by 40%. This shows that there is optimal moisture at which E reaches a maximum value (Figure 2).

The correlation between E and t was negative and weak. E correlated very highly with E_j and σ_c , correlation coefficient values higher for the pellets of WS blends with CC than with CS and similar to the value for pure WS pellets, with an average r value of ~0.7 (Table S1).

3.4. Maximum Tensile Strength σ_c

The pellets made of WS with CC had the highest average values of σ_c (2.11 MPa). They were higher by 71% than σ_c for the pellets of WS with CS. The highest growth of σ_c was recorded for the increase of MC from 10% w.b. to 20% w.b. which was 133%. In the 20–30% moisture range, this growth was 17%. A similar tendency but with a gradient level four times lower was observed for the following die height ranges $l_c = 66\text{--}76$ mm and $l_c = 76\text{--}86$ mm, in which the growth values of σ_c were 28% and 4%, respectively. The reverse tendency in MC and l_c was apparent in the temperatures; in the ranges of 78–93 °C and 93–108 °C, the decrease of σ_c amounted to 6% and 63%, respectively. These differences are visible in the σ_c vs. MC and l_c diagrams for the three temperature levels (Figure 3). Higher water content decreased the temperature of softening point of lignin and increased the softness of fibrous materials at high temperatures [28]. The highest temperature of 108 °C led to a significant plasticisation of lignin and reduction of pellet strength. Thus, t should be lowered as indicated in the production of

rice straw pellets, which were unstable at 100 °C and showed proper strength at 60–80 °C [28]. On the other hand, at temperatures above 100 °C, the amount of evaporated moisture increased on the die surface, which hindered the plasticisation of lignin [29].

Many researchers indicate that the durability and strength of pellets or briquettes initially increase with moisture and then decreases with further increases in moisture [19,30–32]. This indicates the existence of an optimum moisture value for effective durability and pellet strength during the material compaction process.

The parameters of σ_c correlated highly with E , $r = 0.515\text{--}0.702$ but foremost, they were highly correlated with E_j , $r = 0.830\text{--}0.928$ (Table S1). The higher the E_j and E , the more the pellets were characterised by higher σ_c . It is important to note that this high correlation was recorded between independently measured strength parameter values and ρ_p . The parameters of ρ_p are the main indicators of pellet quality, followed by those of σ_c , and pellet water content [33]. The best results were achieved for the pellets produced from the blend of WS with CC for which the correlation between σ_c and the ρ_p was almost perfect with a correlation coefficient of $r = 0.904$. This result was not consistent, especially without a converse relationship. It was recorded that if σ_c is higher, ρ_p is also higher; however, but the opposite is not always true, as higher ρ_p does not necessarily imply stronger bonds [34]. Comparative studies did not show any relationship between the density and durability of pellets and biomass briquettes [35]. High ρ_p may be caused by the high specific density of the material, which was noted in our research with walnut shells whose particles were characterised by high sphericity and the bonds between them were much weaker [19] than between the fibrous particles that enhanced their strength [32]. Each material requires specific optimal densification conditions [36].

3.5. Pellet Water Absorption k

The largest k ($5.45 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$) was achieved by crushed pellets made of pure WS. The addition of CC reduced k by 12% and the addition of CS by as much as 59%. An increase in the additive ratio from 2% wt/wt to 6% wt/wt increased k from 3.56 to $3.69 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$, by 4% and in a larger additive range (6–10% wt/wt), absorption was reduced from 3.69 to $3.30 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$; that is, by 34%.

Moisture increased with absorption (Figure 4) but there is no unequivocal tendency between the types of additives. For all bonds, the highest k at the lowest MC for the CC additive minimal k value was achieved at an MC of 20–22%. For CS, k was the lowest at the highest MC.

The pellets made at the lower l_c (66 mm) were characterised by the highest of $k = 4.00 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$. Increasing the l_c to 76 mm decreased k by 4%. Further increasing the height to 86 mm decreased the water absorption ability of the crushed pellets by another 11%. Thus, the decrease gradient in k was progressive.

The temperature at which the pellets were produced induced opposite behaviour. The pellets produced at the lowest temperature of 78 °C had the lowest k at $3.35 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$. An increase in the temperature by 15 °C increased the water saturation of the crushed pellets by 7%. Further increasing the temperature by 15 °C increased k by 23%.

In conclusion, it should be stated that the main factors including the type of material, A , MC , l_c , and t , which varied during the production of pellets, had different influences on k than on ρ_p and pellets strength. Therefore, the relations among these criterion parameters and k were contrary, as evidenced by the high but negative correlation coefficient values (Table S1). The relation between k and ρ_p was the highest because the values of the correlation coefficients r ranged from -0.502 to -0.645 . Among the strength parameters, σ_c correlated best with k , for which the values of correlation coefficients ranged -0.505 to -0.574 . Due to the k criterion, producing pellets with lower density and compressive strength was favourable.

The most critical parameter of k was likely the specific surface area, which was larger for the pellets that cracked and were flattened easily under compressive loads. A similar assumption was formulated in the study of moisture absorption by wood chips western red cedar (*Thuja plicata*), Douglas fir (*Pseudotsuga menziesii*), and western juniper (*Juniperus occidentalis*) [3].

In contrast, the water absorption of chopped WS with an MC of 10% w.b. was $4.97 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$ DM. This value is lower than that of pelleted WS but higher than that of the WS blend with CS or CC, 6.27 and $6.43 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$ DM, respectively. The additive of 2–10% wt/wt was not statistically significant in the differentiation of water absorption because the results were within the narrow range of 6.20 – $6.51 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$ DM, composed of a homogenous group. The research results were presented only for the smallest WS moisture as it is reasonable to use dry straw as bedding.

Pelleted WS, however, had better properties in terms of the appearance of FPD, which was smaller than for birds kept on chopped straw [2] because chopped straw has sharp edges [1].

Due to water absorption, CC proved to be a better addition to WS than CS. The addition of CC to the organic substance in the pelleting process facilitates the form and a small addition reduces bedding dusting [37]. The addition of gypsum to the bedding lowered its pH due to the precipitation of CC and bicarbonate [38]. The blends of straw with CC increased N mineralization and promoted NH_4^+ formation by increasing urease activity and buffering against large pH increases [39].

In terms of water absorption and compared to CC, the effect of CS as an additive to WS was diverse and without diversification toward additive ratios. The main reason for this might be a low compaction pressure, which resulted from low friction between the WS and CS blends and die hole surface. Although the available literature does not provide enough explanations concerning the bond mechanisms of CS with organic substances, there are studies regarding the compaction of blends to pellets or briquette [40,41]. For example, briquettes from a blend of carbonised corncob and CS, corn starch, and gelatine were characterised by favourable density and strength as well as acceptable stability after several months of storage [41].

3.6. Optimisation of Pelleting Conditions Due to Pellets Strength and Water Absorption

The objective functions were limited to basic restrictions that were the highest E_j , E , σ_p , and k . The conclusions from the results of studies and statistical analyses allowed to develop mathematical models for strength parameters and k . On the basis of models, the optimal values of variables directing the compression process were set (Table 3). In Table 3, additionally, the parameters for the ρ_p have been included in order to compare these conditions with the conditions characterising pellets strength and k . The graphic interpretations of the answers functions were presented in the Figures 1–4 by marking on the charts the optimal point or a point with the highest value if the optimum was outside the range of studies. The analysis was conducted separately for WS and its blends with CS and CC and also for all connected data to check the possibility of generalising mathematical models. In Table S2, only the regressive factors important from the statistical point of view were included and for regression the results of the Fisher-Snedecor F test and multiple correlation coefficient values. The objective functions were limited to the basic restrictions which were the highest values of E_j , E , σ_p , and k .

The analysed objective functions achieved the optimal values at diverse decision-making factors but due to this study's purpose, A was an important value. Interestingly, the optimal CS additive was 4% wt/wt for the σ_c and 6.1% wt/wt for k . The optimal CC additive was near zero for all other objective functions. At a generalised approach, the A value for objective functions ρ_p , E_j , E , and σ_c was 4% wt/wt.

The best strength pellet parameters of pure WS were achieved in similar pelleting conditions; at moisture 23–30% w.b., $l_c = 86$ mm, and t around 91°C . These last two variables were the largest for WS compared to the variables of other types of materials.

Comparing the pure WS to the blend of WS with CS, the best pellets in terms of strength were achieved under the conditions of higher moisture 30% w.b., lower l_c of approximately 70 mm, and lower temperature of 80°C .

Adding CC to WS changed the pelleting conditions mostly with regard to MC, which should not be higher than 16% w.b. In these conditions, including l_c of approximately 76 mm and $t = 78^\circ\text{C}$, the pellets with the best strength parameters were achieved. The required MC and t of the WS and CC blend were the lowest compared to the other two materials. The compaction of the WS and CC

blend required lower l_c than during the pelleting of pure WS and was higher than for the blend of WS with CS.

The conditions for pelleting the WS blend with CS were different than for the pure WS and WS blend with CC. Similar characteristics of the parameters for these last two materials affected the generalised pelleting conditions. The results show that pellets with the highest ρ_p ($853 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$) and σ_c (4.17 MPa), which required the largest E_j ($6.10 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$) to crush, were produced from a blend of WS with CC.

Compared to the strength requirements, the criterion of the highest absorption k required different pelleting conditions. To achieve the highest k , material compression should take place in the conditions of the lowest MC (10% w.b.), lowest l_c (66 mm), and highest t (108°C) according to the tested range of control variables. The compression of the WS blend with CS requires a lower t of 81°C ; however, in the area of optimal MC and l_c , the k characteristics were only slightly different.

For the optimal conditions for which k was the highest, the strength parameters are unacceptable and even unrealistic for E_j , and σ_c . Therefore, it was assumed that the criterion for choosing pelleting conditions should be based on the pellet strength requirements and ρ_p . It was taken into account that the pellet's strength parameters, in particular, the E_j , and σ_c , highly correlated with the ρ_p . In addition, the assessment of pelleting was expressed by the criterion of ρ_p . Taking into account previous analyses and explanations, it was assumed that the ρ_p will also be a criterion for determining pelleting conditions in relation to the E_j , E , and σ_c . Under these technical conditions, pellets with favourable strength properties were obtained, and k was a derivative of these criteria. For optimal pelleting conditions with the addition of 4% wt/wt, MC = 23.3% w.b., l_c = 78.5 mm, and t = 80.2°C , the parameter values were calculated based on mathematical models listed in Table S2. In these technical conditions, pellets were produced whose loaded radial compressive force was characterised by E_j = $3.22 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$, E = 5.78 MPa, and σ_c of 2.68 MPa, with a k value of $2.60 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$ DM. This k value was close to the values reported in the available literature [3]. For this scenario, the calculated parameter values were smaller than the largest values that were obtained from mathematical models for optimal conditions. For these optimal conditions, the objective function values were $3.66 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$, 6.77 MPa, 3.06 MPa, and $6.28 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$ DM, respectively. The relative differences among the calculated values with respect to the most favourable values were 12, 15, 12, and 59%, respectively. Thus, the strength of the pellets produced under optimal conditions due to ρ_p was only slightly lower than the pellets obtained under optimal conditions for each strength parameter separately. For these considered conditions, the differences between the values of k were significant. The presented analysis and interpretation of the test results indicate that in the quality assessment of pellets one cannot rely on the criterion of k . Pellets produced under such conditions would be unacceptable due to their low density and strength. During transport, storage, and handling, they would crumble and dustiness would increase, implying a lower quality of crushed pellets for bedding.

4. Conclusions

The pellets produced from crushed WS and its blends with CS or CC with an A of 2–10% wt/wt, with a MC of 10–30% w.b., l_c of 66–86 mm, and t of $78\text{--}108^\circ\text{C}$ were evaluated on the basis of strength, and after crushing them, they were evaluated on the basis of k .

Parameters of E_j , E , and σ_c positively and highly correlated between mutual values, and all three strength indicators negatively correlated with k .

Based on five control variables, regression models were developed, and target function values were determined with basic constraints indicating optimal pelleting conditions according to the pellet strength and k value.

It was assumed that the produced pellets should be most resistant to compressive loads. As the pellet strength parameters correlated highly with the ρ_p , which was the criterion for assessing the pelleting process, to maintain the inference consistency, the density was assumed as a criterion for assessing the pellets.

For optimal conditions of $A = 4\%$ wt/wt, $MC = 23\%$ w.b., $l_c = 78$ mm, and $t = 80^\circ\text{C}$, E_j was $3.22 \text{ mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$, $E = 5.78 \text{ MPa}$, the compressive stress of pellets was 2.68 MPa and $k = 2.60 \text{ g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$. In this scenario, the values of the parameters characterising the quality of the pellets intended for bedding were smaller than the largest calculated based on the optimisation of the objective function of the four criterion parameters; i.e., E_j , E , ρ_p , and k were smaller by 12%, 15%, 12%, and 59%, respectively.

The pellets produced from the WS blend with the CC additive had better strength parameters, and the crushed pellets had better k than those produced using the CS additive.

It is recommended that the pellets from the WS and CC blends be produced under the specified technical conditions and after crushing, evaluated via comparative tests with chopped WS as bedding material.

Supplementary Materials: The following are available online at <http://www.mdpi.com/1996-1944/13/19/4375/s1>, Figure S1: Pellet compression on the universal testing machine TIRATest, Figure S2: Water absorption test for crushed pellets from the WS blend with the addition of CS, Table S1: Correlation matrix for type of additive, additive ratio (A), material moisture content (MC), die height (l_c), material temperature (t), DM single pellet density (ρ_p), specific pellet compression work (E_j), elasticity modulus for pellet compression (E), pellet tensile strength (σ_c), water absorption by crushed pellets (k) and for different types of material, Table S2: Regression coefficients of the variables for specific pellet compression work (E_j), elasticity modulus for pellet compression (E), pellet tensile strength (σ_c), water absorption by crushed pellets (k).

Author Contributions: Conceptualization, P.M., A.L. and A.Ś.; methods, P.M., A.L. and A.Ś.; software, P.M.; formal analysis, P.M.; investigation, P.M.; resources, P.M.; data curation, P.M.; writing—original draft preparation, P.M.; writing—review and editing, A.L. and A.Ś.; visualization, P.M., A.L. and A.Ś.; project administration, A.L.; supervision, A.L. and A.Ś. All authors have read and agreed to the published version of the manuscript.

Funding: This research was partially supported by the Ministry of Science and Higher Education of Poland.

Conflicts of Interest: The authors declare that there are no financial or commercial conflict of interest.

