

Relatório Final

Título do projeto de pesquisa: Pesquisa e desenvolvimento do método de spout-fluid bed com spray Wurst para microencapsulamento de componentes de propelentes sólidos

Bolsista: Lucas Barros de Oliveira

Orientador(a): Marcio Yuji Nagamachi

Período a que se refere o relatório: Fevereiro a Julho de 2017

Resumo

Os leitos fluidos cônicos têm grande aplicação no processamento de partículas sensíveis, reativas e higroscópicas, que são largamente empregadas na indústria aeroespacial. O movimento circulatório das partículas no leito intensifica o seu contato com o ar, conferindo maior uniformidade ao processo e reduzindo a perda de carga no leito. Neste trabalho, a perda de carga e a velocidade mínima de jorro são obtidos por simulação com o *OpenFoam*, e comparados com dados experimentais previamente obtidos. Os resultados mostraram boa coerência e, embora os valores obtidos por simulação fossem menores do que os experimentais, essa diferença pode ser atribuída ao efeito de histerese que ocorre nessas curvas. Foram realizados ainda alguns testes iniciais de microencapsulamento de perclorato de amônio com poliacrilato, utilizando o *spray Wurst*, cujos resultados se mostraram muito promissores.

1. Introdução

Nos leitos fluidos ocorrem processos fenomenológicos entre o ar e o leito de partículas que envolvem intensas trocas de massa, energia e de quantidade de movimento. Nesse sentido, o leito fluido cônico com jorro busca promover uma maior dispersão e um maior contato entre as fases de modo a intensificar essas trocas¹. A utilização do fundo cônico nesses equipamentos concentra o fluxo do ar no centro do leito, promovendo um movimento circulatório que confere maior uniformidade e homogeneidade para as partículas no processo². A operação com jorro nesses leitos (*Spouted Fluid-Bed*) reduz ainda significativamente a perda de carga, reduzindo assim a potência necessária para o bombeamento do ar. O movimento circulatório das partículas nesse tipo de leito possibilitou

ainda o surgimento de uma técnica de microencapsulamento, largamente empregada na indústria química, farmacêutica e aeroespacial, denominada *Spray Wurst*^{1,2}. Neste trabalho, busca-se obter dados da perda de carga e da velocidade mínima de jorro por simulação com o *OpenFoam*, de modo a compará-los com dados experimentais previamente obtidos³. É proposta ainda uma correlação para a curva de perda de carga obtida experimentalmente, assim como são realizados alguns testes de microencapsulamento por *spray-Wurst*.

2. Materiais e Métodos

Os dados foram previamente obtidos³ com partículas esféricas de perclorato de amônio de 500 μm , grau técnico, da AEQ. O equipamento empregado é um leito fluido cônico, modelo VFC-LAB Micro, da Freund-Vector com capacidade entre 0,02 e 0,6 kg. O equipamento possui as seguintes dimensões em cm: $D_c = 14,30$, $H_c = 18,85$, $D = D_i = 4,30$ e $\gamma = 29,71^\circ$, conforme ilustra a Fig. 1. As simulações foram realizadas em um computador IBM-PC com sistema operacional *UBUNTU-LINUX*, versão 14.04, e o aplicativo de CFD utilizado é o *OpenFoam*, versão 3.01.

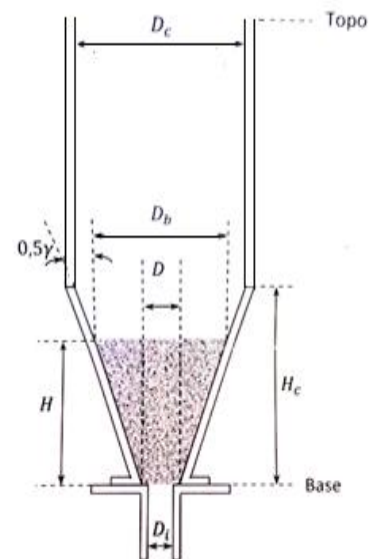


Fig. 1 – Representação do leito cônico e seus parâmetros.

