

ROBERTO GUARDANI

CARACTERIZAÇÃO FLUIDODINÂMICA E MODELAGEM MATEMÁTICA DE
REATOR DE LEITO FLUIDIZADO CIRCULANTE

TESE APRESENTADA À ESCOLA
POLITÉCNICA DA USP PARA A
OBTENÇÃO DO TÍTULO DE
DOUTOR EM ENGENHARIA.

SÃO PAULO

1989

87-041

ROBERTO GUARDANI

Eng. Químico, Escola Politécnica da USP, 1976

CARACTERIZAÇÃO FLUIDODINÂMICA E MODELAGEM MATEMÁTICA DE
REATOR DE LEITO FLUIDIZADO CIRCULANTE

Tese apresentada à Escola
Politécnica da USP para a
obtenção do título de
Doutor em Engenharia.

Orientador: Prof.Dr. Cláudio A. Oller do Nascimento
Depto. Eng. Química

SÃO PAULO

1989

Às minhas meninas,

Lúcia e

Mariana

AGRADECIMENTOS

Este trabalho somente pode ser realizado através do apoio direto e indireto de uma série de pessoas e entidades, as quais são a seguir mencionadas. A elas são dirigidos os mais sinceros agradecimentos.

- IPT - Instituto de Pesquisas Tecnológicas, especificamente a diretoria do CEFER, Centro de Estudos de Fertilizantes, na pessoa do Dr. Marco Giulietti, pelo apoio, incentivo e tolerância demonstrados durante toda a execução do trabalho.
- Engs. Marcos A.C. Bruno e Dêcio Zylbersztajn, pelo apoio decidido e incentivo constante.
- DAAD - Serviço Alemão de Intercâmbio Acadêmico, pela concessão de bolsa de doutoramento, modalidade "sandwich", na República Federal da Alemanha e pela pontualidade demonstrada.
- CAPES, Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior do Ministério da Educação, pelo apoio financeiro.
- CNPq, Conselho Nacional para o Desenvolvimento Científico e Tecnológico, pelo apoio financeiro.
- Prof. Karl Schügerl, diretor do "Institut für Technische Chemie" da Universidade de Hannover, República Federal da Alemanha, pelo apoio prestado durante a realização do trabalho experimental.
- Dr. Jiří Drahoš, do "Institute of Chemical Process Fundamentals", Tchecoslováquia, pela orientação dada ao trabalho experimental, tanto como pesquisador associado na Universidade de Hannover, quanto como professor visitante na Escola Politécnica da USP.

- Técnicos do CEFER/IPT, pelo apoio e compreensão.
- Jorge Antonio de Lima, da DITRAM/IPT, pelos desenhos elaborados para o trabalho.
- Laura Ribeiro da Silva, pela paciência e empenho na datilografia do presente trabalho.
- Finalmente, ao Prof. Claudio A. Oller do Nascimento, pela valiosa orientação prestada ao presente trabalho.

RESUMO

A aplicação industrial de sistemas de leitos fluidizados do tipo circulante, ou de arraste, em processos que envolvem o contato entre partículas sólidos e gás tem tido interesse crescente em todo o mundo. No entanto, o desenvolvimento prático dessa tecnologia tem estado muito à frente do desenvolvimento teórico fundamental, necessário para o projeto de equipamentos, controle de processo e mudança na escala de operação.

O presente trabalho procura contribuir para o desenvolvimento fundamental de reatores de leito fluidizado circulante, através de um estudo experimental de caracterização de tais sistemas, e do desenvolvimento de um modelo matemático de um reator desse tipo, aplicado a uma reação química modelo.

O estudo experimental trata da identificação dos regimes de escoamento característicos do sistema estudado, propondo critérios para distinção entre tais regimes.

A reação química adotada como modelo é a decomposição de um minério de fosfato de alumínio existente no Brasil, através da calcinação a temperaturas de até 600°C , para a produção de um fertilizante fosfatado. Testes contínuos em escala de bancada com tal minério evidenciam as vantagens do leito fluidizado circulante em comparação com leito fluidizado convencional.

O modelo matemático de um reator de leito fluidizado circulante, aplicado ao processamento de minério de fosfato de alumínio, apresenta boa concordância com dados experimentais. O estudo de sensibilidade paramétrica, para o sistema considerado, evidencia a gran

de influência das condições do escoamento gás-sólidos sobre o desempenho de reatores do tipo aqui considerado.

ABSTRACT

There has been a growing interest world wide in the application of circulating (fast) fluidized bed systems to industrial processes involving contact between solid particles and gas. However, practical development of this technology is at present far more advanced than fundamental knowledge, which is necessary for equipment design, process control and scale-up.

This work intends to contribute to the fundamental development of circulating fluidized bed reactors by an experimental characterization, together with a mathematical modeling of such systems, applied to an adopted chemical reaction.

The experimental study involves the identification of flow regime transitions and formulation of criteria for distinction between flow regimes in circulating fluidized beds.

The adopted chemical reaction is the thermal decomposition of a Brazilian aluminum phosphate ore at temperatures up to 600°C , for production of a phosphate fertilizer. Continuous bench scale tests with this reaction show the advantages of circulating fluidized beds as compared with conventional ones.

The mathematical model of the reactor shows good agreement with experimental data and a parametric sensitivity study clearly emphasizes the big influence of gas-solids flow regime on the performance of circulating fluidized beds.

ÍNDICE

	Pág.
1. INTRODUÇÃO	1
2. REVISÃO DO ESTADO ATUAL DA TÉCNICA	4
2.1. Introdução	4
2.2. Caracterização fluidodinâmica do leito fluidiza- do circulante	6
2.2.1. Limites de existência do leito fluidizado circulante	14
2.2.1.1. Colapso de um leito fluidizado circulante ("choking")	14
2.2.1.2. Transição entre escoamento em fa- se densa e em fase diluída	21
2.2.2. Correlações para o regime de leito fluidi- zado circulante	22
2.2.2.1. Modelo de Nakamura e Capes (1973) ..	24
2.2.2.2. Modelo de Arastoopour e Gidaspow (1979)	25
2.2.2.3. Modelo de Kwauk e colaboradores . .	26
2.2.2.4. Modelo de Rhodes e Geldart (1987) . .	30
2.2.3. Comentários sobre a aplicabilidade das correlações desenvolvidas	32
2.3. Transporte de calor e massa em leitos fluidiza- dos circulantes	34
2.3.1. Transporte de calor	34

	Pág.
2.3.1.1. Transporte entre suspensão e parede	34
2.3.1.2. Transporte entre partícula e fluido	41
2.3.2. Transporte de massa	42
2.4. Modelagem matemática de reatores gás-sólidos operando em regime de fluidização rápida	42
3. MATERIAIS E MÉTODOS	46
3.1. Caracterização de transições no regime de escoamento	46
3.1.1. Equipamento	46
3.1.2. Sólido utilizado	48
3.1.3. Condições experimentais	51
3.1.4. Tratamento dos dados de pressão diferencial	51
3.1.4.1. Análise espectral	51
3.1.4.2. Ajuste dos dados a modelos autorregressivos	53
3.2. Estudos experimentais com a reação modelo: testes de calcinação de minério de fosfato de alumínio em reatores de leito fluidizado, escala de bancada	56
3.2.1. Matéria-prima	56
3.2.2. Equipamento e procedimento experimental	59
3.2.2.1. Caracterização das transformações térmicas	59