Nomenclature

A	additive ratio (% wt/wt)
d	pellet diameter (mm)
E	elasticity modulus for pellet compression (MPa)
E_j	specific pellet compression work ($\text{mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$)
F	compaction / compression force (N)
k	water absorption by crushed pellets ($\text{g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1} \text{ DM}$)
l_c	die height (mm)
l_p	pellet length (mm)
MC	material moisture content (% w.b.)
p_m	maximum agglomeration pressure (MPa)
t	material temperature ($^\circ\text{C}$)
ρ_p	single pellet density ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)
σ_c	maximum tensile strength (MPa)
CC	calcium carbonate
CS	cassava starch
WS	wheat straw

References

- Bilgili, S.F.; Hess, J.B.; Blake, J.P.; Macklin, K.S.; Saenmahayak, B.; Sibley, J.L. Influence of bedding material on footpad dermatitis in broiler chickens. *J. Appl. Poult. Res.* **2009**, *18*, 583–589. [[CrossRef](#)]
- Kheravii, S.K.; Swick, R.A.; Choct, M.; Wu, S.B. Potential of pelleted wheat straw as an alternative bedding material for broilers. *Poult. Sci.* **2017**, *96*, 1641–1647. [[CrossRef](#)] [[PubMed](#)]
- Pearson, E.G.; Leavengood, S.; Reeb, J.E. Comparison of the absorptive capacity of shavings of western juniper, western redcedar, and Douglas-fir for animal bedding. *For. Prod. J.* **2000**, *50*, 57–60.
- Cengiz, Ö.; Hess, J.B.; Bilgili, S.F. Effect of bedding type and transient wetness on footpad dermatitis in broiler chickens. *J. Appl. Poult. Res.* **2011**, *20*, 554–560. [[CrossRef](#)]

5. Makovskis, K.; Lazdina, D.; Arsanica, A.; Solodovniks, V. Mechanical durability and water absorption of pellets made from different tree species—a case study. *Agron. Res.* **2016**, *14*, 134–142.
6. Zamri, M.H.; Akil, H.M.; Bakar, A.A.; Ishak, Z.A.M.; Cheng, L.W. Effect of water absorption on pultruded jute/glass fiber-reinforced unsaturated polyester hybrid composites. *J. Compos. Mater.* **2012**, *46*, 51–61. [[CrossRef](#)]
7. Podlaski, S.Z.; Wzorek, H.; Chomontowski, C.M. Effects of the physicochemical properties of pellets on the germination of pelleted sugar beet seeds. *Int. Agrophys.* **2019**, *33*, 175–183. [[CrossRef](#)]
8. Farhadi, D. Evaluation of the Physical and Chemical Properties of Some Agricultural Wastes as Poultry Litter Material. *Glob. J. Anim. Sci. Res. J. Homepage* **2014**, *2*, 270–276.
9. White, M.; McLeod, J., III. Properties of Shredded Wood Pallets. *For. Prod. J.* **1989**, *39*, 50–54.
10. Iroba, K.L.; Tabil, L.G.; Sokhansanj, S.; Meda, V. Producing durable pellets from barley straw subjected to radio frequency-alkaline and steam explosion pretreatments. *Int. J. Agric. Biol. Eng.* **2014**, *7*, 68–82. [[CrossRef](#)]
11. van Dam, J.; van den Oever, M.J.A.; Teunissen, W.; Keijzers, E.R.P.; Peralta, A.G. Process for production of high density/high performance binderless boards from whole coconut husk. Part 1: Lignin as intrinsic thermosetting binder resin. *Ind. Crop. Prod.* **2004**, *19*, 207–216. [[CrossRef](#)]
12. Lehtikangas, P. Quality properties of pelletised sawdust, logging residues and bark. *Biomass Bioenergy* **2001**, *20*, 351–360. [[CrossRef](#)]
13. Donghui, L.; Lope, T.G.; Decheng, W.; Guanghui, W.; Zhiqin, W. Optimization of binder addition and compression load for pelletization of wheat straw using response surface methodology. *Int. J. Agric. Biol. Eng.* **2014**, *7*, 67–78. [[CrossRef](#)]
14. Matkowski, P.; Lisowski, A.; Świętochowski, A. Effect of compacted dose of pure straw and blends of straw with calcium carbonate or cassava starch on pelletising process and pellet quality. *J. Clean. Prod.* **2020**, *277*, 124006. [[CrossRef](#)]
15. Matkowski, P.; Lisowski, A.; Świętochowski, A. Pelletising pure wheat straw and blends of straw with calcium carbonate or cassava starch at different moisture, temperature, and die height values: Modelling and optimisation. *J. Clean. Prod.* **2020**, *272*, 122955. [[CrossRef](#)]
16. Probst, K.; Ambrose, K.; Pinto, R.L.; Bali, R.; Krishnakumar, P.; Ileleji, K. The effect of moisture content on the grinding performance of corn and corncobs by hammer milling. *Am. Soc. Agric. Eng.* **2013**, *56*, 1025–1033. [[CrossRef](#)]
17. Wang, Y.; Wu, K.; Sun, Y. Pelletizing Properties of Wheat Straw Blending with Rice Straw. *Energy Fuels* **2017**, *31*, 5126–5134. [[CrossRef](#)]
18. Xia, X.; Zhang, K.; Xiao, H.; Xiao, S.; Song, Z.; Yang, Z. Effects of additives and hydrothermal pretreatment on the pelleting process of rice straw: Energy consumption and pellets quality. *Ind. Crop. Prod.* **2019**, *133*, 178–184. [[CrossRef](#)]
19. Lisowski, A.; Olendzki, D.; Świętochowski, A.; Dąbrowska, M.; Mieszkalski, L.; Ostrowska-Ligęza, E.; Stasiak, M.; Klonowski, J.; Piątek, M. Spent coffee grounds compaction process: Its effects on the strength properties of biofuel pellets. *Renew. Energy* **2019**, *142*, 173–183. [[CrossRef](#)]
20. Lisowski, A.; Pajor, M.; Świętochowski, A.; Dąbrowska, M.; Klonowski, J.; Mieszkalski, L.; Ekielski, A.; Stasiak, M.; Piątek, M. Effects of moisture content, temperature, and die thickness on the compaction process, and the density and strength of walnut shell pellets. *Renew. Energy* **2019**, *141*, 770–781. [[CrossRef](#)]
21. Gilvari, H.; de Jong, W.; Schott, D.L. Quality parameters relevant for densification of bio-materials: Measuring methods and affecting factors—A review. *Biomass Bioenergy* **2019**, *120*, 117–134. [[CrossRef](#)]
22. Gope, P.C. Maximum tangential stress coupled with probabilistic aspect of fracture toughness of hybrid bio-composite. *Eng. Sci. Technol. Int. J.* **2018**, *21*, 201–214. [[CrossRef](#)]
23. Ndazi, B.; Tesha, J.V.; Bisanda, E.T.N. Some opportunities and challenges of producing bio-composites from non-wood residues. *J. Mater. Sci.* **2006**, *41*, 6984–6990. [[CrossRef](#)]
24. Ayrilmis, N.; Buyuksari, U.; Avci, E.; Koc, E. Utilization of pine (*Pinus pinea* L.) cone in manufacture of wood based composite. *For. Ecol. Manag.* **2009**, *259*, 65–70. [[CrossRef](#)]
25. Breuninger, W.F.; Piyachomkwan, K.; Sriroth, K. Tapioca/Cassava Starch: Production and Use. In *Starch*; Elsevier Inc.: Amsterdam, The Netherlands, 2009; pp. 541–568, ISBN 9780127462752.
26. Xu, H.; Zhou, S.; Jin, X.; Liu, Y. Monte Carlo simulation of the induction time and particle size distribution in the nucleation of calcium carbonate. *Powder Technol.* **2014**, *253*, 242–246. [[CrossRef](#)]

27. Lisowski, A.; Dabrowska-Salwin, M.; Ostrowska-Ligeza, E.; Nawrocka, A.; Stasiak, M.; Świętochowski, A.; Klonowski, J.; Sypuła, M.; Lisowska, B. Effects of the biomass moisture content and pelleting temperature on the pressure-induced agglomeration process. *Biomass Bioenergy* **2017**, *107*, 376–383. [[CrossRef](#)]
28. Ishii, K.; Furuichi, T. Influence of moisture content, particle size and forming temperature on productivity and quality of rice straw pellets. *Waste Manag.* **2014**, *34*, 2621–2626. [[CrossRef](#)]
29. Lam, P.Y.; Lam, P.S.; Sokhansanj, S.; Bi, X.T.; Lim, C.J.; Melin, S. Effects of pelletization conditions on breaking strength and dimensional stability of Douglas fir pellet. *Fuel* **2014**, *117*, 1085–1092. [[CrossRef](#)]
30. Tumuluru, J.S.; Wright, C.T.; Hess, J.R.; Kenney, K.L. A review of biomass densification systems to develop uniform feedstock commodities for bioenergy application. *Biofuels Bioprod. Biorefining* **2011**, *5*, 683–707. [[CrossRef](#)]
31. Stelte, W.; Sanadi, A.R.; Shang, L.; Holm, J.K.; Ahrenfeldt, J.; Henriksen, U.B. Recent developments in biomass pelletization—A review. *Bioresources* **2012**, *7*, 4451–4490. [[CrossRef](#)]
32. Lisowski, A.; Kostrubiec, M.; Dąbrowska-Salwin, M.; Świętochowski, A. The Characteristics of Shredded Straw and Hay Biomass—Part 1—Whole Mixture. *Waste Biomass Valoriz.* **2018**, *9*, 853–859. [[CrossRef](#)]
33. Mani, S.; Tabil, L.G.; Sokhansanj, S. Effects of compressive force, particle size and moisture content on mechanical properties of biomass pellets from grasses. *Biomass Bioenergy* **2006**, *30*, 648–654. [[CrossRef](#)]
34. Larsson, S.H.; Samuelsson, R. Prediction of ISO 17831-1:2015 mechanical biofuel pellet durability from single pellet characterization. *Fuel Process. Technol.* **2017**, *163*, 8–15. [[CrossRef](#)]
35. Temmerman, M.; Rabier, F.; Jensen, P.D.; Hartmann, H.; Böhm, T. Comparative study of durability test methods for pellets and briquettes. *Biomass Bioenergy* **2006**, *30*, 964–972. [[CrossRef](#)]
36. Kaliyan, N.; Morey, V.R. Factors affecting strength and durability of densified biomass products. *Biomass Bioenergy* **2009**, *33*, 337–359. [[CrossRef](#)]
37. Sedláček, P.; Mucha, N.; Pečtová, I.; Fečko, P. Ekologické pelety z hnědého uhlí a biomasy. *Acta Montan. Slovaca Ročník* **2007**, *12*, 274–277.
38. Hammes, F.; Boon, N.; de Villiers, J.; Verstraete, W.; Siciliano, S.D. Strain-specific ureolytic microbial calcium carbonate precipitation. *Appl. Environ. Microbiol.* **2003**, *69*, 4901–4909. [[CrossRef](#)]
39. Burt, C.D.; Cabrera, M.L.; Rothrock, M.J.; Kissel, D.E. Urea Hydrolysis and Calcium Carbonate Precipitation in Gypsum-Amended Broiler Litter. *J. Environ. Qual.* **2018**, *47*, 162–169. [[CrossRef](#)]
40. Magnus, A.E.; Ini, D.C.; Ayoade, K. Characterisation and comparison of rice husk briquettes with cassava peels and cassava starch as binders. *Biofuels* **2016**, *7*, 671–675. [[CrossRef](#)]
41. Aransiola, E.F.; Oyewusi, T.F.; Osunbitan, J.A.; Ogunjimi, L.A.O. Effect of binder type, binder concentration and compacting pressure on some physical properties of carbonized corncob briquette. *Energy Rep.* **2019**, *5*, 909–918. [[CrossRef](#)]



© 2020 by the authors. Licensee MDPI, Basel, Switzerland. This article is an open access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution (CC BY) license (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

SI APPENDIX

Table S1. Correlation matrix for type of additive, additive ratio (A), material moisture content (MC), die height (l_c), material temperature (t), DM single pellet density (ρ_p), specific pellet compression work (E_j), elasticity modulus for pellet compression (E), pellet tensile strength (σ_c), water absorption by crushed pellets (k) and for different types of material.

Type A	Parameters	A	MC	l_c	t	ρ_p	E_j	E	σ_c	k
WS	MC		1.000							
WS	l_c		0.001	1.000						
WS	t		0.001	0.001	1.000					
WS	ρ_p		0.124	0.317 ^a	-0.569 ^a	1.000				
WS	E_j		0.252 ^a	0.307 ^a	-0.383 ^a	0.813 ^a	1.000			
WS	E		0.255 ^a	0.150	-0.343 ^a	0.711 ^a	0.656 ^a	1.000		
WS	σ_c		0.243 ^a	0.315 ^a	-0.392 ^a	0.891 ^a	0.896 ^a	0.702 ^a	1.000	
WS	k		-0.424 ^a	-0.192	0.459 ^a	-0.600 ^a	-0.466 ^a	-0.449 ^a	-0.544 ^a	1.000
WSCS	A	1.000								
WSCS	MC	0.001	1.000							
WSCS	l_c	0.001	0.001	1.000						
WSCS	t	0.001	0.001	0.001	1.000					
WSCS	ρ_p	0.039	0.334 ^a	-0.039	-0.175 ^a	1.000				
WSCS	E_j	-0.042	0.394 ^a	0.051	-0.115	0.514 ^a	1.000			
WSCS	E	-0.045	0.290 ^a	-0.109	-0.237 ^a	0.434 ^a	0.446 ^a	1.000		
WSCS	σ_c	-0.058	0.501 ^a	0.004	-0.193 ^a	0.600 ^a	0.830 ^a	0.515 ^a	1.000	
WSCS	k	0.009	-0.492 ^a	-0.055	0.157 ^a	-0.502 ^a	-0.450 ^a	-0.240 ^a	-0.505 ^a	1.000
WSCC	A	1.000								
WSCC	MC	0.001	1.000							
WSCC	l_c	0.001	-0.006	1.000						
WSCC	t	0.001	0.006	0.006	1.000					
WSCC	ρ_p	-0.032	0.141 ^a	0.133 ^a	-0.516 ^a	1.000				
WSCC	E_j	-0.022	0.233 ^a	0.039	-0.344 ^a	0.816 ^a	1.000			
WSCC	E	-0.101	0.053	0.169 ^a	-0.193 ^a	0.653 ^a	0.623 ^a	1.000		
WSCC	σ_c	-0.026	0.249 ^a	0.088	-0.386 ^a	0.904 ^a	0.928 ^a	0.700 ^a	1.000	
WSCC	k	-0.131 ^a	-0.121	-0.174 ^a	0.426 ^a	-0.645 ^a	-0.490 ^a	-0.376 ^a	-0.574 ^a	1.000

^a statistically significant at p-value = 0.05

Table S2. Regression coefficients of the variables for specific pellet compression work (E_j), elasticity modulus for pellet compression (E), pellet tensile strength (σ_p), water absorption by crushed pellets (k).

	E_j		E		σ_p		k	
	β_i	p-value	β_i	p-value	β_i	p-value	β_i	p-value
Wheat straw (WS)								
Intercept	-54.1	<0.0001	-118	<0.0001	-40.2	0.0002	9.39	<0.0001
MC	-	-	-	-	-	-	-0.46	0.0001
l_c	-	-	-	-	0.15	<0.0001	-	-
t	1.23	<0.0001	2.72	<0.0001	0.79	0.0008	-	-
MC^2	-	-	-0.01	0.0001	-	-	0.007	0.0019
l_c^2	0.001	<0.0001	-	-	-	-	-	-
t^2	-0.007	<0.0001	-0.02	<0.0001	-0.005	0.0001	-	-
$MC \times l_c$	-0.004	0.0010	-	-	-0.003	0.0027	-0.002	0.0030
$MC \times t$	0.004	0.0001	0.006	<0.0001	0.004	0.0004	0.003	<0.0001
$l_c \times t$	-	-	0.0007	0.0075	-	-	-	-
F test	76.6		115		94.2		510	
R	0.7288		0.7614		0.6809		0.7276	
Wheat straw + cassava starch (WS+CS)								
Intercept	1.08	<0.0001	-	-	-22.8	0.0089	5.77	<0.0001
A	-	-	-	-	-	-	0.11	0.0306
MC	-	-	-	-	-	-	-0.35	<0.0001
l_c	-	-	-	-	0.64	0.0057	-	-
t	-	-	0.24	<0.0001	-	-	-	-
A^2	-	-	-	-	-	-	-0.009	0.0302
MC^2	0.003	<0.0001	0.02	<0.0001	0.005	<0.0001	-	-
l_c^2	-	-	-	-	-0.004	0.0058	-0.001	<0.0001
t^2	-	-	-0.001	<0.0001	-	-	-0.0004	0.0007
$A \times MC$	-	-	-	-	-	-	-	-
$A \times l_c$	-	-	0.01	0.0050	-	-	-	-
$A \times t$	-	-	-0.01	0.0034	-	-	-	-
$MC \times l_c$	-	-	-0.007	<0.0001	-	-	0.003	<0.0001
$MC \times t$	-0.0007	0.0098	-	-	-0.001	<0.001	0.0009	0.0048
$l_c \times t$	-	-	-	-	-	-	0.0009	0.0022
F test	118		2382		87.7		569	
R	0.4347		0.4831		0.6116		0.6508	
Wheat straw + calcium carbonate (WS+CC)								
Intercept	-	-	-86.8	<0.0001	-	-	44.0	<0.0001
A	-1.24	0.0021	-0.94	0.0002	-0.23	0.0136	-	-
MC	-	-	-	-	-	-	-0.79	<0.0001
l_c	-	-	1.36	0.0001	-	-	-	-
t	0.24	<0.0001	0.89	<0.0001	0.14	<0.0001	-0.72	<0.0001
A^2	-	-	-	-	-	-	-0.006	0.0018
MC^2	-0.02	<0.0001	-0.006	0.0010	-0.01	<0.0001	0.01	<0.0001
l_c^2	-	-	-0.006	0.0039	-	-	-0.0002	0.0002
t^2	-0.003	<0.0001	-0.004	<0.0001	-0.002	<0.0001	0.004	<0.0001
$A \times MC$	0.02	0.0016	0.009	0.0188	0.01	0.0145	-	-
$A \times l_c$	-	-	-	-	-	-	-	-
$A \times t$	0.009	0.0290	0.008	0.0028	-	-	-	-
$MC \times l_c$	-	-	-0.004	0.0021	-	-	-	-
$MC \times t$	0.007	<0.0001	0.005	<0.0001	0.006	<0.0001	0.002	0.0025
$l_c \times t$	-	-	-0.003	0.0013	-	-	-	-

F test	359	57.0	77.7	494
R	0.5833	0.5895	0.6099	0.6956
For all				
Intercept	-20.6	0.0045	-46.8	0.0001
A	-0.18	0.0048	-	-
MC	-	-	0.08	<0.0001
l_c	0.024	0.0276	-	-
t	0.52	0.0010	1.15	<0.0001
A^2	-	-	-	-
MC^2	-0.006	<0.0001	-	-
l_c^2	-	-	-	-
t^2	-0.003	0.0001	-0.007	<0.0001
$A \times MC$	0.007	0.0232	-	-
$A \times l_c$	-	-	-	-
$A \times t$	-	-	-	-
$MC \times l_c$	-	-	-	-
$MC \times t$	0.003	<0.0001	-	0.002
$l_c \times t$	-	-	-	-
F test	86.1	270	135	432
R	0.4484	0.3078	0.4909	0.4536

A : additive ratio, MC : moisture content, l_c : die height, t : material temperature, R: goodness of fit.