2.1 Métodos

As simulações foram conduzidas para as cinco quantidades, de 0,7 a 1,1 kg, de perclorato de amônio empregadas nos estudos prévios³. As alturas dos leitos estáticos $H = H_o$ foram determinadas experimentalmente para cada uma dessas quantidades e utilizadas nas simulações. As perdas de carga ΔP foram obtidas por simulação para diferentes vazões ou velocidades do ar U_{ar} no fundo do leito. Uma correlação semiempírica também foi proposta para os dados experimentais de perda de carga. O leito fluido cônico foi então equipado com os atomizadores e o tubo de arraste, ou *draft-tube*, e testes iniciais de micro-encapsulamento de perclorato de amônio com poliacrilato foram realizados por *spray Wurst*.

2.1.1 Equações empregadas nas simulações

2.1.1.1 Equações conservativas de massa

As equações da continuidade ou dos balanços diferenciais de massa, sem geração e sem transferência de massa entre as fases, são dadas respectivamente por⁴:

$$1) \quad \frac{\partial}{\partial t}(\alpha_p \rho_p) + \nabla(\alpha_p \rho_p \mathbf{U}_p) = 0$$

$$2) \quad \frac{\partial}{\partial t}(\alpha_{ar} \rho_{ar}) + \nabla(\alpha_{ar} \rho_{ar} \mathbf{U}_{ar}) = 0$$

, em que α_p e α_{ar} são as frações volumétricas, ρ_p e ρ_{ar} são as densidades mássicas e \mathbf{U}_p e \mathbf{U}_{ar} são os vetores velocidade da fase sólida (ou partículas) e do ar, respectivamente.

2.1.1.2 Equações conservativas de quantidade de movimento

As equações de Navier-Stokes ou dos balanços diferenciais de quantidade de movimento, desprezando-se as forças de *lift*, *virtual mass* entre outros, resultam:

$$3) \quad \frac{\partial}{\partial t}(\alpha_p \rho_p \mathbf{U}_p) + \nabla(\alpha_p \rho_p \mathbf{U}_p \mathbf{U}_p) = -\alpha_p \nabla p + \nabla \alpha_p \boldsymbol{\tau}_p + \alpha_p \rho_p \mathbf{g} + \mathbf{M}_{ar,p}$$

$$4) \quad \frac{\partial}{\partial t}(\alpha_{ar} \rho_{ar} \mathbf{U}_{ar}) + \nabla(\alpha_{ar} \rho_{ar} \mathbf{U}_{ar} \mathbf{U}_{ar}) = -\alpha_{ar} \nabla p + \nabla \alpha_{ar} \boldsymbol{\tau}_{ar} + \alpha_{ar} \rho_{ar} \mathbf{g} + \mathbf{M}_{p,ar}$$

, em que \mathbf{g} é o vetor de aceleração da gravidade e $\boldsymbol{\tau}_p$ e $\boldsymbol{\tau}_{ar}$ são os tensores de tensão-deformação da fase sólida e do ar dados respectivamente por³:

$$5) \quad \boldsymbol{\tau}_p = \mu_p (\nabla \mathbf{U}_p + \nabla \mathbf{U}_p^T) + \left(\lambda_p - \frac{2}{3} \mu_p \right) \nabla \cdot \mathbf{U}_p \mathbf{I}$$

$$6) \quad \boldsymbol{\tau}_{ar} = \mu_{ar} (\nabla \mathbf{U}_{ar} + \nabla \mathbf{U}_{ar}^T) - \frac{2}{3} \mu_{ar} \nabla \cdot \mathbf{U}_{ar} \mathbf{I}$$

, em que μ_p e μ_{ar} são as viscosidades da fase sólida e do ar e \mathbf{I} e T representam a matriz identidade e a transposta da matriz, respectivamente. A viscosidade dilatacional do ar é $\lambda_{ar} = 0$ e a da fase sólida é expressa por⁴:

$$7) \quad \lambda_p = \frac{4}{3} \alpha_p^2 \rho_p g_o (1 + e_p) \left(\frac{\theta_p}{\pi} \right)^{1/2}$$