3.2.2.2. Determinação da cinética aparente, calor específico e entalpia de reação (amostra de Jandiá)	61
3.2.2.3. Testes de calcinação em reatores de leito fluidizado convencional e circulante	62
3.2.2.4. Procedimento experimental	64
4. RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO	67
4.1. Caracterização das transições no regime de escoamento	67
4.1.1. Resultados da determinação da velocidade de colapso, u_{gc}	76
4.1.2. Resultados da determinação da transição entre escoamento em fase diluída e escoamento em fase densa	79
4.2. Experimentos com a reação modelo	83
4.2.1. Transformações térmicas e solubilidade do minério de fosfato de alumínio	83
4.2.2. Estudo da cinética da decomposição do minério de fosfato de alumínio de Jandiá(PA)	87
4.2.3. Determinação do calor específico e da entalpia de decomposição	91
4.2.4. Testes contínuos de calcinação em reatores de leito fluidizado	93
5. MODELO MATEMÁTICO DE UM REATOR DE LEITO FLUIDIZADO CIRCULANTE	102
5.1. Modelo fluidodinâmico	105
5.2. Expressões do balanço material	111

	Pág.
5.2.1. Balanço global	111
5.2.2. Balanço para cada componente, i , no sólido	112
5.2.3. Balanço para cada componente, j , no gás	112
5.2.4. Expressões do balanço energético	113
5.3. Propriedades físicas do gás e do sólido	115
5.4. Algoritmo de resolução do modelo matemático	116
6. RESULTADOS DA SIMULAÇÃO E DISCUSSÃO	121
6.1. Teste do modelo fluidodinâmico	121
6.2. Comparação com resultados dos testes contínuos de calcinação em laboratório	124
6.3. Resultados de simulações	126
6.3.1. Estudo do efeito da geometria do tubo de escoamento e das variáveis operacionais sobre o perfil axial de ϵ	126
6.3.2. Resultados de simulações para o reator de leito fluidizado circulante	133
7. CONCLUSÕES	148
7.1. Caracterização fluidodinâmica	148
7.2. Reação modelo	149
7.3. Modelagem matemática	149
8. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	151

LISTA DE TABELAS

	Pág.
TABELA 2.1 - Sumário das correlações publicadas para estimativa de h_{sw}	36
TABELA 3.1 - Características físicas do sólido utilizado nos estudos	50
TABELA 3.2 - Composição química (componentes principais) das amostras testadas	60
TABELA 4.1 - Comparação entre resultados experimentais e previstos por correlações publicadas, para a velocidade de colapso	78
TABELA 4.2 - Valores do coeficiente a_1 para transição entre escoamento em fase diluída e em fase gasosa	82
TABELA 4.3 - Resumo dos critérios propostos para identificação dos regimes de escoamento, em sistemas de contato gás-sólido, com fluxo ascendente de gás	84
TABELA 4.4 - Fases cristalinas que sofrem transformações térmicas no aquecimento de amostras de fosfato de alumínio	86
TABELA 4.5 - Sumário dos resultados dos testes contínuos de calcinação em reator de leito fluidizado clássico	96

TABELA 4.6 - Sumário dos resultados dos testes contínuos de calcinação no reator de leito fluidizado circulante 97

TABELA 6.1 - Comparação entre os resultados de concentração de sólidos celulares pelo modelo e dados experimentais 123

LISTA DE FIGURAS

	Pág.
FIGURA 2.1 - Sistemas de contato para reatores gás-sólidos operando com material em pó	5
FIGURA 2.2 - Ilustração da perda de carga total em função da velocidade do gás, para diferentes regimes de escoamento gás-sólidos	7
FIGURA 2.3 - Mapa de transições no regime de escoamento gás-sólidos para material em pó	11
FIGURA 2.4 - Diagrama de Reh (1961) para sistemas de contato gás-sólidos	13
FIGURA 2.5 - Esquema do escoamento em duas regiões (central e anular), conforme formulado por Nakamura e Capes (1973)	17
FIGURA 2.6 - Curvas de distribuição de ϵ ao longo de z , conforme apresentada por Li Youchou e Kwauk (1980)	27
FIGURA 3.1 - Esquema do equipamento construído para os experimentos voltados ao estudo fluidodinâmico do leito fluidizado circulante	47
FIGURA 3.2 - Esquema do sistema de processamento de sinais de oscilação de pressão diferencial no leito fluidizado circulante	49
FIGURA 3.3 - Localização das ocorrências de minérios contendo fosfato de alumínio no Brasil	58

FIGURA 3.4 - Esquema do reator de leito fluidizado convencional utilizado nos testes contínuos em laboratório	63
FIGURA 3.5 - Esquema do reator de leito fluidizado circulante utilizado nos testes contínuos em laboratório	65
FIGURA 4.1 - Série temporal e espectro de potência das flutuações de pressão, para $W_p = 0$ e $u_g = 2,04$ m/s	70
FIGURA 4.2 - Série temporal e espectro de potência das flutuações de pressão, para $W_p = 0,21$ kg/m ² s, $u_g = 2,04$ m/s e $d_p = 200\mu\text{m}$	71
FIGURA 4.3 - Série temporal e espectro de potência das flutuações de pressão, para $W_p = 1,22$ kg/m ² s, $u_g = 1,88$ m/s e $d_p = 200\mu\text{m}$	72
FIGURA 4.4 - Série temporal e espectro de potência das flutuações de pressão, para $W_p = 2,0$ kg/m ² s, $u_g = 1,52$ m/s e $d_p = 200\mu\text{m}$	74
FIGURA 4.5 - Queda de pressão local, em função da velocidade superficial do gás, para duas regiões do tubo de escoamento	75
FIGURA 4.6 - Curvas de dp/dz em função de u_g , referentes à transição de colapso	77
FIGURA 4.7 - Exemplos de espectros de potência das flutuações de pressão, para leito borbulhante	80

FIGURA 4.8 - Resultados dos testes de calcinação do minério de fosfato de alumínio em forno estacionário	85
FIGURA 4.9A - Curvas de X_A em função do tempo, obtidos em termobalança	89
FIGURA 4.9B - Curvas de X_A em função do tempo, obtidas em termobalança	90
FIGURA 4.10 - Curvas de dH/dt obtidas em calorímetro diferencial de varredura (DSC)	92
FIGURA 4.11 - Comparação entre os resultados experimentais dos testes contínuos de calcinação de fosfato de alumínio e as curvas "ideais", para o reator de leito fluidizado circulante . . .	99
FIGURA 4.12 - Comparação entre os resultados experimentais dos testes contínuos de calcinação de fosfato de alumínio e as curvas "ideais", para o reator de leito fluidizado convencional	100
FIGURA 4.13 - Comparação entre os resultados experimentais dos testes de calcinação de fosfato de alumínio e a curva "ideal", para o forno estacionário	101
FIGURA 5.1 - Algoritmo de resolução do modelo matemático. .	118
FIGURA 6.1 - Comparação do modelo com dados experimentais publicados por Hartge et alii (1986)	125