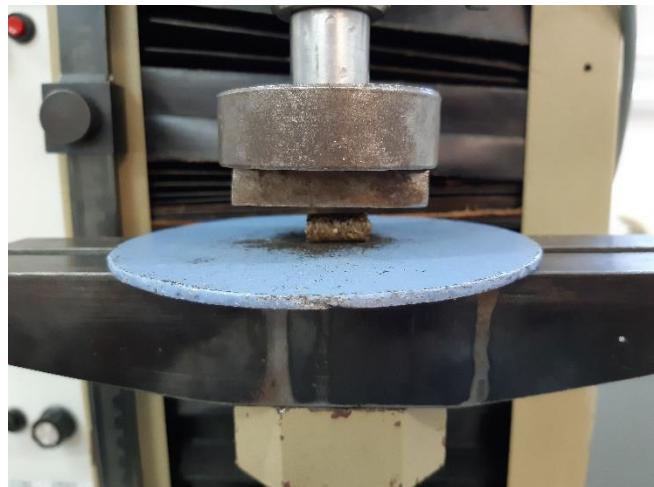
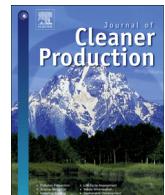


Figure S1. Pellet compression on the universal testing machine TIRAtest.



Figure S2. Water absorption test for crushed pellets from the WS blend with the addition of CS.



Effect of compacted dose of pure straw and blends of straw with calcium carbonate or cassava starch on pelletising process and pellet quality

Patryk Matkowski, Aleksander Lisowski*, Adam Świętochowski

Department of Biosystems Engineering, Institute of Mechanical Engineering, Warsaw University of Life Sciences, Nowoursynowska 166, 02-787, Warsaw, Poland

ARTICLE INFO

Article history:

Received 10 June 2020

Received in revised form

28 July 2020

Accepted 29 August 2020

Available online 3 September 2020

Handling Editor: Prof. Jiri Jaromir Klemeš

Keywords:

Additive ratio

Material dose

Pelletising process

Pellet strength

Water absorption

ABSTRACT

In this study, changes in the nature of particle size distribution (PSD) of wheat straw (WS) were analysed after the addition of calcium carbonate (CC) additives or cassava starch (CS) with 2 and 6% wt/wt ratios, respectively. Pelletising was conducted for materials with moisture contents of 20% w.b. at a temperature of 78 °C, in a die with an open compaction chamber with a height of 80 mm, using single doses of 50, 100, and 150 mg. The straw blend with 6% wt/wt CC exhibited the most even PSD and the lowest particle size geometric mean of 0.71 mm. These features positively influenced the mechanism of bonds among the particles, compaction effect, and quality of the pellets. Based on mathematical models, it was observed that under optimal conditions, agglomeration of the blend with 4% wt/wt CC using the 100 mg dose aided in achieving the maximum single pellet density of 850 kg m⁻³. This required a specific compaction work of 36 kJ kg⁻¹ followed by a pellet shift of 0.63 mm in the die, by using a piston realising a specific work of 10.92 kJ kg⁻¹. The produced pellets were characterised by a superior elasticity modulus of 6.15 MPa and high compression strength; for their deformation until cracking, a specific compaction work of 5.52 mJ mm⁻² was required. Furthermore, the water absorption capacity of the crushed pellets was 4.00 g H₂O g⁻¹ DM (dry matter), which was higher than those of pure WS, the blend with CS, and uncrushed pellets.

© 2020 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

The pelletising process and its effects on pellet quality depend on several factors that characterise a material, the pre-treatment method, and the technical parameters of the machine working units (Jezerska et al., 2019). The proper combination of these factors leads to the production of durable and strong pellets (Whittaker and Shield, 2017).

While the available literature presents the results of tests conducted mainly with dies having closed compaction chambers, there are extremely few studies focusing on dies with open compaction chambers (Frodeson et al., 2018). The compaction of materials in a die with an open chamber better reflects the actual pelletising process, provided that the appropriate compaction pressure and die temperature are maintained; the die temperature usually

ranges between 100 °C and 130 °C (Nielsen et al., 2009). Achieving a compaction pressure of 115–300 MPa (Whittaker and Shield, 2017) can be attributed to back pressure (Frodeson et al., 2019), which is a consequence of the material's property of developing internal friction between particles, and between the outer surface of the agglomerate and the die hole, as well as the die height (thickness; l_c). Developing friction increases both the pressure and temperature of the die. The heat from the heated die diffuses into the material particles, whose gradients depend on the type and moisture content (MC) of the material. The material under the influence of temperature undergoes changes in its physical properties, and the changes in the structure of the material are inversely dependent on the moisture content (Lisowski et al., 2017). Therefore, we attain complex feedback loops, the explanation of which is important to understand why different materials produce different back pressures and frictional forces.

Particle properties that affect the pelletising process include particle size distribution (PSD) (Labbé et al., 2020; Lisowski et al., 2020), moisture (Frodeson et al., 2019; Lisowski et al., 2019b),

* Corresponding author.

E-mail address: aleksander_lisowski@sggw.edu.pl (A. Lisowski).



Nomenclature		
A	additive ratio (%)	s_g dimensionless standard deviation
C_g	coefficient of gradation, dimensionless	S_{ig} inclusive graphic skewness, dimensionless
C_u	coefficient of uniformity, dimensionless	S_l mass relative span
D	dose mass (mg)	s_m piston displacement at maximum agglomeration pressure (mm)
d	pellet diameter (mm)	STD_h , STD_l , and STD_t distribution geometric standard deviation of the high, low, and total regions, respectively
d_m	die opening diameter (mm)	S_v particle size range variation (%)
E	elasticity modulus for pellet compression (MPa)	t material temperature ($^{\circ}\text{C}$)
E_j	specific pellet compression work ($\text{mJ} \cdot \text{mm}^{-2}$)	v_p pellet shift in the die (mm)
F, F_{\max}, F_e	compaction forces: current, maximum and pellet shift, respectively (N)	$x_{95}, x_{90}, x_{84}, x_{75}, x_{60}, x_{50}, x_{30}, x_{25}, x_{16}, x_{10}, \text{ and } x_5$ are corresponding particle sizes at 95, 90, 84, 75, 60, 50, 30, 25, 16, 10, and 5% cumulative particle undersizes, respectively
F_c, F_{cs}, F_{cm}	compressive force; current, in the elastic loading range, maximum, respectively (N)	x_g geometric mean of particle size (mm)
I_u	uniformity index (%)	x_{gm} graphic mean (mm)
k, k_u	water absorption by crushed and uncrushed pellets, respectively ($\text{g H}_2\text{O} \cdot \text{g}^{-1}$ DM)	x_R Rosin-Rammler particle size parameter (mm)
K_g	graphic kurtosis, dimensionless	Δl pellet deformation under load (mm)
l_a	agglomerate length (mm)	ρ_p single pellet density ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)
l_c	die height (mm)	σ_c tensile strength (MPa)
l_p	pellet length (mm)	σ_{ig} inclusive graphic standard deviation (mm)
L_s	specific compaction work ($\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$)	CC calcium carbonate
L_v	specific work for pellet shift in the die ($\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$)	CS cassava starch
MC	moisture content (% w.b.)	WS wheat straw
m_{s1}, m_{s0}	pellet sample weight after and before soaking in the water (g)	
n	Rosin-Rammler particle size distribution parameter	
N_{sg}	size guide number (mm)	
p	compaction pressure (MPa)	
p_m	maximum agglomeration pressure (MPa)	
s_e	end of piston displacement (mm)	

lignin content (Berghel et al., 2013), bulk density (Chevanan et al., 2010), flowability index and coherence (Stasiak et al., 2018), internal and external friction coefficients (Rossouw et al., 2003), types of extracts (waxes, tannins, terpenes) (Roffael, 2016), type of additive and additive ratio (A) (Xia et al., 2019). The chemical differences between the materials may have a greater influence on the features of the pellets in comparison with their morphology and particle sizes (Frodeson et al., 2018).

High temperatures initiate chemical modifications of the molecules in biomass that may affect the properties of the pellets. Lignin and hemicellulose are thermoplastic polymers, and under high material temperatures (t), undergo a change from the glass state into the rubbery state owing to the change in their elasticity modulus and decrease in their stickiness. This clearly demonstrates the flow properties of the particles. The higher the value of t in comparison with the glass transition temperature during densification, the easier the flow of particles (Stelte et al., 2011a). The glass transition temperature is highly dependent on MC , and in a water saturated environment, the glass transition temperature is lower than the ambient temperature (Roos, 2010). By increasing MC and t , the pelletising pressure can be reduced. This indicates that the optimisation of these three control variables is essential for pellet durability (Whittaker and Shield, 2017).

The optimal pelletising MC depends on the type of material; for wood biomass, it is 6–12% (Stelte et al., 2012b) whereas for agricultural biomass it is 8–20% (Kaliyan and Morey, 2009). Specific optimal values have been provided in targeted studies. The optimum MCs of sawdust, corn straw, and peanut shell are 12%, 12%, and 14%, respectively (Jiang et al., 2020). If MC is lower than the optimal value, then pellet production is impossible, despite the fact

that the friction is higher for a dry than for a wet material. Friction generates a higher temperature that leads to faster thermal decomposition of particles that come in contact with the die channel. With a larger MC , owing to water incompressibility, the water vapour pressure inside the pellet increases excessively, weakening the hydrogen bonds (Nielsen et al., 2020). Some research results indicate that the recommended MC and PSD values may change because several other factors interfere with the pelletising process, such as heat treatment and the type of biomass raw material itself, with respect to MC (Younis et al., 2018). Small material particles have larger specific surface areas than large particles and the density of produced pellets is higher, owing to better material packing. Moreover, the stability of the pellets is better owing to the higher bond energy among the small particles (Tumuluru et al., 2011). However, under extremely large involvements of small particles with sizes smaller than 0.5 mm, the durability of the pellets may change; thus, diversification of the sizes of the particles is recommended (Stelte et al., 2012b).

Furthermore, better densification conditions can be achieved by using additives. Additives typically used in pelletising are lignin (Berghel et al., 2013) and starch (Ståhl et al., 2012). An organic-rich freshwater lake sediments (sapropel) was used as a natural binder to prepare granules from wood fly ash and biochar as a soil improver. In the extrusion and rotation drum granulation methods the mechanically stable granules to withstand its own weight for column over 20 m were achieved (Vincevica-Gaile et al., 2019). In commercial pellets, the addition of flour, starch, or vegetable oil is limited by normative requirements up to 2% dry basis of the total mass (Whittaker and Shield, 2017). Despite various studies on these additives, substances that improve the quality of pellets are still

being researched, and there is a lack of knowledge on suitable additives or bonds for raw biomass materials (Tarasov et al., 2013) particularly in respect to pellets intended for bedding. Low molecular weight inorganic components may have a low impact on the mechanical properties of pellets; however, calcium ions may cross-link the functionality of carboxylic acid polysaccharides (Braccini and Pérez, 2001). Additionally, organic additives can disrupt the bonding mechanisms. Moreover, plastic straw wax may increase the adhesion and cohesion forces, and the putting effect may hinder the strong hydrogen bonding and Van der Waals forces in polysaccharides (Roffael, 2016).

The durability and strength of the agglomerate further depends on the amount of material supplied to the die chamber. However, studies on a differentiated single dose compacted material have been rarely conducted. The weight of a single dose depends on the type of material and the pelletising conditions. In the available literature, researchers indicate in their initial studies, the basic estimate of the dose mass (D) while considering the quality of the pellets along with the criterion of the process and product assessment. Parameter D of biomass lies in a wide range and depend on the type of material and the die diameter (d), which is written in parentheses after the mass value. When pelleting milled wheat straw, barley straw, corn stover and switchgrass, the amount of the dosed material was 0.2–0.4 g ($d = 6.4$ mm), without providing information about the differences between the types of biomass (Mani et al., 2006). The weight of the wheat straw, barley straw and canola straw samples used for compaction varied between 0.5 g and 0.7 g ($d = 6.25$ mm) (Adapa et al., 2009). The material dose was differentiated depending on the type of biomass and during the compaction of untreated and steam pre-treated poplar wood chips and wheat straw was 0.5 g ($d = 6.35$ mm) (Shaw et al., 2009), pre-treated or untreated wheat straw – 0.5–0.6 g ($d = 6.35$ mm) (Kashaninejad and Tabil, 2011), wheat straw with addition of wood residue, bentonite, crude glycerol – 0.5 g ($d = 6.35$ mm) (Donghui et al., 2014), torrefied wheat straw with binder – 1.0 g ($d = 10$ mm) (Bai et al., 2017), sludge, camphor and rice straw, represent the class of softwoods, hardwoods and grass, respectively – 0.8 g ($d = 7.0$ mm) (Jiang et al., 2016), Miscanthus, Jerusalem artichoke and *Spartina pectinata* – 0.2 g ($d = 8.0$ mm) (Lisowski et al., 2017), selected agricultural biomass samples, such as reed canary grass, switchgrass, and timothy hay – 1.2 g ($d = 8.0$ mm) (Harun et al., 2018), spent coffee grounds – 0.8 g ($d = 8.0$ mm) (Lisowski et al., 2019a), walnut shell – 0.4 g ($d = 8.0$ mm) (Lisowski et al., 2019b), seven different materials representing stiff polysaccharides, flexible polysaccharides, softwoods and hardwoods – 1.0 g ($d = 8.4$ mm) (Frodeson et al., 2019). However, there is a lack of knowledge with regard to the influence of a compacted single dose of biomass on the pellet quality, which can be expressed by its durability and strength. Additionally, this gap in knowledge refers to the material blends intended for densification and pellet production, which can serve as bedding for birds after crushing.

This study aims to 1) develop the PSD characteristics of milled wheat straw (WS) and WS blends with cassava starch (CS) and calcium carbonate (CC) additives having different values of A ; 2) conduct densification tests of these materials with different single doses, along with the determination of single pellet densities (ρ_p) and pellet strength parameters during pellet compression: elasticity modulus (E), specific compression work (E_j), during which the pellet cracks, and tensile strengths (σ_c); 3) assess the water absorption capacity of uncrushed (k_u) and crushed pellets (k).

During the pelletising process, the influences of the above-mentioned factors on the piston displacement during pellet formation (sm), shift of the ready pellet in the die (vp), specific compaction work (L_s), and specific work for pellet shift in the die (L_v) were studied. Using the feature correlation method, the

number of parameters characterising PSD as well as the pelletising process and pellets were reduced. Considering the quality criteria of the pellets, the optimal conditions of the pressure agglomeration were determined. This paper presents novel research on the pelletising of pure WS and its blends with CS or CC at different ratios using a single diversified material dose. The results of research in this field are presented for the first time. The production of pellets with CC or CS additives to straw for broiler bedding should take place with the most favourable parameters regarding the amount of additive and a single dose of compacted material. For this application of the products, it is important that the produced pellets are not only of well density and strength, but above all, the crushed pellets should be characterised by proper water absorption. Such results are presented in this paper.

2. Materials and methods

2.1. Materials and additives

The milled WS was obtained from the pellet producer Lootor Ltd. (Słońsk, Poland). First, a WS weighing about 30 kg was processed by cutting in a 132 kW machine at 1200 rpm, equipped with 196 knives. Then the cut WS was ground in a 250 kW beater mill at 1488 rpm, equipped with 160 beaters and a perforated screen with holes of 8 mm in diameter.

CC and CS, as a binder, in the amount of 2 kg each were purchased from a supermarket. CC of 98.0% purity had a moisture content of 6.7% w.b. and the geometric mean of the particle size was 0.15 mm. CS had a moisture content of 6.8% w.b. and the geometric mean of the particle size was 0.29 mm.