, em que θ_p é a temperatura granular, e_p é o coeficiente de restituição e g_o é a distribuição radial dada pelo modelo Sinclair-Jackson⁵:

$$8) \quad g_o = \frac{1}{1 - \left(\frac{\alpha_p}{\alpha_{max}} \right)^{1/3}}$$

, em que α_p e α_{max} é a fração em volume de partículas e a sua fração máxima no leito estático em repouso. Os momentos de troca entre as fases, decorrentes das forças de arrasto das partículas e do ar, são dados por:

$$9) \quad \mathbf{M}_{ar,p} = K (\mathbf{U}_{ar} - \mathbf{U}_p)$$

$$10) \quad \mathbf{M}_{p,ar} = K (\mathbf{U}_p - \mathbf{U}_{ar})$$

, em que K é dado pelo modelo de Gidaspow⁶.

- 11) Wen e Yu para $\alpha_p < 0,2$
$$K = 150 \frac{\alpha_p(1-\alpha_{ar})\mu_{ar}}{\alpha_{ar}d_p^2} + 1,75 \frac{\rho_{ar}\rho_p|U_p-U_{ar}|}{d_p}$$
- 12) Ergun para $\alpha_p > 0,2$:
$$K = \frac{3}{4} C_D \frac{\alpha_p \alpha_{ar} \rho_{ar} |U_p - U_{ar}|}{d_p} \alpha_{ar}^{-2,65}, \text{ com:}$$
- 13)
$$C_D = \frac{24}{\alpha_{ar} Re_p} \left[1 + 0,15 (\alpha_{ar} Re_p)^{0,687} \right] \quad \text{e} \quad Re_p = \frac{\rho_{ar} d_p |U_p - U_{ar}|}{\mu_{ar}}$$

2.1.1.3 Viscosidade da fase sólida ou das partículas

A viscosidade da fase formada por partículas é formada por três contribuições:

14)
$$\mu_p = \mu_f + \mu_k + \mu_c$$

A viscosidade friccional μ_f é dada⁴:

15)
$$\mu_f = \frac{p_p \text{sen } \phi}{2\sqrt{I_2 D}}$$

A viscosidade cinética μ_k é dada por Gidaspow⁶:

16)
$$\mu_k = \frac{10\rho_p d_p \sqrt{\theta_p \pi}}{96\alpha_p(1+e_p)g_o} \left[1 + \frac{4}{5} g_o \alpha_p (1 + e_p) \right]^2 \alpha_p$$

A viscosidade colisional μ_c é dada por⁴:

17)
$$\mu_c = \frac{4}{5} \alpha_p \rho_p d_p g_o (1 + e_p) \left(\frac{\theta_p}{\pi} \right)^{1/2} \alpha_p$$

A pressão granular p_p é dada por Lun⁷:

18)
$$p_p = \alpha_p \rho_p \theta_p + 2\rho_p (1 + e_p) \alpha_p^2 g_o \theta_p$$

2.1.1.4 Viscosidade do ar em regime turbulento

Duas abordagens são adotadas para o regime turbulento⁸: o RAS (ou *Reynolds Averaged Simulation*), na qual a viscosidade efetiva é expressa pela soma de uma propriedade de estado que é a viscosidade do ar μ_{ar} , e mais a viscosidade turbulenta que é característica do escoamento μ_t , ou seja, $\mu^{ef} = \mu_{ar} + \mu_t$. A viscosidade turbulenta μ_t não pode ser medida diretamente e alguns modelos de turbulência do tipo $k - \varepsilon$, entre outros têm sido propostos para a determinação da viscosidade turbulenta; e o LES (*Large Eddy Simulation*), cujo princípio é filtrar os termos *subgrid* ou de pequenos vórtices, a fim de simplificar os cálculos apenas para os grandes vórtices.