FIGURA 6.2 - Comparação do modelo com os resultados dos testes contínuos de calcinação em escala de bancada	127
FIGURA 6.3 - Efeito da altura do tubo de escoamento sobre o perfil axial de ϵ , para dois valores de L e D	129
FIGURA 6.4 - Efeito do diâmetro das partículas sobre o perfil axial de ϵ	130
FIGURA 6.5 - Efeito da velocidade do gás sobre o perfil axial de ϵ	131
FIGURA 6.6 - Efeito da vazão de sólidos sobre o perfil axial de ϵ	132
FIGURA 6.7A - Efeito da densidade da partícula sobre o perfil axial de ϵ	134
FIGURA 6.7B - Efeito da densidade da partícula sobre o perfil axial de ϵ	135
FIGURA 6.8 - Efeito de W_F sobre X_i , quando o reciclo é igual a zero	136
FIGURA 6.9 - Curvas de distribuição axial de ϵ , para diferentes valores de W_p	138
FIGURA 6.10 - Efeito da taxa de reciclo sobre X_i e dois valores de W_F	139
FIGURA 6.11 - Efeito do comprimento do reator sobre X_i , para dois valores de D	141

FIGURA 6.12 -Efeito da temperatura na entrada do reator sobre X_i , para dois valores da espessura da parede do tubo de escoamento	142
FIGURA 6.13 -Efeito da velocidade do gás sobre X_i , para dois valores do diâmetro das partículas	143
FIGURA 6.14 -Perfil axial de ϵ , para duas taxas de reciclo externo, W_F constante	145
FIGURA 6.15 -Perfil axial de X_i , para dois valores da taxa de reciclo externo; mesmas condições que a Fig. 6.14	146
FIGURA 6.16 -Perfil axial de Y_j , para dois valores da taxa de reciclo externo; mesmas condições que a Fig. 6.14	147

NOMENCLATURA

- A - coeficiente na Eq. (2.28)
- a - parâmetro no modelo fluidodinâmico, Eq. (2.58) (m^{-1})
- a - coeficiente no modelo auto-regressivo (Capítulo 3)
- a_1 - coeficiente no modelo auto-regressivo de primeira ordem
- Ar - número de Arquimedes, $\frac{gd^3 p \rho_g}{\mu^2} (\rho_p - \rho_g)$
- B - coeficiente na Eq. (2.29)
- B - constante nas correlações de Martin (1980, 1984), Eq. (2.80)
- b - coeficiente no modelo auto-regressivo (Capítulo 3)
- C - coeficiente na Eq. (2.30)
- c - calor específico a pressão constante ($j.kg^{-1}.K^{-1}$)
- C_D - coeficiente de arraste
- D - diâmetro do tubo de escoamento (m)
- d_p - diâmetro da partícula (m)
- E - energia de ativação (Capítulo 5) ($j.mol^{-1}$)
- E - densidade de fluxo ascendente de sólidos (Capítulo 2) ($kg.m^{-2}.s^{-1}$)
- E_o - densidade de fluxo ascendente de sólidos na superfície de um leito turbulento ($kg.m^{-2}.s^{-1}$)
- E_∞ - densidade de fluxo ascendente de sólidos, no escoamento em fase diluída ($kg.m^{-2}.s^{-1}$)
- e - emissividade
- f - frequência (s^{-1})
- f_a - fração volumétrica de aglomerados de partículas no tubo de escoamento
- f_p - fator de fricção para as partículas
- f_g - fator de fricção para o gás
- F_s - força de arraste das partículas, por unidade de volume de sólido ($kg.m^{-2}.s^{-2}$)

- F_W - queda de pressão devida ao atrito suspensão-parede no tubo de escoamento ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-2}$)
- F_{45} - fração mássica de partículas com d_p menor que $45\mu\text{m}$
- g - aceleração da gravidade ($9,8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-2}$)
- G_a - número de Galileu, $\frac{gd^3}{\mu^2} \frac{\rho_p \rho_g}{(\rho_p - \rho_g)}$
- G_x - função densidade espectral de potência ($\text{V}^2 \cdot \text{s}$)
- \tilde{G}_x - estimativa da função densidade espectral de potência ($\text{V}^2 \cdot \text{s}$)
- H - parte da Eq. (2.41), definido na Eq. (2.42)
- h - coeficiente de transferência de calor ($\text{j} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$)
- k - condutividade térmica ($\text{j} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)
- K_e - condutividade térmica da parede do tubo de escoamento ($\text{j} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)
- KM - constante de Martin, Eq. (2.77)
- k_m - coeficiente de transferência de massa ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)
- Kn - número de Knudsen, Eq. (2.80)
- k_R - constante de velocidade de reação química (s^{-1})
- L - comprimento do tubo de escoamento (m)
- L^* - altura de um leito turbulento, para $E = W_p$, no modelo de Rhodes e Geldart (1987) (m)
- M - adimensional na Eq. (2.8)
- m - massa (kg)
- n - ordem de reação química
- n - adimensional na Eq. (2.9)
- n - expoente de Richardson e Zaki (1954), usado no modelo de Nakamura e Capes (1973), Eqs. (2.41) a (2.44)
- n - número de segmentos no tempo de amostragem (Capítulo 3)
- Nu - número de Nusselt
- p - pressão ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-2}$)
- Pr - número de Prandtl, $\frac{c_g \mu}{k_g}$
- $QCGW$ - densidade de fluxo de calor por convecção para o gás, da parede interna do tubo de escoamento ($\text{j} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$)

- QCSW - densidade de fluxo de calor por convecção para o sólido, da parede interna do tubo de escoamento ($\text{j.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$)
- QOW - densidade de fluxo de calor do ambiente para a parede externa do tubo de escoamento ($\text{j.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$)
- QQ - densidade de fluxo de calor absorvido pelo sistema, devido a reação química, por unidade de comprimento do reator ($\text{j.s}^{-1}.\text{m}^{-3}$)
- QRSW - densidade de fluxo de calor por radiação para a suspensão gás-sólidos, da parede interna do tubo de escoamento ($\text{j.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$)
- R - constante universal dos gases ($8,314 \text{ jmol}^{-1}.\text{K}^{-1}$)
- r - raio do tubo de escoamento (m)
- Re - número de Reynolds
- re - espessura da parede do tubo de escoamento (m)
- r_i, r_j - taxa de geração do componente i ou j no sistema (s^{-1})
- R_x - função de auto-correlação (Capítulo 3) (V^2)
- S - área da seção transversal do tubo de escoamento (m^2)
- Sc - número de Schmidt
- Sh - número de Sherwood
- T - temperatura (K)
- T - tempo total de amostragem (Capítulos 3 e 5) (s)
- t - tempo (s)
- U_{amb} - velocidade do ar no ambiente externo do reator (ms^{-1})
- u_f - velocidade intersticial do gás, u_g/ϵ (ms^{-1})
- u_g - velocidade superficial do gás (ms^{-1})
- u_p - velocidade da partícula, $\frac{W_p}{(1-\epsilon)\rho_p}$ (ms^{-1})
- u_s - velocidade superficial da partícula, W_p/ρ_p (ms^{-1})
- u_t - velocidade terminal da partícula (ms^{-1})
- w - processo de ruído branco (Capítulo 3) (V)
- X - fração mássica no sólido
- x - fração mássica numa distribuição granulométrica