Milled pure WS and the blends of WS with CS and CC with an additive ratio of 0%, 2%, and 6% wt/wt, respectively, were used. MC was 20% w.b., and the values of A and MC were selected based on the results of tests conducted within the ranges of 0–10% wt/wt and 10–30% w.b., respectively.

MC was determined by the drying-weighting method in accordance with the requirements of the S358.2 standard. The measurements were performed thrice for each combination factor.

2.2. Sample preparation

After the initial measurement of MC in WS (approximately 7.5% w.b.), demineralised water was added according to the relation $m_{H_2O} = m_1 (1 - MC_1)/(1 - MC_2)$, where m_{H_2O} is the mass of water to refill, g; m_1 is the initial mass of WS, g; MC_1 is the initial content of moisture in WS; and MC_2 is the desired content of moisture in WS. The tank content was divided into five portions. One portion contained pure WS, and WS with CC or CS with a 2% wt/wt or 6% wt/wt, respectively, was added to the remaining portions. To two tanks with WS of 5 kg each a CC or CS with a weight of 0.102 kg each were added, and to the next two tanks 0.319 kg of additives was added. Prepared blends of WS with CC or CS were thoroughly mixed in a feed mixer (M-100, Metal Works, Przysiek, Poland). The mixing time was 15 min and was selected on the basis of previous experience. During mixing, the MC was checked and water was added to the required MC of 20% w.b. Then, the prepared material was stabilised in a climatic chamber (3001-01, Ilka, Feutron Greiz, Germany) at 4 ± 1 °C and a relative air humidity of $65 \pm 2\%$ for 5 days, stirred once daily. The samples for testing were taken as needed, monitoring MC; in the event that MC decreased by 0.2% w.b., water was added.

2.3. Particle size distribution

Milled WS and WS blends with the addition of CC and CS were separated using the vibrating screen separator LAB-11-200/UP

(Eko-Lab, Brzesko, Poland) in accordance with the ANSI/ASAE S319.4 standard. Two sets of six sieves with square meshes, whose side dimensions were 0.1, 0.15, 0.212, 0.3, 0.425, 0.6, 0.85, 1.18, 1.6, 2.36, 3.35 and 4.76 mm, and a pan were used. 25 g of the material was screened for 600 s through each set of sieves. The sample weight and fraction from the sieves were weighed on an electronic balance with an accuracy of 0.01 g. Five separation tests were conducted for each measurement system. Based on the test results, the characteristic PSD parameters were calculated. The cumulative PSDs of the mixtures were approximated using the Rosin-Rammler (RR) model (Rosin and Rammler, 1933). The calculation formulas are presented in Appendix A.

Considering that a human has limited perception of processing information (7 ± 2 items of information) (Miller et al., 1994), the analysis of the possibilities of reducing the parameters characterising PSD was conducted. This method has been described in previous studies (Lisowski et al., 2019b).

2.4. Pelletising process

Pelletising tests were conducted using the universal test machine TIRATest (Matest, Łódź, Poland) in the die, made of chrome-plated steel with an outer diameter of 60 mm, inner diameter of 8 mm, and height of 300 mm. The die was wrapped using two heating elements with a total power of 1.3 kW. The values of material temperature at heights of 15, 30, and 45 mm from the die base were measured using a thermocouple (type J) with an accuracy of 0.1 °C and controlled by a 3710 ESM controller (Sefla, Szczecin, Poland; Fig. S1). The pelletising process was controlled using the Matest software. The compaction speed was 10 mm·min⁻¹, and the force was measured with an accuracy of 10 N in the range up to 10 000 N. The coordinates of the force-displacement relationship were recorded at 0.03 mm increments. The heating elements were switched on for 1 h before pelletising by setting the temperature to 116 °C, corresponding to a *t* of 78 °C. The piston displacement of 80 mm, which was equal to the length of the agglomerate filling the die hole *l_a*, was set by the limit sensor. The values of *t* and *l_c* were selected on the basis of previous test results. *D* was differentiated into three levels of 50 mg, 100 mg, and 150 mg. The material dose was weighed on an analytical balance with an accuracy of ± 0.1 g.

The weighted dose in the 50–150 mg range was added to the die hole and compressed until the limit sensor shut down. The material was compacted along the piston displacement section until the maximum pressure was reached (Fig. 1). On pushing further, the piston began moving the formed pellets in the die by *v_p*. The total displacement path of the piston *s_e* is *s_e = s_m + v_p*, where *s_m* is the displacement of the piston to the maximum pressure in mm; *v_p* is the pellet shift in the die in mm. The actual hole length *l_c*, which is required to achieve the maximum pelletising force, is the sum of the two segments: *l_c = v_p + l_a*, where *v_p* is the displacement of the formed pellet in mm; *l_a* is the length of the agglomerate filling the die hole in mm. Under stable conditions, at least six pellets were produced, for which *p_p* was specified. Additionally, three uncrushed and crushed pellets were subjected to the water absorption test during the compression test.

2.5. Parameters of compaction process and pellets

The diameter (*d*), length (*l_p*), and density *p_p* were determined for a single pellet. The pelletising process was characterised by *s_m*, *v_p*, *L_s*, and *L_v*. The parameters *L_s*, *L_v*, and *p_p* were related to the dry matter (DM).

Density *p_p* was determined one week after the pellets were formed, after completion of the pellet expansion. The dimensions, *l_p* and *d*, were measured in two perpendicular directions using an

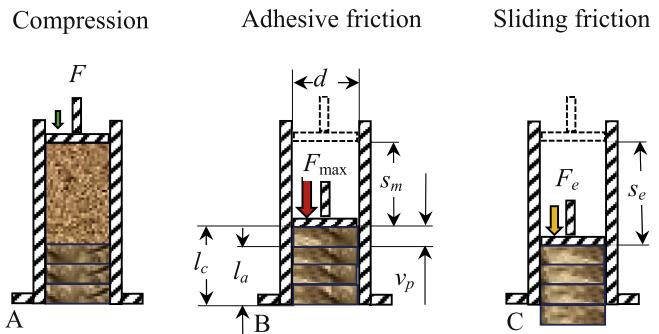


Fig. 1. The scheme of single material dose compaction sequence in the die with an open chamber; A) the beginning of compaction of a new dose of the material, B) reaching maximum compaction force/pressure, C) the shift of the currently compacted pellet along with the agglomerate located under it; *d* – pellet diameter, *l_a* – agglomerate length, *l_c* – real die height, *s_m* – piston displacement at maximum agglomeration pressure, *s_e* – end of piston displacement, *v_p* – pellet shift in the die, *F*, *F_{max}*, and *F_e* – compaction forces: current, maximum and pellet shift, respectively.

MAUa-E2 4F electronic calliper (FK Vis, Warsaw, Poland) with an accuracy of 0.01 mm. The dimension *d* was measured in the middle of *l_p*. Moreover, the pellet was weighed on an electronic scale with an accuracy of 0.01 g.

2.6. Pellet resistance to tensile strength

After *p_p* determination, the pellets were placed on the surface of the steel plate of the universal testing machine and the pellets were compressed in the radial direction with a 25 × 50 mm punch at a speed of 5 mm min⁻¹ until the piston moved by 4 mm (with a pellet diameter of 8 mm; Fig. S2a). The measurements were performed thrice for each combination of the formed pellets. The crushed pellets were used for the water absorption test.

2.7. Water absorption

Immediately after the compression tests, the crushed and uncrushed pellet samples were placed in a coffee brewer (Fig. S2b) of a known mass (tare) and weighed on an electronic laboratory scale with an accuracy of 0.01 g. The samples were immersed in demineralised water at 20 ± 1 °C for 30 min. The brewers with pellets, after removal from the water, were left to drain for 5 min, gently shaken thrice, and then weighed again.

Based on the water mass absorbed by the pellets and the initial pellet mass referred to as DM, the amount of water absorbed was measured.

2.8. Statistical analysis

The data were analysed for the influence of factors (type of material, *A*, *D*) on: the parameters characterising PSD, the pressure agglomeration process (*L_s*, *L_v*, *s_m*, *v_p*, *p_c*), pellet strength (*E_j*, *E*, *σ_c*), and ability to absorb water by uncrushed *k_u* and crushed pellets *k* on the basis of multicriteria variance MANOVA analysis by using the Fisher-Snedecor test (F test). The statistical significance of the differences between the mean values of the parameters was determined using the Tukey test method. Non-linear regression models were elaborated for criterial parameters that were used to determine the most favourable pelletising conditions and features of pellets for which the values of parameters were calculated.

$$y_n = \beta_0 + \beta_1 x_1 + \beta_2 x_2 + \beta_3 x_1^2 + \beta_4 x_2^2 + \beta_5 x_1 x_2, \quad (n = 1 - 8) \quad (1)$$

where *y₁* is the pellet shift in the die (*v_p* in mm); *y₂* is the specific

compaction work (L_s in $\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$); y_3 is the specific work for pellet shift in the die (L_v in $\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}$); y_4 is the DM single pellet density (ρ_p in kg m^{-3}); y_5 is the specific pellet compression work (E_j in $\text{mJ}\cdot\text{mm}^{-2}$); y_6 is the elasticity modulus for pellet compression (E in MPa); y_7 is the water absorption by crushed pellets (k in $\text{g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$ DM) and y_8 is the water absorption by uncrushed pellets (k_u in $\text{g H}_2\text{O}\cdot\text{g}^{-1}$ DM); x_1 is the dose (D in mg) and x_2 is the additive ratio (A in % wt/wt); $\beta_0-\beta_5$ are the regression coefficients.

The analyses were performed at the assumed statistical significance level of $p \leq 0.05$ using Statistical v. 13.3.

3. Results and discussion

3.1. Particle size distribution

The PSDs of WS and blends of WS with CC and CS with an additive ratio of 2% wt/wt and 6% wt/wt, and their cumulated distributions together with the graphical illustration of fitting these distributions using RR models are illustrated in Fig. 2.

The PSD characteristics of these materials and parameters of x_R and n of the RR models, together with the assessment of the fit of the regression function using the determination coefficient of R^2 are summarised in Table S1. The RR models closely reflect the cumulative PSD for all the materials, as the coefficients of determination are at least 97%, and yield significantly high values in the F test; $F = 2319-9261$.

The PSDs for blends with 2% wt/wt additive with right skewness were similar in shape to the WS distribution (Fig. 2a), but were significantly different from the distributions of the WS blends with 6% wt/wt additive with right skewness (Fig. 2b), regardless of the type of additive. All distributions could be considered as fine skewed, because $0.1 < S_{ig} < 0.3$ (S_{ig} – inclusive graphic skewness) (Blott and Pye, 2001). The geometric mean particle size (x_g) for WS was the largest, i.e., 1.18 mm. The 2% wt/wt additive reduced this average to 0.95–0.96 mm, and the 6% wt/wt additive reduced it to 0.71–0.74 mm, by 19% and 39%, respectively. The additive influenced the diversification of x_g in a statistically important manner; however, there were no such differences between the types of additives. The better CC effect can be attributed to the fact that the powder particles create special clusters and randomly bind with other biomass particles to form larger aggregations (Xu et al., 2014).

The mass relative span (relative distribution) S_r , which was 1.95, indicated a larger contribution of the finer particles in the blend with 6% wt/wt CC. Mass relative span was negatively correlated ($r = -0.964$) with the n distribution parameter of the RR model, confirming the current observations (Bitra et al., 2009b, 2009a).

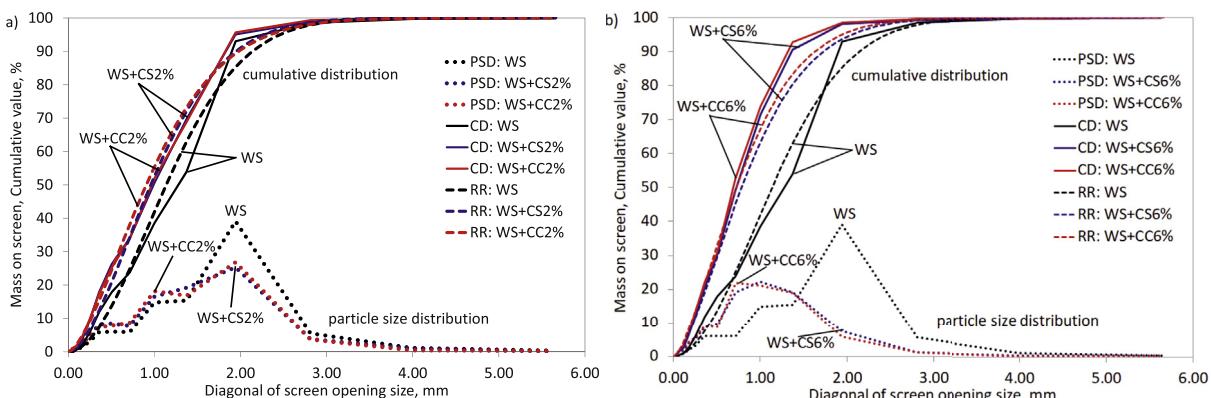


Fig. 2. Particle size distribution (PSD), cumulative distribution (CD), and approximation with the RR model for milled WS and blends of WS with a) 2% wt/wt and b) 6% wt/wt of additives.

Mass relative span was inversely related to the uniformity index I_u . The confirmation of the balanced PSD was represented by the value of the coefficient of uniformity (C_u), which was the highest for the blend with 6% wt/wt CC with a value of 4.19 against the lowest value of 3.14 for the pure WS. Furthermore, the PSD with coefficient of uniformity, which was slightly higher than 4, was considered uniform (Basiji et al., 2010).

After analysing the feature correlations, the number of PSD characterising parameters listed in Table S1 were reduced from 28 to 4, namely, dimensionless standard deviation (S_g), coefficient of gradation (C_g), inclusive graphic standard deviation (σ_{ig}), and graphic kurtosis (K_g), which were the least correlated to each other. For a complete description, we need to further provide the type of material, confirming that each material has its own specific properties (Mostafa et al., 2019).

The blend distributions with 2% wt/wt additive were characterised by the most diverse particle sizes, because dimensionless standard deviation s_g was the largest, amounting to 2.17–2.22. Increasing the additions to 6% wt/wt contributed to the decrease in s_g to 2.08–2.10. The dimensions of pure WS were characterised by the lowest span, $s_g = 2.03$. Differences in PSD, characterised by x_g and s_g , were negatively correlated ($r = -0.656$) and resulted only from the type of blends and additive ratio. Thus, the parameters of PSD can be shaped not only by the way in which the material is fragmented (Bitra et al., 2009b; Lisowski et al., 2018a), but also by the additive ratio and type of biomass additives.

Coefficient of gradation for PSD, amounting to 1.15–1.21 and ranging from 1 to 3 represents a well-graded all-biomass-type PSD (Lisowski et al., 2018b). For WS and blends with A of 2% wt/wt and 6% wt/wt, the values of inclusive graphic standard deviation σ_{ig} were 0.67 mm, 0.63–0.67 mm, and 0.55–0.58 mm, respectively. Based on these values, the PSD can be classified as 'moderately well sorted' because $0.50 < \sigma_{ig} < 0.70$ mm (Blott and Pye, 2001). Therefore, it can be concluded that the materials exhibit a relatively good inclusive graphic standard deviation. Blends including 6% wt/wt additive exhibited relatively better sorting, and the best sorting was observed with the addition of CC, because $\sigma_{ig} = 0.55$ mm. Positive values of graphic kurtosis ($K_g = 0.97–0.98$) proved the 'mesokurtic' steepness ($0.90 < K_g < 1.11$) of PSD (Blott and Pye, 2001). Similar trends were observed for switchgrass, wheat straw, and corn stover (Bitra et al., 2009a) as well as straw and hay (Lisowski et al., 2020).

Characteristics of PSD include important parameters, on the basis of which conclusions can be drawn with regard to the susceptibility of materials to compaction, the possibility of movement among particles, and the bonds and creation of permanent

mechanical or chemical bonds that influence the density, durability, and strength of the produced pellets.

3.2. Process of pressure agglomeration

Pressure curves vs. piston displacement during compaction, with the exemplary value of $D = 100$ mg (levels of all three doses are analysed later in this paper), demonstrated a typical exponential course until the commencement of pellet movement (Fig. 3). From point M (Fig. 3), at which the back pressure was sufficient, the compaction curves assumed a typical course. The pellet movement began after the maximum pressure was reached, which dropped instantly. This was typical of the process (Stelte et al., 2011b).