2.1.1.5 Solução da equação de Navier-Stokes

A solução das equações de Navier Stokes é obtida através do algoritmo PIMPLE, desenvolvido para o simulador OPENFOAM^{9,10} que é uma fusão ou uma combinação dos algoritmos PISO (*Pressure Implicit with Splitting of Operator*) e SIMPLE (*Semi Implicit Method for Pressure Linked Equations*). O PIMPLE utiliza os números de correção do PISO em cada passo no tempo durante a simulação, o que auxilia na correção de pressão e na manutenção da coerência das equações conservativas com o tempo. Ele é um processo mais demorado que o SIMPLE, mas produz resultados confiáveis em regime transitório⁴. Por outro lado, o PIMPLE utiliza ainda o fator de relaxação do SIMPLE para a correção da pressão, o que auxilia a manter a compatibilidade das equações conservativas, além de produzir resultados mais rápidos, com um comportamento suave e convergente até atingir o regime permanente⁴. A adoção do fator de relaxação igual a um no programa reduz o algoritmo PIMPLE ao PISO, e a adoção do número de correções igual a um reduz o PIMPLE ao algoritmo SIMPLE.

3. Resultados

A Fig. 2 mostra o leito fluido cônico e as suas principais dimensões em mm. O leito de partículas ocupa apenas a parte cônica do equipamento e o ar é injetado na câmara localizada no fundo do cone, onde também é feita a medição da pressão do ar. A vazão do ar é ajustada pela válvula do rotâmetro. O diâmetro das partículas é $d_p = 500 \mu\text{m}$ e a densidade $\rho_p = 1,95 \text{ g/cm}^3$. As alturas de leito estático H estão apresentadas na Tab. 1.

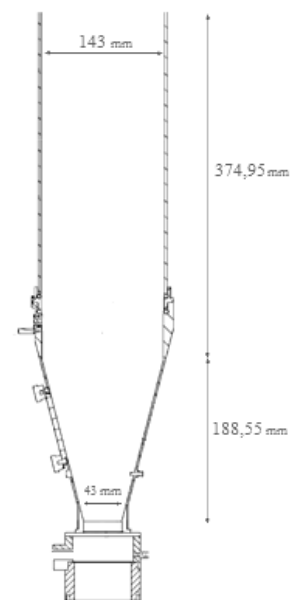


Fig. 2 – Dimensões do leito fluido cônico

Tab. 1 – Altura do leito em função da massa de partículas de perclorato de amônio

Massa (kg)	0,7	0,8	0,9	1,0	1,1
H (m)	0,1226	0,1297	0,1368	0,1439	0,1510

3.1 Simulação do comportamento de ΔP_l com U_{ar}

A Fig. 3 mostra a distribuição de células na malha de simulação, com o refinamento situado na região central onde a ocorrência de processos fenomenológicos é mais intensa. A Fig. 4 mostra o comportamento da curva da perda de carga no leito ΔP em função da velocidade do ar U_{ar} . As perdas de carga são crescentes no início da curva à medida que o leito se expande sem a formação de jorro.