- $X(t)$ - valor de um sinal de processo no instante de tempo t (Capítulo 3) (V)
 X_t - valor de um sinal de processo no instante de tempo t (Capítulo 3) (V)
 X_A - fração convertida do componente A
 Y - fração mássica no gás
 Y - coeficiente relacionado ao fluxo de bolhas, na Eq. (5.17)
 Z - adimensional para o convecção da partícula, Eq. (2.81)
 z - altura no tubo de escoamento (m)
 z_i - ponto de inflexão da curva $\varepsilon = f(z)$, Eq. (2.51) (m)
 z_o - coeficiente na Eq. (2.51) (m)

SÍMBOLOS GREGOS:

- α - fração do raio do tubo de escoamento ocupada pela região central, no modelo de duas regiões
 γ - coeficiente de acomodação, Eq. (2.80)
 ε - fração volumétrica do tubo de escoamento ocupada pelo gás, ou fração de vazios
 ε^* - fração de vazios no escoamento em fase diluída
 ε_a - fração de vazios na fase densa
 λ - coeficiente na Eq. (2.42), definida na Eq. (2.43)
 λ - coeficiente de atrito para o sólido, no modelo de Wen e Chen (1982)
 μ - viscosidade dinâmica do gás ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$)
 ρ - densidade (kg.m^{-3})
 σ - constante de Stefan-Boltzmann ($5,669 \times 10^{-8} \text{js}^{-1}\text{m}^{-2}\text{K}^{-4}$)
 σ - rugosidade da parede no tubo de escoamento (m)
 τ - intervalo de tempo entre sinais do processo (Capítulo 3) (s)
 τ_s - tensão de cisalhamento partículas-parede do tubo ($\text{kgs}^{-1}\text{m}^{-1}$)
 ϕ - esfericidade
 ψ - parâmetro na Eq. (2.46) (m^2s^{-1})
 ω - parâmetro na Eq. (2.47) (m.s^{-1})

SUBSCRITOS (referentes a)

- a - ascendente
- a - região anular, nas Eqs. (2.31) a (2.33)
- amb - ambiente externo ao reator
- b - bolha
- bs - ascensão das bolhas no leito turbulento
- c - colapso ("choking")
- cl - aglomerados de partículas ("clusters")
- d - descendente
- ds - fase densa
- e - emulsão
- F - alimentação do reator
- f - final
- fg - atrito do gás
- fs - atrito das partículas sólidas
- g - gás
- gc - convecção do gás
- hs - densidade da suspensão sólidos-gás
- i - componente i
- in - inicial
- inf - escoamento em fase diluída uniforme
- j - componente j
- mf - condições de mínima fluidização
- ow - parede externa do tubo de escoamento
- p - partícula
- p - ordem do modelo auto-regressivo (Capítulo 3)
- pc - convecção pelas partículas
- prod - produto
- q - ordem do modelo auto-regressivo (Capítulo 3)

- R - reciclo externo
- rad - radiação
- ref - valor de referência
- s - suspensão gás-sólidos
- sw - suspensão e parede interna do tubo de escoamento
- t - terminal
- w - parede interna do tubo de escoamento
- o - fase densa
- 1 - região central de escoamento
- 2 - região anular de escoamento

1. INTRODUÇÃO

Nos processos industriais que envolvem contato entre gás e sólidos tem havido crescente interesse na aplicação de sistemas de leito fluidizado circulante, substituindo leitos fluidizados do tipo convencional (borbulhante). Tal interesse é certamente consequência de uma série de vantagens apresentadas por tais sistemas, observadas tanto em experimentos em escala de laboratório (Yerushalmi et alii, 1976), quanto através da experiência em plantas piloto e em unidades industriais (Broedermann, 1981; Reh, 1984; Reh, 1986). Resumidamente, essas vantagens podem assim ser relacionadas:

- a) altas capacidades de processamento de sólidos e gases em relação ao volume do equipamento;
- b) contato ótimo entre gás e sólidos, devido à operação do leito em condições de máxima velocidade relativa entre ambos, o que resulta em altas taxas de transferência de calor e de massa;
- c) possibilidade de operação com material particulado com propriedades coesivas, difíceis de processar em leitos fluidizados convencionais.

Entretanto, o desenvolvimento de sistemas industriais de leito fluidizado circulante tem-se baseado essencialmente em critérios empíricos de projeto, uma vez que a aplicação prática dessa tecnologia tem estado muito à frente, em relação ao desenvolvimento teórico fundamental, necessário tanto para o controle de processos quanto para a definição de critérios de projeto e de mudança de escala.

Essa defasagem é, talvez, devida às dificuldades para a realização de experimentos que gerem informações representativas do fenômeno, necessárias para o desenvolvimento de modelos teóricos capazes de descrevê-lo. Até o presente, não têm surgido correlações que tenham aceitação geral, válidas em diferentes condições, com parâmetros confiáveis. Ao contrário, há muita insegurança com relação à aplicabilidade das correlações publicadas, as quais só mais recentemente começam a ser melhor estudadas com a utilização de técnicas adequadas de medição em experimentos com leitos fluidizados circulantes.

Nesse sentido, o presente trabalho procura contribuir para o desenvolvimento da tecnologia de leitos fluidizados circulantes, através da caracterização de sistemas de contato gás-sólidos que operam em regime de fluidização rápida, aplicados a reações químicas.

Tal caracterização envolve, inicialmente, a realização de experimentos em escala de laboratório, voltados tanto ao estudo fluido dinâmico, face à grande influência das condições de escoamento vigentes no sistema sobre seu desempenho, quanto ao estudo de uma reação química modelo, levada a efeito em regime de fluidização rápida. O trabalho é completado com um modelo matemático de um reator de leito fluidizado circulante aplicado à reação química modelo, e de simulações da operação do mesmo em diferentes condições.

Especificamente, o trabalho tem os seguintes objetivos:

- a) caracterização experimental das transições no regime de escoamento em sistemas de leito fluidizado circulante;
- b) realização de testes em escala de bancada, para estudo de uma reação química modelo, em leito fluidizado circulante;

- c) modelagem matemática de um reator químico operando em regime de fluidização rápida, aplicada a uma reação modelo, e estudo de sensibilidade paramétrica, através de simulações para diferentes valores das variáveis manipuláveis.

Para os dois últimos itens acima, a reação química adotada como modelo é a decomposição de uma rocha fosfática constituída principalmente por um mineral de fosfato de alumínio hidratado, voltada à produção de um fertilizante fosfatado. O interesse em tal processo relaciona-se ao suprimento de um insumo básico para a agricultura, em nível regional, nas regiões Norte e Nordeste do Brasil.

Os estudos experimentais em laboratório, com sistemas de leito fluidizado circulante, foram realizados no "Institut für Technische Chemie" da Universidade de Hannover, República Federal da Alemanha, em um programa experimental apoiado pelo DAAD - Serviço Alemão de Intercâmbio Acadêmico, pela CAPES - Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior do Ministério da Educação, pelo CNPq - Conselho Nacional para o Desenvolvimento Científico e Tecnológico, e pelo IPT - Instituto de Pesquisas Tecnológicas do Estado de São Paulo.

As demais atividades do estudo foram realizadas nos Laboratórios do IPT e da Escola Politécnica da USP, com apoio financeiro do IPT.

2. REVISÃO DO ESTADO ATUAL DA TÉCNICA

2.1 Introdução

O contato entre gás e sólidos em regime de leito fluidizado circulante, também denominado de leito de arraste ou fluidização rápida ("fast fluidization") representa um estágio intermediário entre o leito fluidizado convencional, ou borbulhante, e o transporte pneumático, ou escoamento gás-sólido em fase diluída.