During bond compaction with the CC additive, the compaction curves were less regular and the maximum pressure was lower in comparison with both the blends with CC additive as well as the pure WS. These differences in the material compaction

characteristics may be due to the frictional force that is required to be overcome. Pure straw required the highest pressure (135 MPa). Despite the fact that increasing friction generated higher temperature, at relatively low t of 78 °C, the temperature increase was not sufficiently large to significantly change the WS lignin structure.

It was reported that the glass transition temperatures of hemicellulose, lignin, and cellulose isolated from wood in aqueous conditions were 40 °C, 50–100 °C, and 100 °C, respectively (Kong et al., 2017). The glass transition temperature for lignin WS with an MC of 8–9% was 53 °C, which increased to 63 °C after the extraction of waxes (Stelte et al., 2012a). The increase in the biomass moisture decreases the glass transition temperature (Lisowski et al., 2017) because water acts as a plasticiser. The glass transition temperature depends on the type of the material, MC, and sample preparation (Bouajila et al., 2006). Under the process conditions of $t = 78$ °C and $MC = 20\%$ w.b., for WS, a maximum friction existed that developed early, before making the pellet move; the tendency

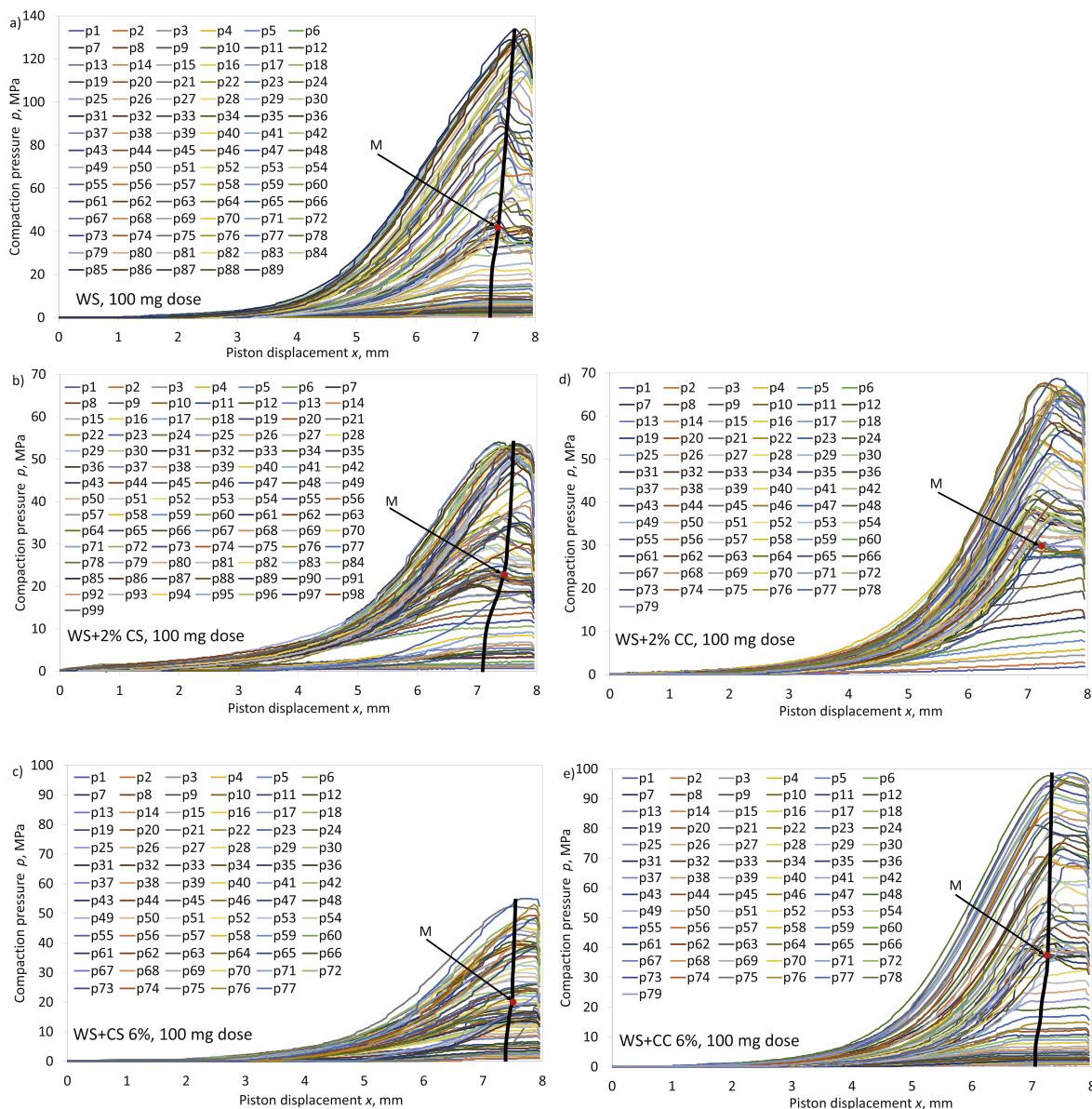


Fig. 3. Compaction pressure vs. piston displacement for a) wheat straw (WS), b) wheat straw and 2% wt/wt cassava starch (CS) blend and c) wheat straw and 6% wt/wt cassava starch (CS) blend and d) wheat straw and 2% wt/wt calcium carbonate (CC) blend and e) wheat straw and 6% wt/wt calcium carbonate (CC) blend at 100 mg material dose and 78 °C material temperature and 80 mm die height; M – change of pellet shift characteristics in the die and beginning of pelleting stability. The black line indicates the beginning of the pellet shift in the die. (In order for the charts to be clearer, the scales of the ordinates are differentiated).

then decreased, owing to the nature of the kinetic friction and the reduction in the total actual contact surface of the tips of the material particles with the surface of the die channel. The presented interpretation results based on the observation of an experiment with several types of biomasses demonstrated that on increasing the temperature from room temperature to 60–90 °C, friction increased, and on further increasing the die temperature, the friction decreased (Puig-Arnavat et al., 2016).

On addition of 2% wt/wt of CS, the powder attached to the surfaces of moist particles (20% w.b.) and created glue, causing the adhesion to increase on the die hole surface and between the adjacent particles. Increased adhesion contributed to the earlier onset of friction that had to be overcome (Fig. 3b). With 6% wt/wt of CS, there was a greater effect of changing the features of CS under the influence of a temperature of 78 °C linked with an MC of 20% wt/wt. Under such conditions, CS undergoes plasticisation. The effect of water plasticisation at constant temperature is identical to the effect of the temperature increasing under constant MC (Slade and Levine, 1995). Thus, the plasticisation friction was too low to create an adequate back pressure in the die chamber.

In comparison with CS, CC significantly improved the densification characteristics. The greatest effect was achieved with 6% wt/wt CC (Fig. 3e). The smooth curves can be attributed to the lubricant effect of CC combined with water, which prevents the phenomenon of stick-slip. The temperature of 78 °C had a negligible effect on the change in the thermal properties of pure CC, because CC maintains fairly stable structure properties up to 224 °C (Rodriguez-Navarro et al., 2016). A moisture of 20% w.b. was sufficiently large, such that combined with the temperature, the CC material's susceptibility to plastic deformation increased along with its elasticity and friction in the die chamber, and the required pressure decreased to lower than that required for pure WS. The CC material on the surface of the particles migrated into the water, increasing their viscosity. The plasticity of the wetted area of the particles increased. Additionally, the greater share of fine particles in the CC blend PSD (Section 3.1) and the smaller geometric mean of particle size demonstrated a positive effect on these processes and the dislocation of particles during compaction.

The described changes in the pelletising characteristics for different types of materials and additive ratio exhibited an impact on the pelletising parameters and pellet properties.

3.3. Parameters of the pressure agglomeration process and pellets

By using the feature correlation method, the two parameters (tensile strength σ_c and piston displacement s_m) were deleted from the initially proposed parameters. Both parameters exhibited high values of correlation coefficients (Table S2), respectively, with specific pellet compression work E_j , $r = 0.861$ and v_p , $r = -0.991$. It is worth mentioning that σ_c was strongly correlated with ρ_p , $r = 0.806$, and both parameter values were achieved using independent measurements. The results of the correlation coefficients are analysed while describing the remaining parameters that characterise the pelletising and pellet quality (Table 1). In majority of the cases, the main factors (type of additive, A , and D) demonstrated a significant influence on the diversification of the criteria parameters.

D , pellet diameter; l_p , pellet length; v_p , pellet shift in the die; L_s , specific compaction work; L_v , specific work for pellet shift in the die; ρ_p , single pellet densities; E_j , specific pellet compression work; E , elasticity modulus for pellet compression, k , water absorption by crushed pellets; k_u , water absorption by uncrushed pellets; NO, no additive. The values for NO and an additive ratio of 0% wt/wt are equivalent.

Different letters in each column and factors within a value represent a significant difference at $p < 0.05$ using Tukey's test.

Parameter l_p was insignificant against the main factors ($p = 0.1374$ – 0.7467). The results of the analysis were presented to prove that l_p was maintained within the limits of the measurement error.

3.3.1. Pellet diameter d , pellet shift in the die v_p , specific pellet compaction work L_s and specific work for pellet shift in the die L_v

The pellet dimension of d was greater than the die hole construction dimension, which implied that the pellets expanded after leaving the die and at the time of their weekly storage. At the smallest dose, the expansion of the pellets was the lowest; thus, the durability of the bonds between material particles was the highest.

The pellets made of pure WS exhibited the lowest dimension; however, A caused an increase in the pellet expansion.

The pellet shift of v_p was the lowest at $D = 100$ mg with a value of 0.37 mm. A significantly higher value of $v_p = 0.42$ mm (by 13%) was obtained at the lowest dose, and the largest value of $v_p = 1.13$ mm (3 times) was recorded at the highest dose. A smaller D implied a lower height of the material for compaction; however, the height was extremely small to be able to increase the lateral material pressure. Therefore, sufficient back pressure in the die channel was not available (Miao et al., 2015). At the highest D , the effect of compacted material elasticity was occurred (Nona et al., 2014).

Pellet shift was the lowest (0.39 mm) during pelletising of pure WS and increased for the blends with CS and CC, by 51% and 97%, respectively. In comparison with pure WS, the additives of 2% wt/wt and 6% wt/wt caused an increase in v_p shift by 100% and 64%, respectively.

The relations between D , A , and v_p are used to formulate the regression model (Eq. (1)) for which the regression coefficients, important from a statistical point of view, are listed in the Table 2, and the graphic interpretation is depicted in Fig. S3. The lowest values of v_p can be achieved at the doses of 80–100 mg and without the additive, whereas A does not significantly influence the increase in v_p in this dose range.

The compaction work L_s was the highest during material pelletising at the dose of 100 mg and was 70.80 kJ kg⁻¹. Decreasing the dose by half decreased the request for compaction work by 48%, and the increase in D to 150 mg increased L_s slightly (by 5%).

During the compaction of pure WS, the largest L_s work was 99.77 kJ kg⁻¹, and after adding CS and CC, L_s decreased by more than 3.3 and 2.8 times, respectively. Thus, A had a significant and inversely proportional influence; for the addition of 2% wt/wt and 6% wt/wt, L_s decreased by 2.1 and 3.6 times, respectively. The best conditions favourable for pelletising were an A of 2% wt/wt and $D = 100$ mg (Fig. 4). For spent coffee grounds pellets the L_s was 4.2–23.8 kJ kg⁻¹ (Lisowski et al., 2019a) and that of walnut shell was 9.9–33.3 kJ kg⁻¹ (Lisowski et al., 2019b). The type of material affects the value of the L_s . During formation of Miscanthus and switchgrass briquettes, L_s was smaller and amounted to 2.5–7.7 kJ kg⁻¹ (Miao et al., 2015), probably due to the much larger particle size of 6.35–300 mm.

The pellet shift work L_v (5.75–27.31 kJ kg⁻¹) was 3.6–4.8 times smaller than specific compaction work L_s (27.37–99.77 kJ kg⁻¹, Table 1). Both works were positively correlated, $r = 0.427$ (average correlation). In terms of the L_v criterion, the best pelletising conditions occurred at doses of 100–150 mg and an A of up to 2% wt/wt (Fig. 5).

3.3.2. Single pellet density ρ_p , specific compaction work E_j , elasticity modulus E , water absorption by crushed k and uncrushed k_u pellets

Pellet density ρ_p at the dose of 100 mg was the largest, 722 kg m⁻³ (Table 1). Decreasing and increasing the dose resulted in a decrease in density, by 14% and 8%, respectively. The high correlation ($r = 0.615$) between specific compaction work L_s and ρ_p proves the effectiveness of pelletising. The compaction effect (σ_c)

Table 1

Results of variance analyses, mean values and standard deviations (SD) of the pellet diameter, pellet length, pellet shift in the die, specific compaction work, specific work for pellet shift in the die, single pellet densities, specific pellet compression work, elasticity modulus for pellet compression, water absorption by crushed pellets and water absorption by uncrushed pellets for different dose of material (D), type of additive and additive ratio (A).

Factor	d mm	l_p mm	v_p mm	L_s kJ·kg $^{-1}$	L_v kJ·kg $^{-1}$
p-value					
D	0.0017	0.7467	<0.0001	<0.0001	<0.0001
Additive	<0.0001	0.1374	<0.0001	<0.0001	<0.0001
A	0.0002	0.6058	<0.0001	<0.0001	<0.0001
Mean and \pm SD for dose of material D (mg)					
50	8.04 ^a \pm 0.03	16.26 ^a \pm 2.05	0.42 ^b \pm 0.25	36.46 ^a \pm 25.25	7.23 ^a \pm 5.46
100	8.07 ^b \pm 0.05	16.31 ^a \pm 2.23	0.37 ^a \pm 0.23	70.80 ^b \pm 42.79	15.56 ^b \pm 10.41
150	8.07 ^b \pm 0.05	16.63 ^a \pm 2.45	1.13 ^c \pm 0.52	67.24 ^b \pm 61.5	27.31 ^c \pm 15.56
Mean and \pm SD for type of additive					
NO	8.03 ^a \pm 0.03	16.77 ^a \pm 1.62	0.39 ^a \pm 0.30	99.77 ^c \pm 47.06	22.10 ^c \pm 14.45
CS	8.06 ^b \pm 0.03	16.63 ^a \pm 2.33	0.59 ^b \pm 0.58	29.70 ^a \pm 19.90	5.75 ^a \pm 4.07
CC	8.08 ^c \pm 0.05	15.80 ^a \pm 2.57	0.77 ^c \pm 0.37	36.03 ^b \pm 23.56	17.75 ^b \pm 12.23
Mean and \pm SD for additive ratio A (% wt/wt)					
0	8.03 ^a \pm 0.03	16.77 ^a \pm 1.62	0.39 ^a \pm 0.30	99.77 ^c \pm 47.06	22.10 ^c \pm 14.45
2	8.08 ^b \pm 0.04	16.17 ^a \pm 2.22	0.78 ^c \pm 0.68	47.14 ^b \pm 21.43	13.46 ^b \pm 10.46
6	8.07 ^b \pm 0.05	16.26 ^a \pm 2.74	0.64 ^b \pm 0.41	27.37 ^a \pm 19.60	10.69 ^a \pm 10.77
Factor	ρ_p kg m $^{-3}$	E_j mJ·mm $^{-2}$	MPa	k g H ₂ O·g $^{-1}$ DM	k_u g H ₂ O·g $^{-1}$ DM
p-value					
D	<0.0001	<0.0001	0.0384	<0.0001	<0.0001
Additive	<0.0001	<0.0001	0.0468	0.9116	<0.0001
A	<0.0001	<0.0001	0.0001	0.5337	<0.0001
Mean and \pm SD for dose of material D (mg)					
50	618 ^a \pm 147	3.50 ^b \pm 1.88	6.37 ^{ab} \pm 1.30	5.98 ^b \pm 0.85	3.10 ^b \pm 1.30
100	722 ^b \pm 137	4.15 ^b \pm 1.75	6.67 ^b \pm 2.08	3.98 ^a \pm 1.00	2.11 ^a \pm 0.48
150	664 ^a \pm 135	2.49 ^a \pm 1.22	5.79 ^a \pm 1.21	4.42 ^a \pm 0.69	3.39 ^b \pm 1.52
Mean and \pm SD for type of additive					
NO	552 ^a \pm 123	2.10 ^a \pm 0.81	6.77 ^a \pm 1.31	4.79 ^a \pm 0.93	2.29 ^a \pm 0.46
CS	684 ^b \pm 131	3.19 ^b \pm 1.28	6.11 ^a \pm 1.33	4.85 ^a \pm 1.02	3.36 ^c \pm 1.57
CC	768 ^c \pm 85	4.85 ^c \pm 1.80	5.95 ^a \pm 2.01	4.74 ^a \pm 1.63	2.96 ^b \pm 1.36
Mean and \pm SD for additive ratio A (% wt/wt)					
0	552 ^a \pm 123	2.10 ^a \pm 0.81	6.77 ^b \pm 1.31	4.79 ^a \pm 0.93	2.29 ^a \pm 0.46
2	716 ^b \pm 145	4.34 ^b \pm 2.20	6.89 ^b \pm 1.76	4.57 ^a \pm 1.05	2.37 ^a \pm 0.60
6	735 ^b \pm 79	3.70 ^b \pm 1.13	5.17 ^a \pm 1.09	5.02 ^a \pm 1.58	3.94 ^b \pm 1.66