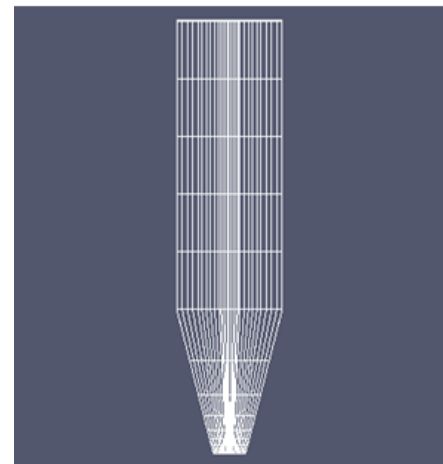


Fig. 3 – Distribuição de células na malha de simulação

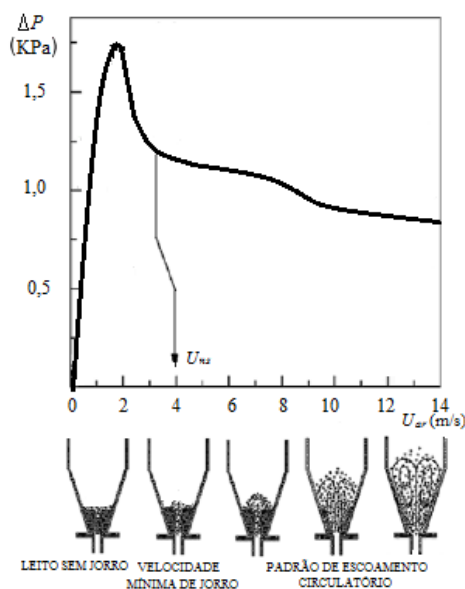


Fig. 4 – Estágios de formação de jorro em leito cônico

Após atingir

um pico em ΔP , a perda de carga cai abruptamente e atinge a velocidade mínima de jorro U_{ms} . Nesse ponto há o início da formação de jorro na superfície do leito. A partir desse ponto, não há grandes quedas ou elevações da perda de carga, e as partículas entram em um movimento circulatório cada vez mais intenso com a expansão progressiva do leito. A Fig. 5 mostra a simulação na região de leito sem jorro. Nota-se grande concentração de partículas no fundo do cone (em vermelho).

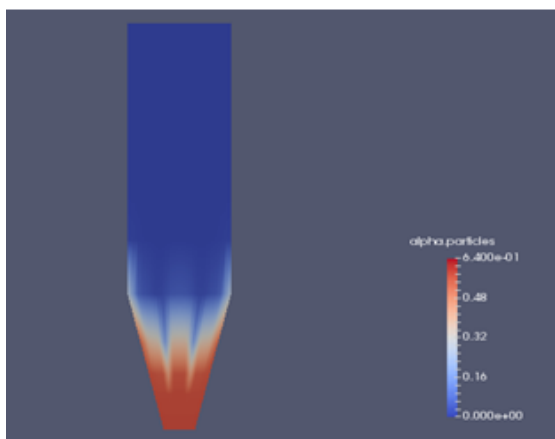


Fig. 5 – Fração de partículas em leito cônico sem jorro para baixas velocidades do ar

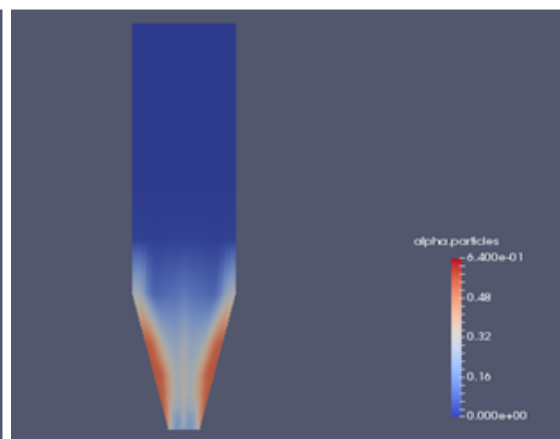


Fig. 6 – Simulação do leito cônico com jorro para altas velocidades do ar

Por outro lado, a Fig. 6 mostra que as partículas se concentram (em vermelho) próximas da parede para velocidades maiores do que U_{ms} , deixando uma passagem na região central no

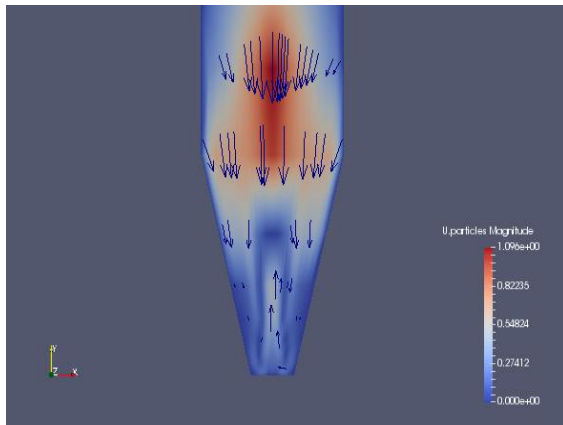


Fig. 7 – Simulação do movimento circulatorio das partículas em leito cônico com jorro

leito para a formação do jorro. Nessas condições ocorre um movimento circulatorio das partículas no leito, como mostra a Fig. 7. As partículas se movem para cima na região central e são projetadas acima da superfície do leito pelo jorro. As partículas descem então por gravidade em direção às paredes onde se concentram e continuam a descer com menor velocidade até atingir o fundo do leito e, novamente, seguir a trajetória para cima.

3.1.1 Determinação da perda de carga por simulação

A perda de carga foi obtida a partir da média das pressões das células no fundo do reservatório cônico, conforme ilustra a Fig. 8. A curva da pressão média em função do tempo está ilustrada na Fig. 9.