Tal regime de escoamento é obtido quando, em um sistema de contato gás-sólido com escoamento ascendente de gás, a velocidade deste é tornada alta o suficiente para carregar o sólido para fora do reator, de modo que é necessário re-introduzir sólido na parte inferior do sistema de contato para manter constante a densidade do leito. A Figura 2.1 ilustra essa situação, comparada aos demais sistemas de contato gás-sólido. Observe-se que o leito fluidizado circulante opera em condições de máxima velocidade relativa gás-sólido.

Ao contrário de um leito fluidizado convencional, não é possível, neste regime, a observação de um leito propriamente dito, com uma altura média definida. Na fluidização rápida o sólido em suspensão ocupa todo o volume do sistema, com intensa recirculação interna.

Um dos primeiros estudiosos dos aspectos fluidodinâmicos de leitos fluidizados circulantes foi Yerushalmi e seus colaboradores (Yerushalmi et alii, 1976 e Yerushalmi e Cankurt, 1979), que apresentou descrições bastante claras sobre tais sistemas, ressaltando sobretudo as vantagens em relação a leitos fluidizados convencio-

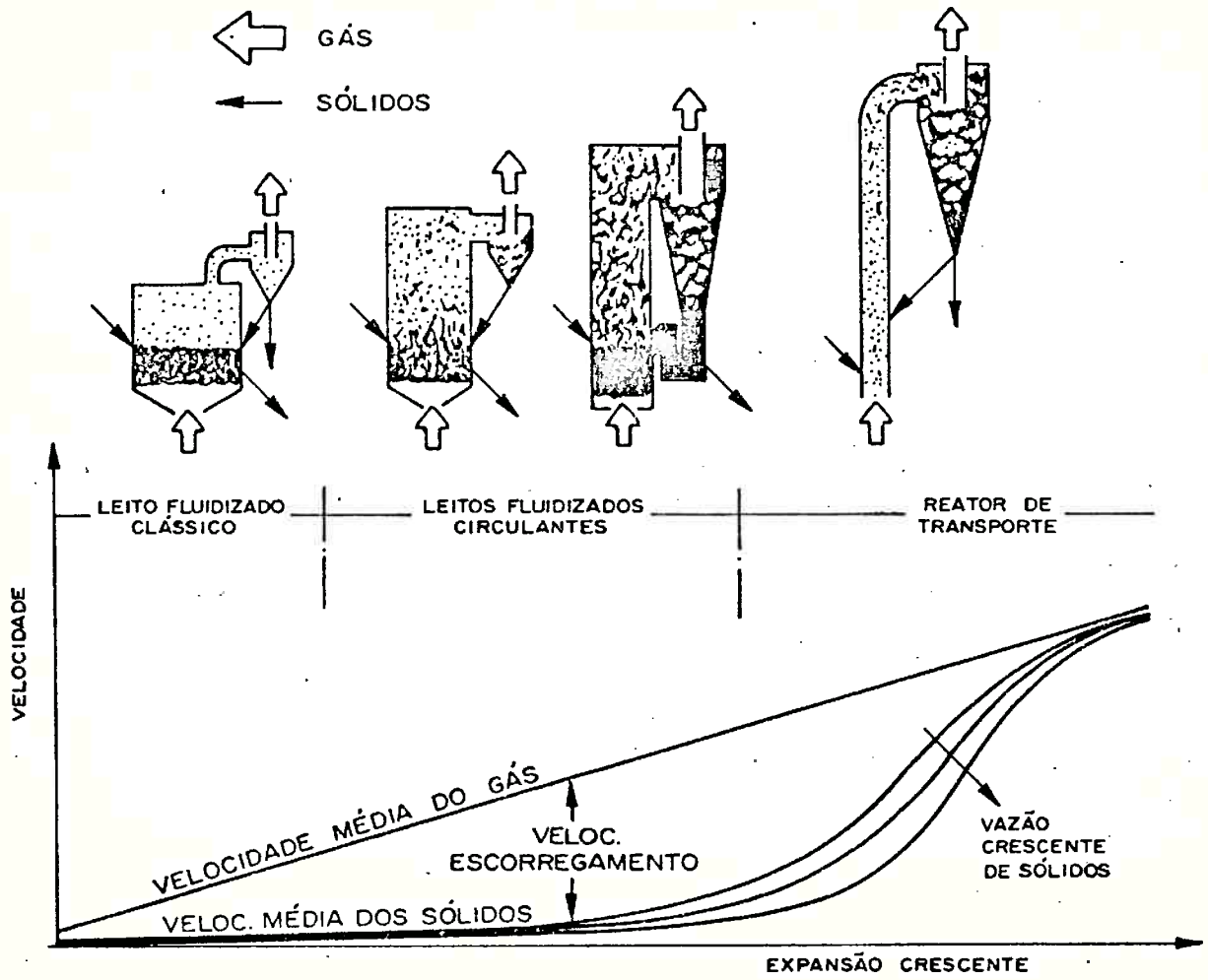


FIGURA 2.1 - Sistemas de contato para reatores gás-sólidos operando com material em pó (Broedermann, 1981).

cionais, tais como:

- contato mais eficiente entre gás e sólidos, advindo da alta velocidade relativa e da inexistência de bolhas;
- ausência de fluxo descendente de gás ("backmixing"), devida às altas velocidades do gás, o que elimina problemas de reações secundárias indesejáveis em alguns processos;
- altas capacidades de processamento em relação ao custo do equipamento, devido à baixa relação diâmetro:volume;
- viabilidade de processar sólidos com pequeno diâmetro de partícula, ou com propriedades coesivas, difíceis de utilizar em leitos fluidizados convencionais, em razão da maior expansão observada em leitos fluidizados circulantes, bem como das altas velocidades do gás.

A Figura 2.2 ilustra a região de existência do regime de contato em fluidização rápida num gráfico de perda de carga em função da velocidade do gás, situando-o em relação ao leito fluidizado convencional.

2.2 Caracterização fluidodinâmica do leito fluidizado circulante

Conforme ilustrado nas Figuras 2.1 e 2.2, um sistema de contato gás-sólidos, com escoamento ascendente do gás, sofre uma série de transições em seu regime de escoamento, em função de u_g , a partir de $u_g = 0$. Dado um leito de partículas sólidas, para baixas velocidades do gás, o leito permanece fixo e o gás flui através do volume intersticial. Nessas condições, é geralmente aceita a expressão empírica apresentada por Ergun (1952), que relaciona o gradiente de pressão ao longo do sentido de escoamento com u_g :