Table 2

Regression coefficients of the variables for pellet shift in the die (v_p), specific compaction work (L_s), specific work for pellet shift in the die (L_v), DM single pellet density (ρ_p), specific pellet compression work (E_j), elasticity modulus for pellet compression (E), water absorption by crushed pellets (k) and water absorption by uncrushed pellets (k_u) depending on the dose (D) and additive ratio (A).

	v_p		L_s		L_v			
	β_i	p-value	β_i	p-value	β_i	p-value		
Intercept	1.15	<0.0001	—	—	—	236	0.0246	
D	-0.027	<0.0001	1.90	<0.0001	0.23	<0.0001	6.93	0.0035
A	0.23	<0.0001	-28.7	<0.0001	-4.62	<0.0001	108	<0.0001
D^2	0.00017	<0.0001	-0.0075	<0.0001	—	—	-0.032	0.0057
A^2	-0.034	<0.0001	3.72	<0.0001	0.70	<0.0001	-12.96	0.0006
$D \times A$	0.00028	<0.0001	-0.060	<0.0001	-0.012	<0.0001	—	—
F test	607		741		570		511	
R	0.7815		0.7929		0.6959		0.6482	
	E_j	E	k	k_u				
	β_i	p-value	β_i	β_i	p-value	p-value		
Intercept	—	—	6.92	<0.0001	10.44	5.72	<0.0001	
D	0.067	<0.0001	—	—	-0.11	-0.088	0.0001	
A	1.52	<0.0001	—	—	—	—	—	
D^2	-0.00039	<0.0001	—	—	0.00049	0.00045	0.0001	
A^2	-0.21	<0.0001	-0.048	<0.0001	—	0.047	<0.0001	
$D \times A$	—	—	—	—	—	—	—	
F test	74.4		561		583	74.2		
R	0.6625		0.4869		0.7190	0.7342		

D: dose, A: additive ratio, R: goodness of fit.

and ρ_p ($r = 0.806$) indicates that the created bonds between the particles are durable. The bonds that do not break during stress relaxation and elastic expansion of the pellets after leaving the die chamber are mostly due to the cohesion bonds (Nielsen et al., 2020). These bonding mechanisms are observed for biomass, as

well as for pharmaceutical powders and feed (Tumuluru et al., 2011). Therefore, adding the additives CS and CC increased ρ_p by 24% and 39%, respectively. Additives of 2% and 6% wt/wt increased ρ_p by 30% and 33%, respectively. The value of ρ_p reached the maximum (850 kg m $^{-3}$) near the coordinates $D = 100$ mg and

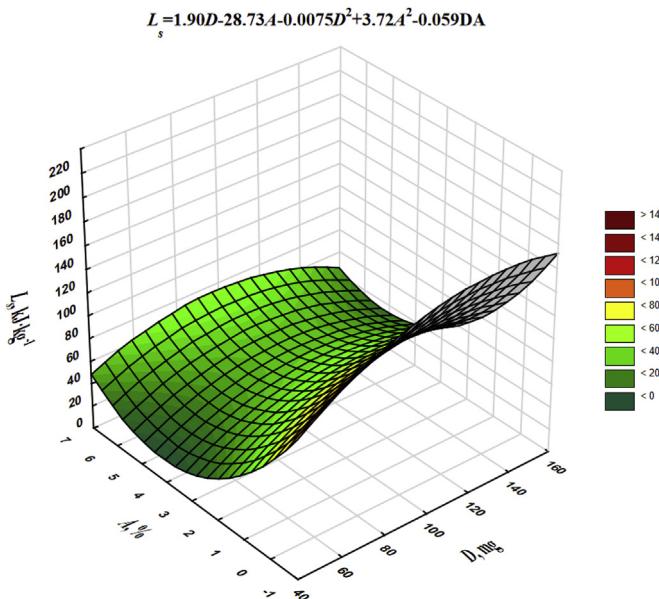


Fig. 4. The surface chart of specific compaction work L_s vs. material dose D and additive ratio A .

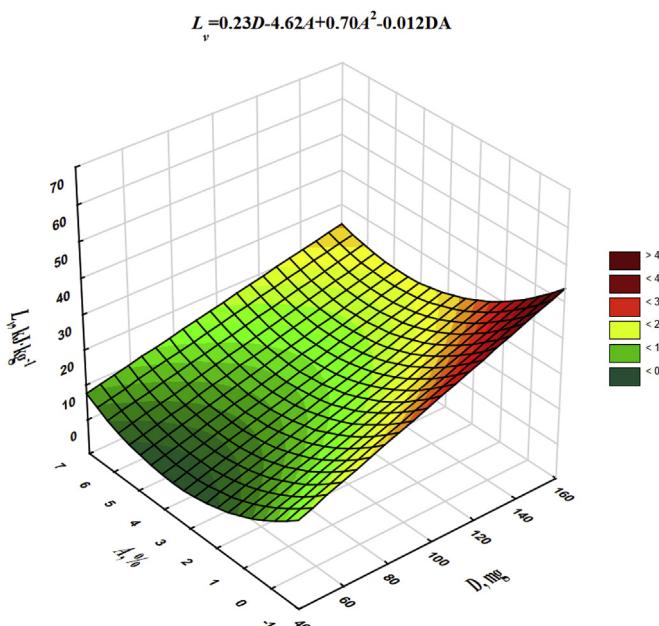


Fig. 5. The surface chart of specific work for pellet shift in the die L_v vs. material dose D and additive ratio A .

$A = 4\% \text{ wt/wt}$ (Fig. 6).

The pellets formed under these conditions were also characterised by the highest resilience to tensile strength, because specific pellet compression work E_j reached the maximum value, 5.52 mJ mm^{-2} (Fig. S4). The results of E_j confirm the previous analyses regarding the 100 mg dose and a more favourable CC additive than CS (Table 1). Thus, one can conclude that the bond between the material particles were durable and the addition of CS, particularly CC with 2–4% wt/wt, increased the conditions of these bonds, especially at an MC of 20% w.b. and $t = 78^\circ\text{C}$. In the literature, it was indicated that CS increases the durability of the pellets and is economically and ecologically favourable (Kuokkanen et al., 2011).

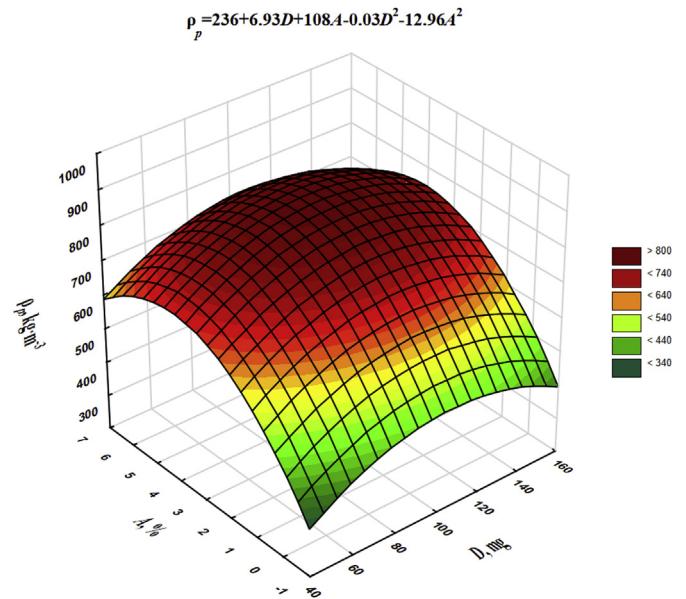


Fig. 6. The surface chart of DM single pellet density ρ_p vs. material dose D and additive ratio A .

Modulus E was strongly dependent on A (Fig. S5) but the relation between these values was inverse. The pellets formed at the 100 mg dose were characterised by the relatively highest E , 6.67 MPa. The value of E decreased for the pellets formed at both the smallest and the highest dose and was 6.37 MPa and 5.79 MPa, respectively (Table 1).

An important parameter characterising the quality of the pellets intended for bedding is the absorption parameter k . The pellets produced at the lowest dose (Table 1) were characterised by the best $k = 5.98 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1} \text{ DM}$. Within the range of the used dose, the relation between k and D formed a complete parabolic function, for which $k_{\min} = 3.85 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1} \text{ DM}$ at $D = 112 \text{ mg}$ (Fig. S6). The type of additive and its ratio did not have an influence on the value differentiation of water absorption by crushed pellets k . Negative correlations of k with L_v , ρ_p , and σ_c prove that the pelletising conditions, which have a positive influence on the compaction process as well as on the pellet quality, prevent the pellet formations that after crushed would be characterised by proper water absorption. The pellets at smaller density and those that undergo cracking more easily, as a result of tensile strength, exhibit a higher specific surface area, making water absorption easier (Pearson et al., 2000).

For comparison, the results of the uncrushed pellets k_u prove that the crucial relations between the factors are preserved, which is confirmed by the positive correlation with k (Table S2). High k_u ($5 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1} \text{ DM}$) was characterised by both the products produced at the smallest and highest doses, and at the highest A of 6% wt/wt (Fig. S7). The CS additive demonstrated a greater influence on k_u than the CC additive, and the pellets made of pure WS were characterised by the lowest water absorption of $2.29 \text{ g H}_2\text{O g}^{-1} \text{ DM}$.

In summary, it can be stated that the additions improved k , and considering that the additive of CC can increase N mineralisation and promote NH_4^+ (Burt et al., 2018) and lowering the bedding pH (Hammes et al., 2003), the optimal CC additive with 4% wt/wt can be indicated as an additive to WS in the production of pellets for poultry bedding. In comparison with CS, the pellets formed at the dose of 100 mg with the CC additive were more durable and less exposed to crushing during handling and transport and displayed a lower risk of dustiness.

4. Conclusion

In this study, pure WS and blends of WS with additives of CS and CC in ratios of 2% wt/wt and 6% wt/wt were used. The PSDs were 'fine skewed' and 'mesokurtic,' and 'moderately well sorted.' In comparison with pure WS, the addition of 6% wt/wt CC enabled a more even distribution and reduced geometric mean of particle size x_g to the maximum extent, from 1.18 mm to 0.71 mm.

The feature correlation analysis indicated that standard deviation s_g , coefficient of gradation C_g , inclusive graphic standard deviation σ_{ig} , and graphic kurtosis K_g characterised PSD the best.

Pelletising of the material with an MC of 20% w.b. at t of 78 °C in the die at a height of 80 mm was the most effective in terms of pellet resilience to compression ρ_p and k using the 100 mg dose (from the 50–150 mg range) with the WS blend with 4% wt/wt CC additive (from the 0–6% wt/wt range). Superior pelletising efficiency of the CC blend was favoured by the even PSD and a relatively large proportion of particles with an average size of 0.71 mm, resulting from the self-contained aggregates of the finest particles and significant reduction in the share of the largest particles.

Under these conditions for the optimal compaction of the material, the maximum density of the pellets was 850 kg m⁻³; to achieve this, the work to be realised was $L_s = 36 \text{ kJ kg}^{-1}$ by moving the pellets in the die by 0.63 mm and performing the work of $L_v = 10.92 \text{ kJ kg}^{-1}$. The produced pellets were characterised by a proper elasticity modulus, $E = 6.15 \text{ MPa}$, and tensile strength, because their deformation, until the cracking phase, required the

work of $E_j = 5.52 \text{ mJ mm}^{-2}$. Therefore, pellets made from WS and CC blends could be used as bird beddings, because the water absorption was 4.00 g H₂O g⁻¹ DM, which was higher than that for pure WS or blends of WS with CS. Adding CC or CS to biomass increases the material and operational costs, which requires further economic research.

Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

Acknowledgement

This research was partially supported by the Ministry of Science and Higher Education in Poland.

Appendix B. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2020.124006>.

Appendix A. Descriptive parameters of particle size distribution, and pelletising and pellets properties

Parameter	Formula
Geometric mean of particle size (mm)	$x_g = \log^{-1} [\sum(m_i \log x_{si}) / \sum m_i]$
Dimensionless standard deviation	$s_g = \log^{-1} \sqrt{\sum(m_i(\log x_{si} - \log x_g)^2) / \sum m_i}$
Geometric mean of particle size on the i -th sieve	$x_{si} = \sqrt{x_i x_{i-1}}$
Part of mass material, finer than size x	$Y = 1 - \exp\left(-\left(x/x_R\right)^n\right)$
Particle size with part of mass material Y	$x = x_R \left[-\ln\left(1 - \frac{Y}{100}\right) \right]^{1/n}$
Graphic mean (mm)	$x_{gmn} = (x_{16} + x_{50} + x_{84})/3$
Inclusive graphic standard deviation (mm)	$\sigma_{ig} = (x_{84} - x_{16})/4 + (x_{95} - x_5)/6.6$
Uniformity index (%)	$I_u = 100x_5/x_{90}$
Size guide number	$N_{sg} = 100x_{50}$
Size range variation (%)	$S_r = 100(x_{84} - x_{16})/2x_{50}$
Mass relative span	$S_I = (x_{90} - x_{10})/x_{50}$
Coefficient of uniformity	$C_u = x_{60}/x_{10}$
Coefficient of gradation	$C_g = x_{30}^2/(x_{10}x_{60})$
Inclusive graphic skewness	$S_{ig} = (x_{16} + x_{84} - 2x_{50})/2(x_{84} - x_{16}) + (x_5 + x_{95} - 2x_{50})/2(x_{95} - x_5)$
Graphic kurtosis	$K_g = (x_{95} - x_5)/2.44(x_{75} - x_{25})$
Geometric STD of high region	$STD_h = x_{84}/x_{50}$
Geometric STD of low region	$STD_l = x_{50}/x_{16}$
Geometric STD of total region	$STD_t = \sqrt{x_{84}/x_{16}}$
Maximum pressure	$p_{max} = \frac{4 F_{max}}{\pi d_m^2}$
Specific compaction work (kJ·kg ⁻¹)	$L_s = \int_0^{S_m} F dx / [m_s(1 - MC/100)]$
Specific work for pellet shift in the die (kJ·kg ⁻¹)	$L_v = \int_{S_m}^{(S_e - S_m)} F dx / [m_s(1 - MC/100)]$
Single pellet density (kg·m ⁻³)	$\rho_p = \frac{32 m(1 - MC/100)}{\pi(d_1 + d_2)^2(l_{p1} + l_{p2})}$
Specific pellet compression work until cracking (mJ·mm ⁻²)	$E_j = \frac{1}{S} \int_0^{d_l} F_c dx$
Elasticity modulus for pellet compression (MPa)	$E = \frac{F_c d}{S l}$
Maximum tensile strength during pellet cracking (MPa)	$\sigma_c = \frac{2F_{cm}}{\pi d l_p}$
Water absorption (g H ₂ O·g ⁻¹ DM)	$k = (m_{s1} - m_{s0})/m_{s0}(1 - MC/100)$

where x_g geometric mean of particle size; m_i , mass of the material on the i -th sieve; x_{si} , geometric mean of particle size on the i -th sieve; s_g , dimensionless standard deviation; x_i , holes diagonal of i -th sieve; $x_{(i-1)}$, diagonal of sieve hole which is above the i -th sieve; Y_s , part of mass material; x , particle size, receiving from the equivalent of diagonal sieve opening; x_R , Rosin-Rammler particle size parameter; n , Rosin-Rammler particle size distribution parameter; x_{gm} , graphic mean; σ_{ig} , inclusive graphic standard deviation; I_u , uniformity index; N_{sg} , size guide number; S_v , particle size range variation; S_t , mass relative span; C_u , coefficient of uniformity, dimensionless; C_g , coefficient of gradation, dimensionless; S_{ig} , inclusive graphic skewness, dimensionless; K_g , graphic kurtosis, dimensionless; STD_h , STD_l , and STD_t , distribution geometric standard deviation of the high, low, and total regions, respectively; and x_{95} , x_{90} , x_{84} , x_{75} , x_{60} , x_{50} , x_{30} , x_{25} , x_{16} , x_{10} , and x_5 are corresponding particle sizes at 95, 90, 84, 75, 60, 50, 30, 25, 16, 10, and 5% cumulative particle undersizes, respectively; p_{max} , maximum compaction pressure; F_{max} , maximum compaction force d_m , die hole diameter; L_s , and L_v , DM specific works of compaction and pellet shift in the die; s_m , and s_e , piston displacement to achieve a proper maximum compaction pressure and end piston position after pellet displacement in the die ($v_p = s_e - s_m$); v_p , pellet shift in the die F , compaction force; m_s , dose mass; MC , material moisture in reference to wet substance; ρ_p , DM single pellet density; m , pellet mass; d_1 , and d_2 , pellet diameters in two perpendicular directions; l_{p1} , and l_{p2} , pellet lengths in two perpendicular directions; E_j , energy of compression work until pellet cracking; F_c , compressive force; S , pellet surface on which the load works; E , elasticity modulus during compression; F_{cs} , tensile strength within the range of elasticity; d , pellet diameter before loading; Δl pellet deformation under load (mm); σ , maximum tensile strength during pellet cracking; l_p , pellet length; k , water absorption by pellets; m_{s1} , mass of pellet sample after soaking in water; m_{s0} , mass of pellet sample before soaking in water.