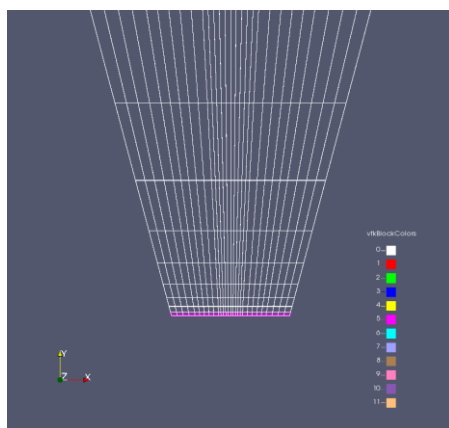


Fig. 8 – Localização das células utilizadas para a leitura da pressão média

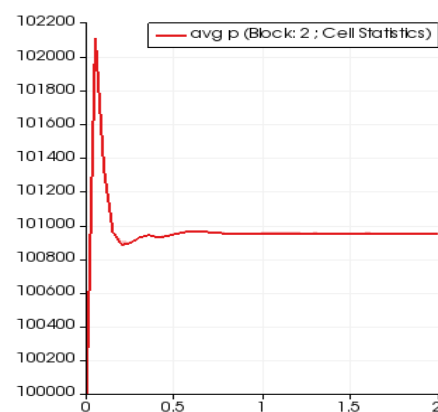


Fig. 9 – Variação da pressão média no fundo do cone com o tempo.

A pressão média foi lida na região estacionária ou em regime permanente, e a perda de carga foi obtida por:

19)
$$\Delta P = P - P_{atm}$$

As Figuras 10 a 14 comparam os dados experimentais com os resultados obtidos por simulação para as cinco quantidades de perclorato de amônio ensaiadas.

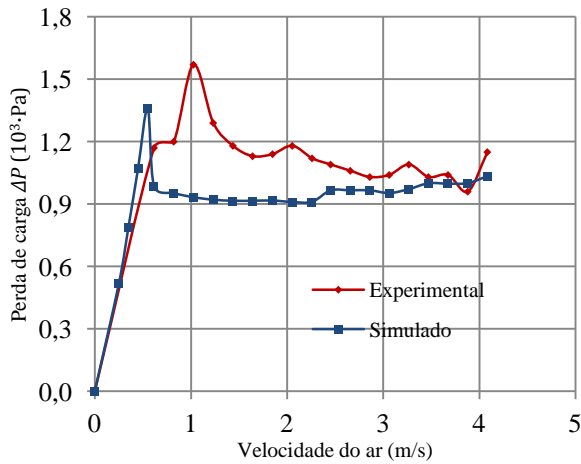


Fig. 10 – Comparação da perda de carga com o tempo para 0,7 kg de leito.

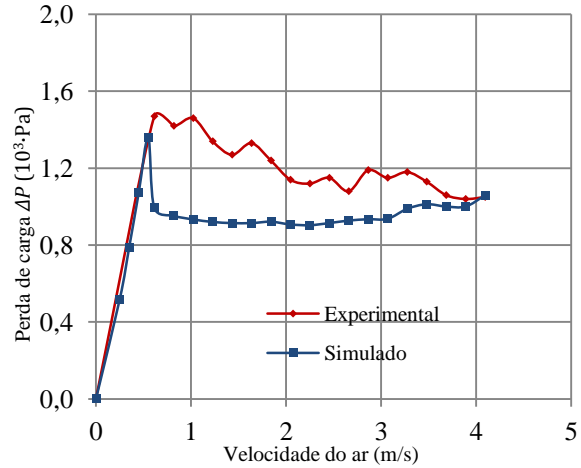


Fig. 11 – Comparação da perda de carga com o tempo para 0,8 kg de leito.