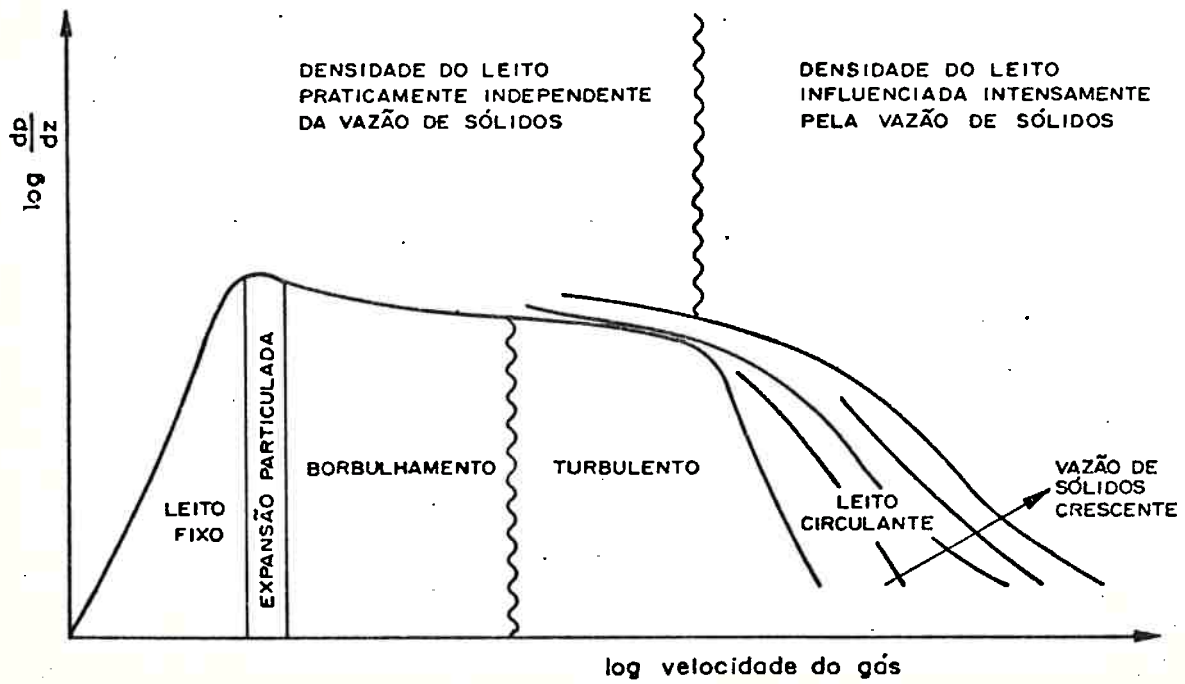


FIGURA 2.2 - Ilustração da perda de carga total em função da velocidade do gás, para diferentes regimes de escoamento gás-sólidos (Yerushalmi, 1976).

$$\frac{dp}{dz} = 150 \frac{(1-\epsilon)^2 \mu u_g}{\epsilon^3 (\phi d_p)^2} + 1,75 \frac{(1-\epsilon)}{\epsilon^3} \cdot \frac{\rho_g u_g^2}{\phi d_p} \quad (2.1)$$

Normalmente as partículas sólidas apresentam uma distribuição granulométrica, de modo que d_p é representado pelo diâmetro médio superfície-volume, ou diâmetro de Sauter:

$$d_p = \left(\sum_i \frac{x_i}{d_{p_i}} \right)^{-1} \quad (2.2)$$

A Eq. (2.1) representa a soma dos dois fatores que contribuem para a queda de pressão ao longo de um leito de partículas: o primeiro deles refere-se às forças de natureza viscosa e predomina para valores de $Re_p < 20$; o segundo termo refere-se às forças de natureza cinética e predomina para $Re_p > 1000$, onde:

$$Re_p = \frac{d_p \rho_g u_g}{\mu} \quad (2.3)$$

A partir do escoamento em leito fixo, com o aumento gradual de u_g , atinge-se uma condição tal, em que a força exercida pelo gás que escoa equivale ao peso das partículas do leito, ou seja:

$$\frac{dp}{dz} = (1-\epsilon_{mf}) \cdot (\rho_p - \rho_g) \cdot g \quad (2.4)$$

Nessas condições, u_g é a velocidade mínima de fluidização, e p_0 de ser determinada pela combinação das Eqs. (2.1) e (2.4):

$$Ga = \frac{150(1-\epsilon_{mf})}{\phi^2 \epsilon_{mf}} Re_{mf} + \frac{1,75 Re_{mf}^2}{\phi \epsilon_{mf}^3} \quad (2.5)$$

$$Ga = gd_p^3 \rho_g (\rho_p - \rho_g) / \mu^2 \quad (2.6)$$

A Eq. (2.5) é, na verdade, apenas uma entre várias expressões empíricas ou semi-empíricas desenvolvidas para previsão de u_{mf} . Uma comparação referente à precisão dessas várias correlações pode ser vista em Nakamura et alii (1985).

Com o aumento gradual de u_g para valores superiores a u_{mf} o leito de partículas pode ou não sofrer uma expansão (Geldart, 1973), dependendo dos valores de d_p , ρ_p , ρ_g e μ , mas adquire, de qualquer modo, propriedades típicas de uma suspensão fluida. Em seguida, para valores maiores de u_g , observa-se o surgimento de bolhas do gás, que ascendem em meio à suspensão gás-sólido. Nos últimos 20 anos uma série de modelos vêm sendo desenvolvidos, capazes de descrever com maior ou menor precisão o regime de leito fluidizado borbulhante (ou convencional). Uma revisão desses modelos pode ser encontrada em Yates (1983).

A partir dessa condição, o aumento de u_g resulta no aumento da intensidade de borbulhamento, do diâmetro das bolhas e da agitação no leito, passando-se gradualmente a uma condição denominada de fluidização turbulenta, caracterizada pelo rompimento das bolhas maiores e a grandes oscilações de pressão. Não há ainda consenso quanto a correlações para previsão da transição leito borbulhante-leito turbulento, mas parece haver relação com o conceito de tamanho máximo estável das bolhas (Yerushalmi et alii, 1978).

Até este ponto, não há influência da vazão de sólidos sobre as condições de escoamento no leito, isto é, dados um sólido (ρ_p , d_p) e um fluido (ρ_g , μ) as condições de fluidização estão definidas por u_g apenas, a não ser pela influência do diâmetro do leito sobre as características das bolhas (Werther, 1974). Apesar das grandes

oscilações observadas, é nítida a visualização da altura média do leito de partículas, a qual poderá ser aumentada ou diminuída através da adição ou retirada de sólidos do sistema.

A partir dessa situação, um aumento em u_g causa um aumento mais ou menos brusco na taxa de arraste de sólidos do leito, não sendo mais possível observar qualquer limite no mesmo, isto é, o sistema sofre uma expansão pronunciada e passa a ocupar todo o volume do tubo de escoamento. Nessas condições, u_g é suficientemente alta para arrastar o sólido para fora do tubo e a densidade da suspensão somente poderá ser mantida constante se houver alimentação de sólidos ao reator na mesma taxa em que estes são arrastados do mesmo.

Para uma dada vazão de alimentação de sólidos, um aumento subsequente de u_g irá diminuir gradativamente a densidade da suspensão gás-sólidos, até que a recirculação interna de sólidos, intensa no regime de leito fluidizado circulante, cessa completamente, e as partículas passam a ser transportadas num escoamento uniforme, conhecido como transporte em "fase diluída".