References

- Adapa, P., Tabil, L., Schoenau, G., 2009. Compaction characteristics of barley, canola, oat and wheat straw. Biosyst. Eng. 104, 335–344. <https://doi.org/10.1016/j.biosystemseng.2009.06.022>.
- Bai, X., Wang, G., Gong, C., Yu, Y., Liu, W., Wang, D., 2017. Co-pelletizing characteristics of torrefied wheat straw with peanut shell. Bioresour. Technol. 233, 373–381. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2017.02.091>.
- Basiji, F., Vahidreza, S., Amir, N., Srikanth, P., 2010. The effects of fiber length and fiber loading on the mechanical properties of wood-plastic (polypropylene) composites. Turk. J. Agric. For. 34, 191–196. <https://doi.org/10.3906/tar-0903-16>.
- Berghei, J., Frodeson, S., Granström, K., Renström, R., Ståhl, M., Nordgren, D., Tomani, P., 2013. The effects of kraft lignin additives on wood fuel pellet quality, energy use and shelf life. Fuel Process. Technol. 112, 64–69. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2013.02.011>.
- Bitra, V.S.P., Womac, A.R., Chevanan, N., Miu, P.I., Igathinathane, C., Sokhansanj, S., Smith, D.R., 2009a. Direct mechanical energy measures of hammer mill comminution of switchgrass, wheat straw, and corn stover and analysis of their particle size distributions. Powder Technol. 193, 32–45. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2009.02.010>.
- Bitra, V.S.P., Womac, A.R., Yang, Y.T., Igathinathane, C., Miu, P.I., Chevanan, N., Sokhansanj, S., 2009b. Knife mill operating factors effect on switchgrass particle size distributions. Bioresour. Technol. 100, 5176–5188. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2009.02.072>.
- Blott, S.J., Pye, K., 2001. Gradistat: a grain size distribution and statistics package for the analysis of unconsolidated sediments. Earth Surf. Process. 26, 1237–1248. <https://doi.org/10.1002/esp.261>.
- Bouajila, J., Dole, P., Joly, C., Limare, A., 2006. Some laws of a lignin plasticization. J. Appl. Polym. Sci. 102, 1445–1451. <https://doi.org/10.1002/app.24299>.
- Braccini, I., Pérez, S., 2001. Molecular basis of Ca²⁺-induced gelation in alginates and pectins: the egg-box model revisited. Biomacromolecules 2, 1089–1096. <https://doi.org/10.1021/bm00008g>.
- Burt, C.D., Cabrera, M.L., Rothrock, M.J., Kissel, D.E., 2018. Urea hydrolysis and calcium carbonate precipitation in gypsum-amended broiler litter. J. Environ. Qual. 47, 162–169. <https://doi.org/10.2134/jeq2017.08.0337>.
- Chevanan, N., Womac, A.R., Bitra, V.S.P., Igathinathane, C., Yang, Y.T., Miu, P.I., Sokhansanj, S., 2010. Bulk density and compaction behavior of knife mill chopped switchgrass, wheat straw, and corn stover. Bioresour. Technol. 101, 207–214. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2009.07.083>.
- Donghui, L., Lope, T.G., Decheng, W., Guanghui, W., Zhiqin, W., 2014. Optimization of binder addition and compression load for pelletization of wheat straw using response surface methodology. Int. J. Agric. Biol. Eng. 7, 67–78. <https://doi.org/10.3965/j.ijabe.20140706.009>.
- Frodeson, S., Henriksson, G., Berghei, J., 2019. Effects of moisture content during densification of biomass pellets, focusing on polysaccharide substances. Biomass Bioenergy 122, 322–330. <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2019.01.048>.
- Frodeson, S., Henriksson, G., Berghei, J., 2018. Pelletizing pure biomass substances to investigate the mechanical properties and bonding mechanisms. BioResources 13, 1202–1222. <https://doi.org/10.15376/biores.13.1.1202-1222>.
- Hammes, F., Boon, N., de Villiers, J., Verstraete, W., Siciliano, S.D., 2003. Strain-specific ureolytic microbial calcium carbonate precipitation. Appl. Environ. Microbiol. 69, 4901–4909. <https://doi.org/10.1128/AEM.69.8.4901-4909.2003>.
- Harun, N.Y., Parvez, A.M., Afzal, M.T., 2018. Process and energy analysis of pelletizing agricultural and woody biomass blends. Sustainability (Switzerland) 10. <https://doi.org/10.3390/su100611770>.
- Jezerska, L., Drozdova, J., Rozbroj, J., Zegzulkia, J., Frydrych, J., 2019. Pelletization of energy grasses: a study on the influence of process and material parameters on pellet quality. Int. J. Green Energy 16, 1278–1286. <https://doi.org/10.1080/15435075.2019.1671402>.
- Jiang, L., Yuan, X., Xiao, Z., Liang, J., Li, H., Cao, L., Wang, H., Chen, X., Zeng, G., 2016. A comparative study of biomass pellet and biomass-sludge mixed pellet: energy input and pellet properties. Energy Convers. Manag. 126, 509–515. <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2016.08.035>.
- Jiang, X., Cheng, W., Liu, J., Xu, H., Zhang, D., Zheng, Y., Cai, H., 2020. Effect of moisture content during preparation on the physicochemical properties of pellets made from different biomass materials. BioResources 15, 557–573.
- Kaliyan, N., Morey, V.R., 2009. Factors affecting strength and durability of densified biomass products. Biomass Bioenergy 33, 337–359. <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2008.08.005>.
- Kashaninejad, M., Tabib, L.G., 2011. Effect of microwave-chemical pre-treatment on compression characteristics of biomass grinds. Biosyst. Eng. 108, 36–45. <https://doi.org/10.1016/j.biosystemseng.2010.10.008>.
- Kong, L., Zhao, H., He, Z., Yi, S., 2017. Effects of steaming treatment on crystallinity and glass transition temperature of *Eucalyptus grandis* × *E. urophylla*. Res. Phys. 7, 914–919. <https://doi.org/10.1016/j.rinp.2017.02.017>.
- Kuokkanen, M., Vilppu, T., Kuokkanen, T., Stoor, T., Niinimäki, J., 2011. Additives in wood pellet production – a pilot-scale study of binding agent usage. BioResources 6, 4331–4355. <https://doi.org/10.15376/biores.6.4.4331-4355>.
- Labbé, R., Paczkowski, S., Knappe, V., Russ, M., Wöhler, M., Pelz, S., 2020. Effect of feedstock particle size distribution and feedstock moisture content on pellet production efficiency, pellet quality, transport and combustion emissions. Fuel 263. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2019.116662>.
- Lisowski, A., Dąbrowska-Salwin, M., Ostrowska-Ligęza, E., Nawrocka, A., Stasiak, M., Świętochowski, A., Klonowski, J., Syputa, M., Lisowska, B., 2017. Effects of the biomass moisture content and pelletizing temperature on the pressure-induced agglomeration process. Biomass Bioenergy 107, 376–383. <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2017.10.029>.
- Lisowski, A., Kostrubiec, M., Dąbrowska-Salwin, M., Świętochowski, A., 2018a. The characteristics of shredded straw and hay biomass—Part 1—whole mixture. Waste Biomass Valor. 9, 853–859. <https://doi.org/10.1007/s12649-017-9835-y>.
- Lisowski, A., Kostrubiec, M., Dąbrowska-Salwin, M., Świętochowski, A., 2018b. The characteristics of shredded straw and hay biomass: Part 2—the finest particles. Waste Biomass Valor. 9, 115–121. <https://doi.org/10.1007/s12649-016-9747-2>.
- Lisowski, A., Matkowski, P., Dąbrowska, M., Piątek, M., Świętochowski, A., Klonowski, J., Mieszkalski, L., Reshetiuk, V., 2020. Particle size distribution and physicochemical properties of pellets made of straw, hay, and their blends. Waste Biomass Valor. 11, 63–75. <https://doi.org/10.1007/s12649-018-0458-8>.
- Lisowski, A., Olendzki, D., Świętochowski, A., Dąbrowska, M., Mieszkalski, L., Ostrowska-Ligęza, E., Stasiak, M., Klonowski, J., Piątek, M., 2019a. Spent coffee grounds compaction process: its effects on the strength properties of biofuel pellets. Renew. Energy 142, 173–183. <https://doi.org/10.1016/j.renene.2019.04.114>.
- Lisowski, A., Pajor, M., Świętochowski, A., Dąbrowska, M., Klonowski, J., Mieszkalski, L., Ekielski, A., Stasiak, M., Piątek, M., 2019b. Effects of moisture content, temperature, and die thickness on the compaction process, and the density and strength of walnut shell pellets. Renew. Energy 141, 770–781. <https://doi.org/10.1016/j.renene.2019.04.050>.
- Mani, S., Tabil, L.G., Sokhansanj, S., 2006. Effects of compressive force, particle size and moisture content on mechanical properties of biomass pellets from grasses. Biomass Bioenergy 30, 648–654. <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2005.01.004>.
- Miao, Z., Phillips, J.W., Griff, T.E., Mathankar, S.K., 2015. Measurement of mechanical compressive properties and densification energy requirement of *Miscanthus × giganteus* and switchgrass. Bioenergy Res. 8, 152–164. <https://doi.org/10.1007/s12155-014-9495-8>.
- Miller, G.A., Baddeley, A., Shiffrin, R.M., Nosofsky, R.M., 1994. The magical number seven, plus or minus two: some limits on our capacity for processing information. Psychol. Rev. 101, 343–352.
- Mostafa, M.E., Hu, S., Wang, Y., Su, S., Hu, X., Elsayed, S.A., Xiang, J., 2019. The significance of pelletization operating conditions: an analysis of physical and mechanical characteristics as well as energy consumption of biomass pellets.

- Renew. Sustain. Energy Rev. 105, 332–348. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2019.01.053>.
- Nielsen, N.P.K., Gardner, D.J., Poulsen, T., Felby, C., 2009. Importance of temperature, moisture content, and species for the conversion process of wood residues into fuel pellets. *Wood Fiber Sci.* 41, 414–425.
- Nielsen, S.K., Mandø, M., Rosenørn, A.B., 2020. Review of die design and process parameters in the biomass pelletizing process. *Powder Technol.* 364, 971–985. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2019.10.051>.
- Nona, K.D., Lenaerts, B., Kayacan, E., Saeyns, W., 2014. Bulk compression characteristics of straw and hay. *Biosyst. Eng.* 118, 194–202. <https://doi.org/10.1016/j.biosystemseng.2013.12.005>.
- Pearson, E.G., Leavengood, S., Reeb, J.E., 2000. Comparison of the absorptive capacity of shavings of western juniper, western redcedar, and Douglas-fir for animal bedding. *For. Prod. J.* 50, 57–60.
- Puig-Arnavat, M., Shang, L., Sárossy, Z., Ahrenfeldt, J., Henriksen, U.B., 2016. From a single pellet press to a bench scale pellet mill - pelletizing six different biomass feedstocks. *Fuel Process. Technol.* 142, 27–33. <https://doi.org/10.1016/j.fuproc.2015.09.022>.
- Rodriguez-Navarro, C., Elert, K., Sevcík, R., 2016. Amorphous and crystalline calcium carbonate phases during carbonation of nanolimes: implications in heritage conservation. *CrystEngComm* 18, 6594–6607. <https://doi.org/10.1039/c6ce01202g>.
- Roffael, E., 2016. Significance of wood extractives for wood bonding. *Appl. Microbiol. Biotechnol.* 100, 1589–1596. <https://doi.org/10.1007/s00253-015-7207-8>.
- Roos, Y.H., 2010. Glass transition temperature and its relevance in food processing. *Annu. Rev. Food Sci. Technol.* 1, 469–496. <https://doi.org/10.1146/annurev.food.102308.124139>.
- Rosin, P., Rammiller, E., 1933. The laws governing the fineness of powdered coal. *J. Inst. Fuel* 7, 29e36.
- Rossouw, P.E., Kamelchuk, L.S., Kusy, R.P., 2003. A fundamental review of variables associated with low velocity frictional dynamics. *Semin. Orthod.* 9, 223–235. <https://doi.org/10.1016/j.sodo.2003.08.003>.
- Shaw, M.D., Karunakaran, C., Tabil, L.G., 2009. Physicochemical characteristics of densified untreated and steam exploded poplar wood and wheat straw grinds. *Biosyst. Eng.* 103, 198–207. <https://doi.org/10.1016/j.biosystemseng.2009.02.012>.
- Slade, L., Levine, H., 1995. Glass transitions and water-food structure interactions. *Adv. Food Nutr. Res.* 38, 103–269. [https://doi.org/10.1016/S1043-4526\(08\)60084-4](https://doi.org/10.1016/S1043-4526(08)60084-4).
- Ståhl, M., Berghel, J., Frodeson, S., Granström, K., Renström, R., 2012. Effects on pellet properties and energy use when starch is added in the wood-fuel pelletizing process. *Energy Fuels* 26, 1937–1945. <https://doi.org/10.1021/ef201968r>.
- Stasiak, M., Molenda, M., Ganczar, M., Wiącek, J., Parafiniuk, P., Lisowski, A., 2018. Characterization of shear behaviour in consolidated granular biomass. *Powder Technol.* 327, 120–127. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2017.12.037>.
- Stelte, W., Clemons, C., Holm, J.K., Ahrenfeldt, J., Henriksen, U.B., Sanadi, A.R., 2012a. Fuel pellets from wheat straw: the effect of lignin glass transition and surface waxes on pelletizing properties. *Bioenergy Res.* 5, 450–458. <https://doi.org/10.1007/s12155-011-9169-8>.
- Stelte, W., Holm, J.K., Sanadi, A.R., Barsberg, S., Ahrenfeldt, J., Henriksen, U.B., 2011a. A study of bonding and failure mechanisms in fuel pellets from different biomass resources. *Biomass Bioenergy* 35, 910–918. <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2010.11.003>.
- Stelte, W., Holm, J.K., Sanadi, A.R., Barsberg, S., Ahrenfeldt, J., Henriksen, U.B., 2011b. Fuel pellets from biomass: the importance of the pelletizing pressure and its dependency on the processing conditions. *Fuel* 90, 3285–3290. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2011.05.011>.
- Stelte, W., Sanadi, A.R., Shang, L., Holm, J.K., Ahrenfeldt, J., Henriksen, U.B., 2012b. Recent developments in biomass pelletization-a review. *Bioresources* 7, 4451–4490. <https://doi.org/10.15376/biores.7.3.4451-4490>.
- Tarasov, D., Shahi, C., Leitch, M., 2013. Effect of additives on wood pellet physical and thermal characteristics: a review. *ISRN Forestry* 2013 1–6. <https://doi.org/10.1155/2013/876939>.
- Tumuluru, J.S., Wright, C.T., Hess, J.R., Kenney, K.L., 2011. A review of biomass densification systems to develop uniform feedstock commodities for bioenergy application. *Biofuel. Bioprod. Bior.* 5, 683–707. <https://doi.org/10.1002/bbb.324>.
- Vincevica-Gaile, Z., Stankevica, K., Irtiseva, K., Shishkin, A., Obuka, V., Celma, S., Ozolins, J., Klavins, M., 2019. Granulation of fly ash and biochar with organic lake sediments - a way to sustainable utilization of waste from bioenergy production. *Biomass Bioenergy* 125, 23–33. <https://doi.org/10.1016/j.biombioe.2019.04.004>.
- Whittaker, C., Shield, I., 2017. Factors affecting wood, energy grass and straw pellet durability – a review. *Renew. Sustain. Energy Rev.* 71, 1–11. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2016.12.119>.
- Xia, X., Zhang, K., Xiao, H., Xiao, S., Song, Z., Yang, Z., 2019. Effects of additives and hydrothermal pretreatment on the pelletizing process of rice straw: energy consumption and pellets quality. *Ind. Crop. Prod.* 133, 178–184. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2019.03.007>.
- Xu, H., Zhou, S., Jin, X., Liu, Y., 2014. Monte Carlo simulation of the induction time and particle size distribution in the nucleation of calcium carbonate. *Powder Technol.* 253, 242–246. <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2013.11.003>.
- Younis, M., Alnouri, S.Y., Abu Tarboush, B.J., Ahmad, M.N., 2018. Renewable biofuel production from biomass: a review for biomass pelletization, characterization, and thermal conversion techniques. *Int. J. Green Energy* 15, 837–863. <https://doi.org/10.1080/15435075.2018.1529581>.