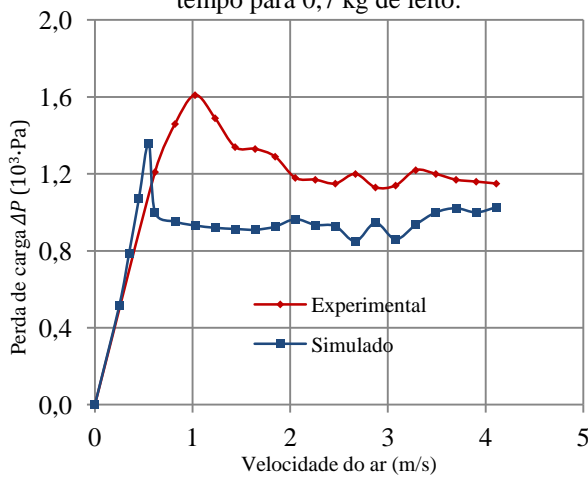


Fig. 12 – Comparação da perda de carga com o tempo para 0,9 kg de leito.

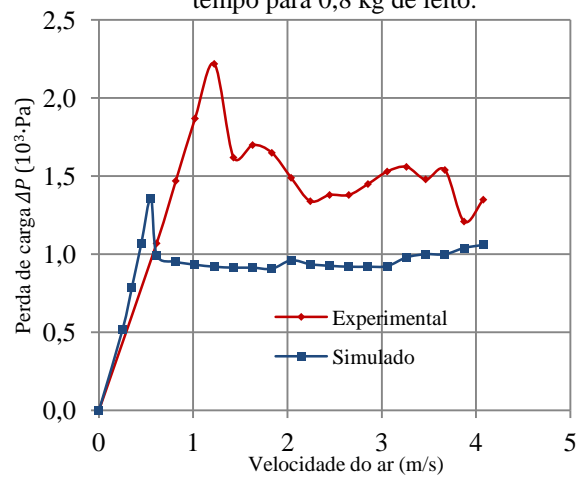


Fig. 13 – Comparação da perda de carga com o tempo para 1,0 kg de leito.

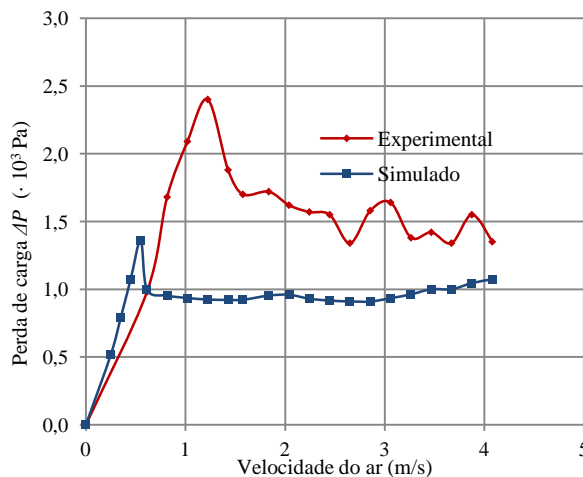


Fig. 14 – Comparação da perda de carga com o tempo para 1,1 kg de leito.

As curvas obtidas em todos os casos mostram coerência com os fenômenos envolvidos nos leitos. Porém, as curvas obtidas por simulação apresentam valores inferiores tanto de perda de carga ΔP quanto de velocidade mínima de jorro U_{ms} quando comparadas com as curvas experimentais. Essa diferença pode ser

explicada pelo efeito de histerese¹¹, uma vez que os dados experimentais foram obtidos para velocidades crescentes de ar U_{ar} . Os dados obtidos para valores decrescentes produzem curvas com valores mais próximos dos obtidos por simulação. Propõe-se ainda a aplicação da Eq. 20 para a correlação dos dados previamente³ obtidos experimentalmente, a qual constitui uma modificação (em azul) da consagrada correlação de Mathur e Gishler¹².

$$20) \quad U_{ms} = 2,3 \left(\frac{H}{D_c} \right)^{0,353} \frac{d_p}{D_c} \left(\frac{D_i}{D_c} \right)^{1/3} \left(2gH \frac{\rho_p - \rho_{ar}}{\rho_{ar}} \right)^{1/2}$$

3.2 Testes iniciais de microencapsulamento por *spray Wurst*

O padrão circulatório dos leitos cônicos com jorro possibilitou o desenvolvimento de um dos métodos mais promissores para microencapsulamento de partículas, o *spray Wurst*. Um tubo