A Figura 2.3 apresenta um mapa das transições possíveis de ocorrer no regime de escoamento ascendente de suspensões de gás e sólidos, para partículas finas. Nesse mapa, o regime de escoamento em fluidização rápida corresponde ao escoamento turbulento, em fase densa, não pistonado. Para um sistema operando nessas condições, um aumento em u_g , com vazão de sólidos constante, o levaria ao escoamento em fase diluída, numa transição em geral difusa, difícil de ser caracterizada. Por outro lado, a diminuição de u_g faria com que o gás não fosse capaz de transportar todo o sólido alimentado, fazendo com que este se acumule na parte inferior do tubo de escoamento, na forma de uma suspensão mais densa, podendo ou não

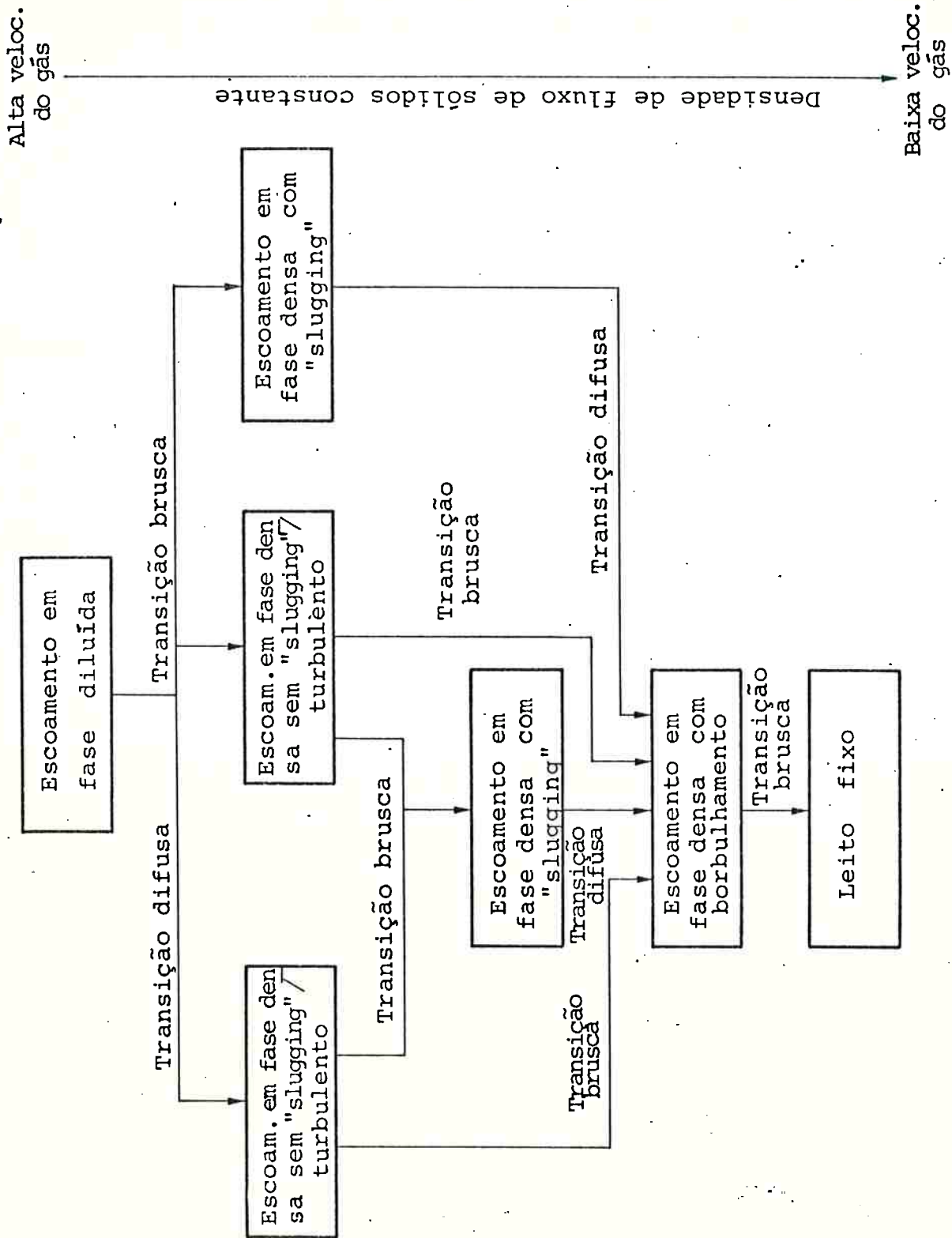


FIGURA 2.3 - Mapa de transições no regime de escoamento gás-sólidos para material em pó (Satiya et alii, 1985).

ocorrer a formação de escoamento pistonado. Esta transição, em geral brusca, é denominada de colapso, ou "choking", do sistema de transporte, representando a transição para o regime de leito fluidizado turbulento. O colapso ocorre quando a vazão de sólidos passa a exceder a capacidade de transporte do gás, a qual é função das propriedades físicas do gás e do sólido, de d_p e u_g (Yerushalmi e Cankurt, 1979).

Nos últimos 10 a 15 anos muitos trabalhos vêm sendo realizados visando desenvolver correlações que permitam prever as condições para ocorrência das transições no regime de escoamento gás-sólidos na região de existência de fluidização rápida. No entanto, a maioria das correlações desenvolvidas partiram de abordagem estritamente empírica ou apresentam parâmetros de valor pouco preciso, o que restringe a aplicabilidade em diferentes situações.

Um dos primeiros e mais importantes trabalhos de caracterização dos limites de existência para diferentes sistemas de contato gás-sólidos foi realizado por Reh (1961), através da construção de um diagrama conforme ilustrado na Figura 2.4. O diagrama permite a delimitação das condições para operação de diferentes sistemas para processamento de sólidos através dos dois seguintes grupos adimensionais:

$$Ar = \frac{gd^3_p}{\mu^2} \cdot \rho_g \cdot (\rho_p - \rho_g) \quad (2.7)$$

e

$$M = \frac{u_g^3 \cdot \rho_g^2}{g \cdot \mu (\rho_p - \rho_g)} \quad (2.8)$$

O primeiro deles engloba apenas as propriedades do sólido (d_p, ρ_p) e do gás (μ, ρ_g), o que significa que é possível prever a velocidade de gás, u_g , necessária para que um dado sistema opere na região