SI APPENDIX

Table S1. Parameters of the particle size distribution characteristics of the milled WS and blends of WS with CS or CC with the addition of 2% wt/wt and 6% wt/wt

Parameter	WS	WS+CS 2%	WS+CC 2%	WS+CS 6%	WS+CC 6%
x_g , mm	1.18 ^{c*}	0.96 ^b	0.95 ^b	0.74 ^a	0.71 ^a
S_g	2.03 ^a	2.17 ^c	2.22 ^c	2.08 ^{ab}	2.10 ^b
x_R , mm	1.38	1.19	1.15	1.00	0.93
n	1.90	1.69	1.54	1.53	1.49
R ² ,%	97.36	98.48	99.32	98.48	98.57
F	2319	4087	9261	4093	4329
p-F	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001	<0.0001
x_5 , mm	0.29	0.21	0.17	0.14	0.13
x_{10} , mm	0.42	0.31	0.27	0.23	0.21
x_{16} , mm	0.55	0.42	0.37	0.32	0.29
x_{25} , mm	0.72	0.57	0.51	0.44	0.40
x_{30} , mm	0.80	0.65	0.59	0.51	0.47
x_{50} , mm	1.14	0.96	0.91	0.79	0.73
x_{60} , mm	1.32	1.13	1.09	0.94	0.88
x_{75} , mm	1.64	1.44	1.42	1.24	1.16
x_{84} , mm	1.90	1.70	1.71	1.49	1.40
x_{90} , mm	2.14	1.95	1.98	1.73	1.63
x_{95} , mm	2.46	2.28	2.35	2.05	1.94
I_u ,%	13.55	10.77	8.59	8.09	7.98
N_{sg} , mm	114.0	96.0	91.0	79.0	73.0
S_v ,%	59.2	66.7	73.6	74.0	76.0
S_l	1.51	1.71	1.88	1.90	1.95
C_u	3.14	3.65	4.04	4.09	4.19
C_g	1.15	1.21	1.18	1.20	1.20
x_{gm} , mm	1.20	1.03	1.00	0.87	0.81
σ_{ig} , mm	0.67	0.63	0.67	0.58	0.55
S_{ig}	0.17	0.22	0.26	0.26	0.27
K_g	0.97	0.98	0.98	0.98	0.98
STD_h , mm	1.67	1.77	1.88	1.89	1.92
STD_l , mm	2.07	2.29	2.46	2.47	2.52
STD_t , mm	1.86	2.01	2.15	2.16	2.20

* different letters in each column and factors within a value represent a significant difference at p<0.05 using Tukey's test.

x_g , geometric mean of particle size; s_g , dimensionless standard deviation; x_R Rosin-Rammler particle size parameter; n Rosin-Rammler particle size distribution parameter; R², coefficient of determination; F, Fisher-Snedecor test; p-F, p-value for F; x_{95} , x_{90} , x_{84} , x_{75} , x_{60} , x_{50} , x_{30} , x_{25} , x_{16} , x_{10} , and x_5 are corresponding particle sizes at 95, 90, 84, 75, 60, 50, 30, 25, 16, 10, and 5% cumulative particle undersizes, respectively; I_u , uniformity index; N_{sg} , size guide number; S_v , particle size range variation; S_l , mass relative span; C_u , coefficient of uniformity; C_g , coefficient of gradation; x_{gm} , graphic mean; σ_{ig} , inclusive graphic standard deviation; S_{ig} , inclusive graphic skewness, dimensionless; K_g , graphic kurtosis, dimensionless; and STD_h , STD_l , and STD_t , distribution geometric standard deviations of the high, low, and total regions, respectively.

Table S2. Correlation matrix for dose (D), type of additive, additive ratio (A), pellet diameter (d), pellet length (l_p), DM single pellet density (ρ_p), specific pellet compression work (E_j), elasticity modulus for pellet compression (E), tensile strength (σ_c), displacement at maximum agglomeration pressure (s_m), pellet shift in the die (v_p), specific compaction work (L_s), specific work for pellet shift in the die (L_v), water absorption by crushed pellets (k), water absorption by uncrushed pellets (k_u)

Parameter	D	Additive	A	d	l_p	ρ_p	E_j	E	σ_c	s_m	v_p	L_s	L_v	k	k_u
D	1.000														
Additive	0.000	1.000													
A	0.000	-0.655 ^a	1.000												
d	0.207	-0.288 ^a	0.270 ^a	1.000											
l_p	0.063	0.024	-0.072	-0.333 ^a	1.000										
ρ_p	0.128	-0.367 ^a	0.456 ^a	0.473 ^a	-0.236	1.000									
E_j	-0.228	-0.243	0.283 ^a	0.158	-0.020	0.615 ^a	1.000								
E	-0.147	0.152	-0.420 ^a	-0.229	-0.208	0.077	0.267	1.000							
σ_c	-0.152	-0.323 ^a	0.426 ^a	0.216	-0.084	0.806 ^a	0.861 ^a	0.285 ^a	1.000						
s_m	-0.611 ^a	0.245	-0.274 ^a	0.021	-0.144	0.047	0.185	0.235	0.161	1.000					
v_p	0.627 ^a	-0.240	0.231	-0.020	0.136	-0.051	-0.176	-0.216	-0.170	-0.991 ^a	1.000				
L_s	0.097	0.521 ^a	-0.592 ^a	-0.164	0.075	-0.190	-0.208	0.256	-0.206	0.477 ^a	-0.435 ^a	1.000			
L_v	0.482 ^a	0.591 ^a	-0.390 ^a	0.124	-0.144	0.053	-0.187	0.083	-0.175	-0.160	0.183	0.427 ^a	1.000		
k	-0.533 ^a	-0.021	0.104	-0.322 ^a	-0.098	-0.375 ^a	-0.195	-0.243	-0.278 ^a	0.127	-0.140	-0.211	-0.410 ^a	1.000	
k_u	0.093	-0.342 ^a	0.572 ^a	-0.201	0.414 ^a	-0.061	-0.128	-0.388 ^a	-0.057	-0.412 ^a	0.379 ^a	-0.332 ^a	-0.277 ^a	0.285 ^a	1.000

^a statistically significant at p-value = 0.05



Fig. S1. Stand for biomass compaction with a single matrix with an open chamber, using a universal testing machine, as well as a system for controlling and recording parameters of compaction process

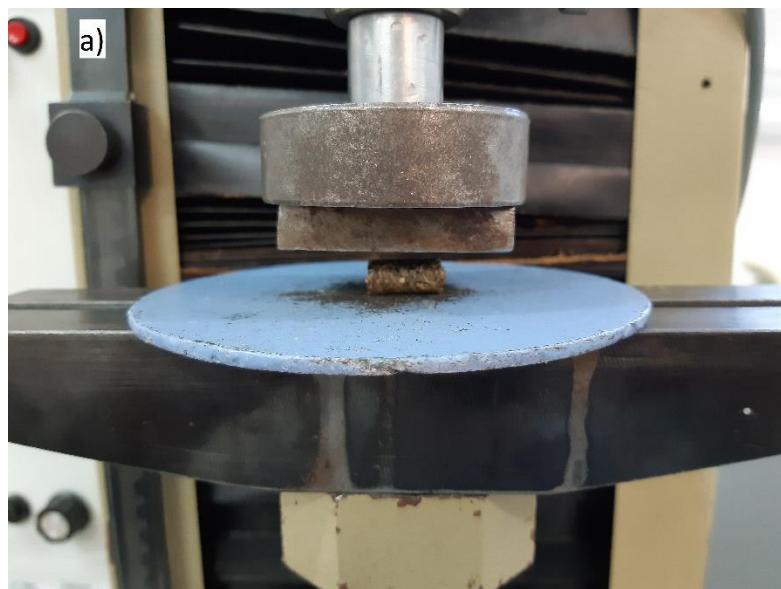


Fig. S2. Stands for measuring pellet quality parameters a) pellet strength during tensile strength, b) water absorption by uncrushed and crushed pellets

$$v_p = 1.15 - 0.027D + 0.23A + 0.00017D^2 - 0.034A^2 + 0.00027DA$$

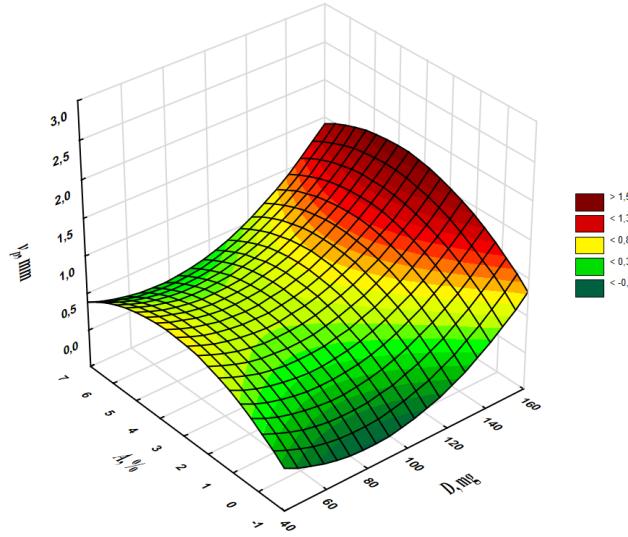


Fig. S3. The surface chart of pellet shift in the die v_p vs. material dose D and additive ratio A

$$E_j = 0.067D + 1.52A - 0.00039D^2 - 0.21A^2$$

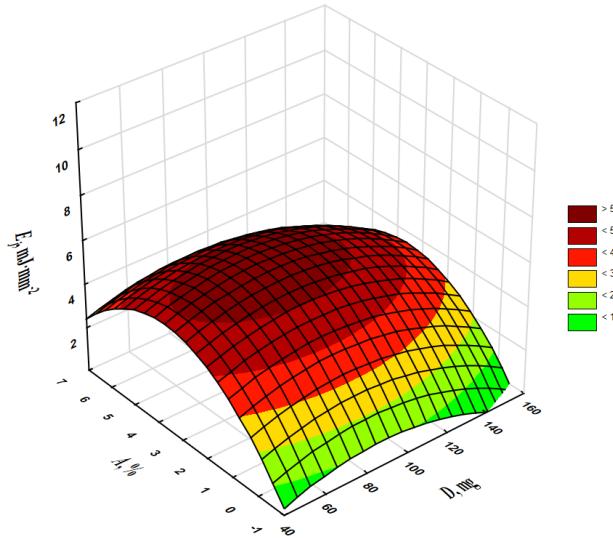


Fig. S4. The surface chart of specific pellet compression work E_j vs. material dose D and additive ratio A

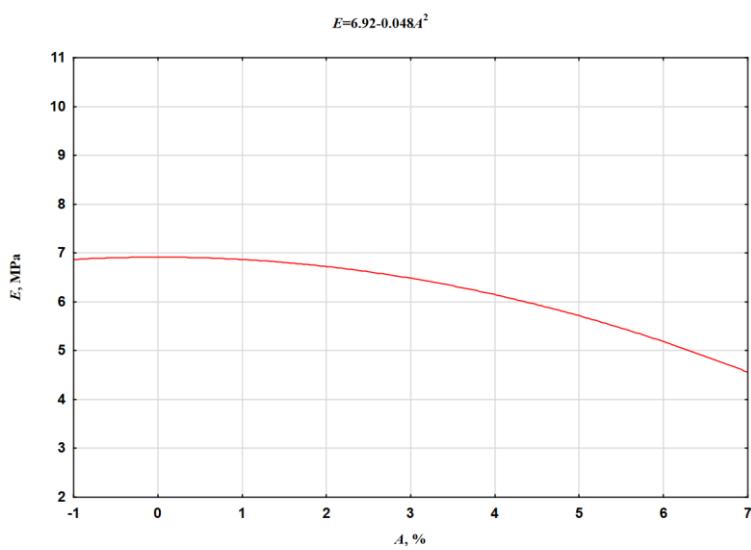


Fig. S5. Elasticity modulus for pellet compression E vs. additive ratio A

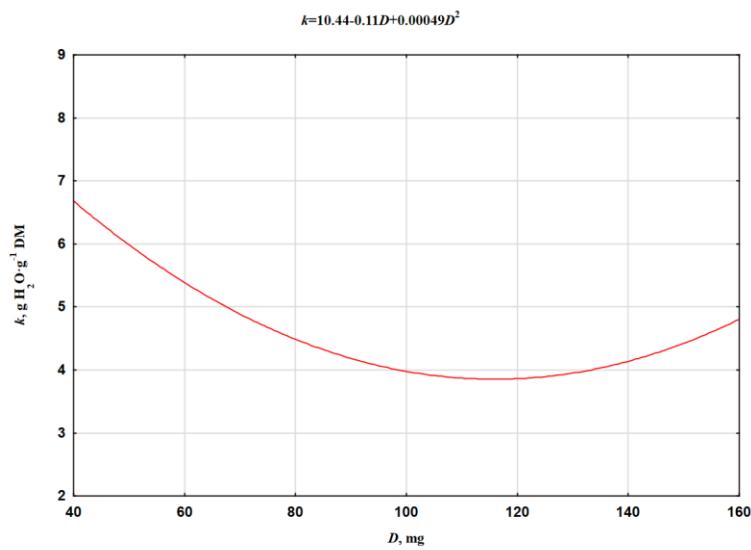


Fig. S6. Water absorption by crushed pellets k vs. material dose D

$$k_u = 5.72 - 0.088D + 0.00045D^2 + 0.047A^2$$

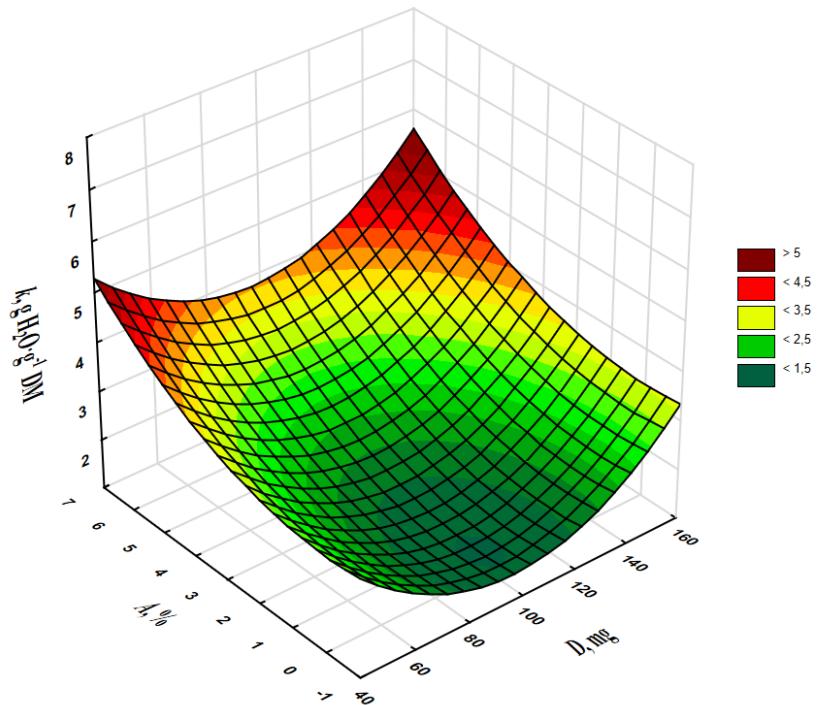


Fig. S7. The surface charts of water absorption by uncrushed pellets k_u vs. material dose D and additive ratio A