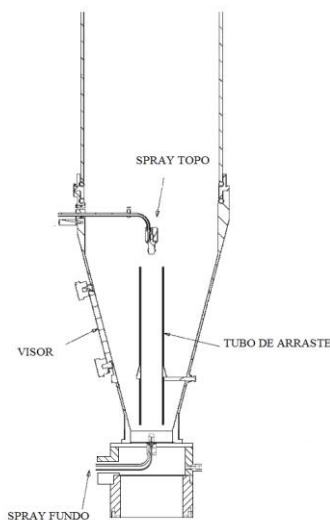


Fig. 15 – Leito fluido cônico com *spray-Wurst*

de arraste foi colocado no centro do leito cônico para tornar o padrão circulatório mais regular, conforme mostra a Fig. 15. A aplicação da resina de proteção foi feita por meio dos *sprays* de topo e/ou de fundo. Foram feitos alguns testes de aplicação de poliacrilato nas partículas de perclorato de amônio. A tonalidade verde mais escura indica maior quantidade de resina aplicada, Fig. 16 inferior. A



amostra na parte superior corresponde à amostra de controle sem aplicação de resina.

4 - Conclusões

A simulação por CFD com *OpenFoam* é capaz de simular o comportamento do leito fluidizado cônico para diversas velocidades do ar. Porém, as curvas obtidas mostram resultados menores do que a dos dados experimentais obtidos previamente. Isso pode ser atribuído ao efeito de histerese da curva experimental, pois dados experimentais obtidos com velocidade do ar decrescentes apresentam valores menores e mais próximos dos obtidos por simulação. O microencapsulamento também se mostrou muito promissor, o que demanda ainda mais estudos do comportamento do leito cônico com *spray-Wurst*.

5 – Divulgação dos resultados

Os resultados obtidos farão parte de artigos que serão submetidos à divulgação em congressos e revistas científicas nacionais ou estrangeiras.

Referências

- [1] Gupta, C.K., Sathiyamoorthy, D., *Fluid Bed Technology in Materials Processing*, CRC Press, New York, (1999).
- [2] Epstein, N, Grace, J.R, *Spouted and Spout-Fluid Beds: Fundamentals and Applications*, Cambridge University Press, London, (2011).
- [3] Pereira, G.A.O, Nagamachi M. Y, *Pesquisa e Desenvolvimento do Método de Spout-Fluid Bed com Spray Wurst para Microencapsulamento de componentes de propelentes sólidos*, relatório parcial PIBIC, São José dos Campos, (2016).
- [4] ANSYS Inc., *ANSYS Fluent Theory Guide*, Canonsburg, (2013).
- [5] Sinclair, J.L., Jackson, R., *Gas-Particle Flow in a Vertical Pipe with Particle-Particle Interactions*. AIChE Journal, 35, 1473, (1989).
- [6] Gidaspow, D., *Multiphase Flow and Fluidization: Continuum and Kinetic Theory descriptions*, Academic Press, (1994).
- [7] Lun, C.K.K., Savage, S.B., Jeffrey, D.J., Chepuriniy, N., *Kinetic Theories for Granular Flow: Inelastic Particles in Couette Flow and Slightly Inelastic Particles in a General Flow Fields*, J. Fluid Mech., 140, 223-256, (1984).
- [8] Chung, T. J., *Computational Fluid Dynamics*, Cambridge: Cambridge University Press. (2002).
- [9] Greenshields, C. J., *The Open Source CFD Toolbox User Guide*. Paris: ESI group, (2015).
- [10] Greenshields, C. J., *The Open Source CFD Toolbox Programmer's Guide*. Paris: ESI group, (2015).
- [11] Kalbasi, M., Bahramian, A.R., Reza K.J., *Prediction of Minimum Spout Velocity and Moisture Distribution of Ammonium Perchlorate in a Spouted Bed Dryer*, Iran. J. Chem. Eng., 26, 1, 113-130, (2007).
- [12] Mathur, K.B, Gishler, P.E, *A Technique for Contacting Gases with Coarse Solid Particles*, AIChE Journal, 1(2), 157-164, (1995).