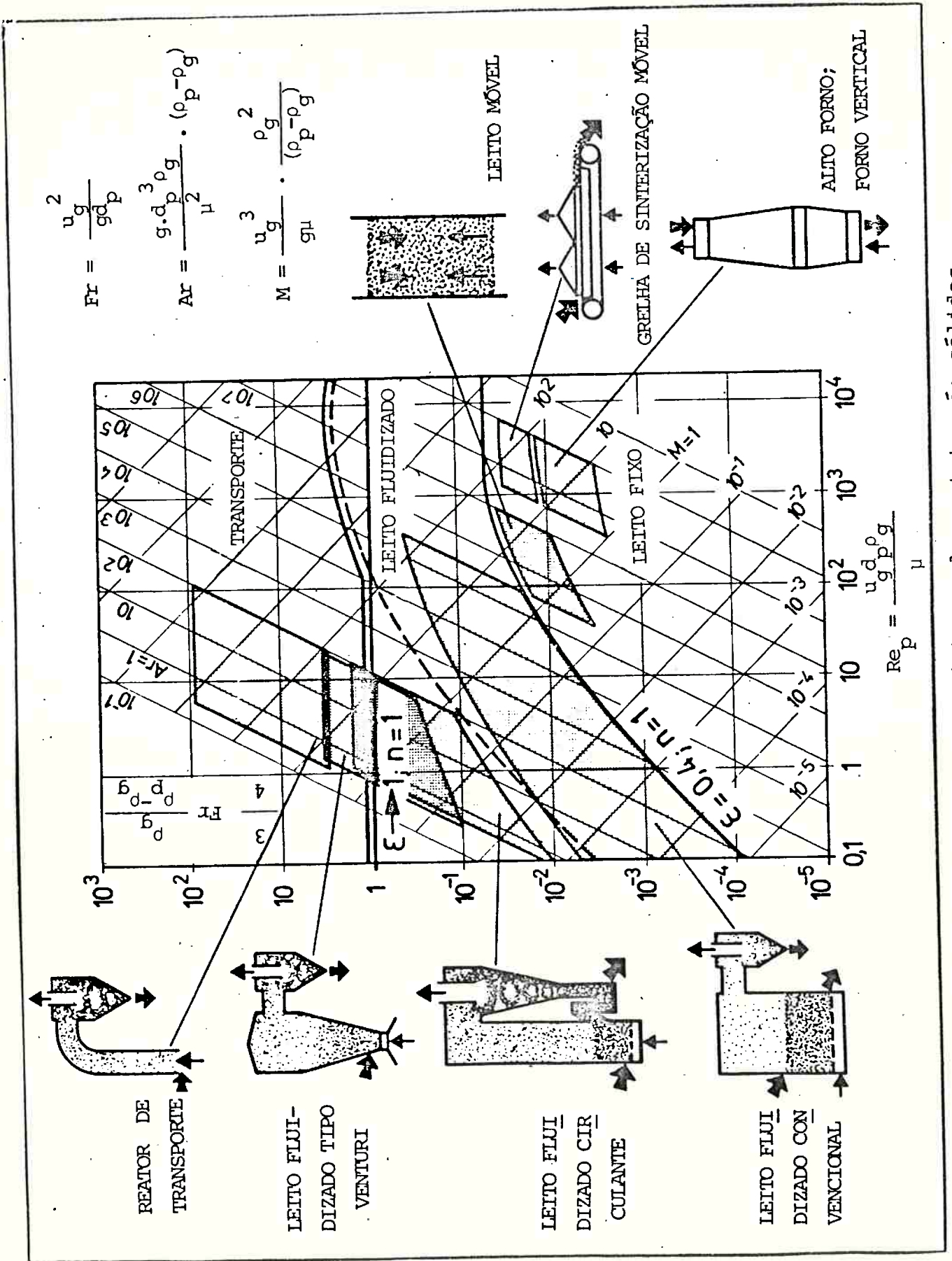


FIGURA 2.4 - Diagrama de Reh (1961) para sistemas de contato gás-sólidos.

de escoamento desejada, ou mesmo se essa condição é possível de ser atingida. Na Figura 2.4 estão também indicados alguns valores para o parâmetro n , o qual representa uma relação entre a força de arraste exercida pelo gás e o peso do leito de partículas:

$$n = - \frac{dp}{dz} \cdot \frac{1}{(\rho_p - \rho_g) \cdot (1 - \epsilon) g} \quad (2.9)$$

Quando $n < 1$ tem-se um leito fixo de sólidos. Quando $n = 1$ e $\epsilon = 0,4$ tem-se início de fluidização do sistema. A expansão do leito a $n = 1$ corresponde à região de existência de leito fluidizado (escoamento em fase densa). Quando $n > 1$ atinge-se a região de transporte pneumático. De acordo com esse diagrama, a região de operação de sistemas de leito fluidizado circulante corresponde a:

$$0,56 \leq Ar \leq 100 \quad (2.10)$$

$$0,00261 \cdot Ar^{+1,23} \leq M \leq 4,27 Ar^{+0,49} \quad (2.11)$$

2.2.1 Limites de existência do leito fluidizado circulante

2.2.1.1 Colapso de um leito fluidizado circulante ("choking")

A transição entre escoamento em fase densa e fase densa com fluxo pistonado ("slugs") ou borbulhante, conhecida por "choking", tem sido definida de diferentes formas por vários autores. Uma discussão a esse respeito pode ser encontrada em Yerushalmi e Cankurt (1979). Entre as várias correlações desenvolvidas para essa transição, aparentemente aquelas apresentadas por Yang (1983) têm sido as mais aceitas, dada a concordância com grande número de dados ex

perimentais. Yang utiliza o conceito de capacidade máxima de arraste de partículas finas de um sólido por um gás, a qual depende de ρ_g , μ , ρ_p e d_p . Em um sistema com escoamento vertical ascendente de sólidos vale a expressão:

$$W_p = \rho_p (1-\epsilon) (u_f - u_t) \quad (2.12)$$

a qual supõe que a velocidade de arraste gás-sólido ("slip velocity") é igual à velocidade terminal de uma única partícula (velocidade de queda da partícula isolada, imersa no fluido).

Yang (1975) apresenta a seguinte expressão para a velocidade de uma partícula arrastada por um gás:

$$u_p = u_f - u_t \left(1 + \frac{f_p u_p^2}{2gD} \right) \epsilon^{4,7} \quad (2.13)$$

Na condição de colapso do sistema, essa expressão é simplificada e rearranjada (Yang, 1983), ficando:

$$f_{pc} = \frac{2gD (\epsilon_c^{-4,7} - 1)}{(u_f - u_t)^2} \quad (2.14)$$

e

$$f_{pc} = 6,81 \times 10^5 \cdot \left(\frac{\rho_g}{\rho_p} \right)^{2,2} \quad (2.15)$$

onde o subscrito c refere-se às condições de colapso. Portanto, para um dado W_p , obtêm-se ϵ_c e $u_{fc} = u_{gc}/\epsilon_c$ resolvendo o sistema dado pelas Equações (2.12) a (2.15). A velocidade terminal da partícula, u_t , é expressa como:

$$u_t^2 = \frac{4g d_p (\rho_p - \rho_g)}{3 \rho_g C_D} \quad (2.16)$$

onde C_D é um coeficiente de arraste, expresso como:

$$C_D = \frac{24}{Re_p}, \text{ para } Re_p < 0,4 \quad (2.17)$$

$$C_D = \frac{24}{Re_p} + 3,6 Re_p^{-0,313}, \text{ para } 0,4 < Re_p < 1000 \quad (2.18)$$

$$C_D = 0,43, \text{ para } 1000 < Re_p < 200.000 \quad (2.19)$$

Mais recentemente, Briens e Bergougnou (1986) desenvolveram expressões alternativas às de Yang (1983), baseadas na forma em que ocorre o escoamento em fase densa, caracterizado pela recirculação interna do sólido, inexistente no escoamento em fase diluída, mas intenso quando u_g é menor que u_{gc} . Quando se tem u_g maior que u_{gc} e escoamento em fase densa, a recirculação, embora muito menos pronunciada, se dá principalmente através de uma região anular do tubo de escoamento, próxima à parede do mesmo. Nessas condições, existem duas regiões distintas de escoamento, através da seção do tubo central e anular. Tal fato, já reportado na literatura por vários autores (por exemplo: Capes e Nakamura, 1973; Yerushalmi e Cankurt, 1979), pode ser visualizado através do esquema mostrado na Figura 2.5. A queda de pressão ao longo do tubo é minimizada quando o fluido passa a escoar preferencialmente pela região central, de raio igual a $\alpha.r$, caracterizada por alta velocidade do gás e baixa concentração de sólido. A região anular, de espessura $(1-\alpha).r$ é caracterizada pelo escoamento de partículas no sentido descendente, pela menor velocidade do gás e maior concentração de sólidos. Normalmen-

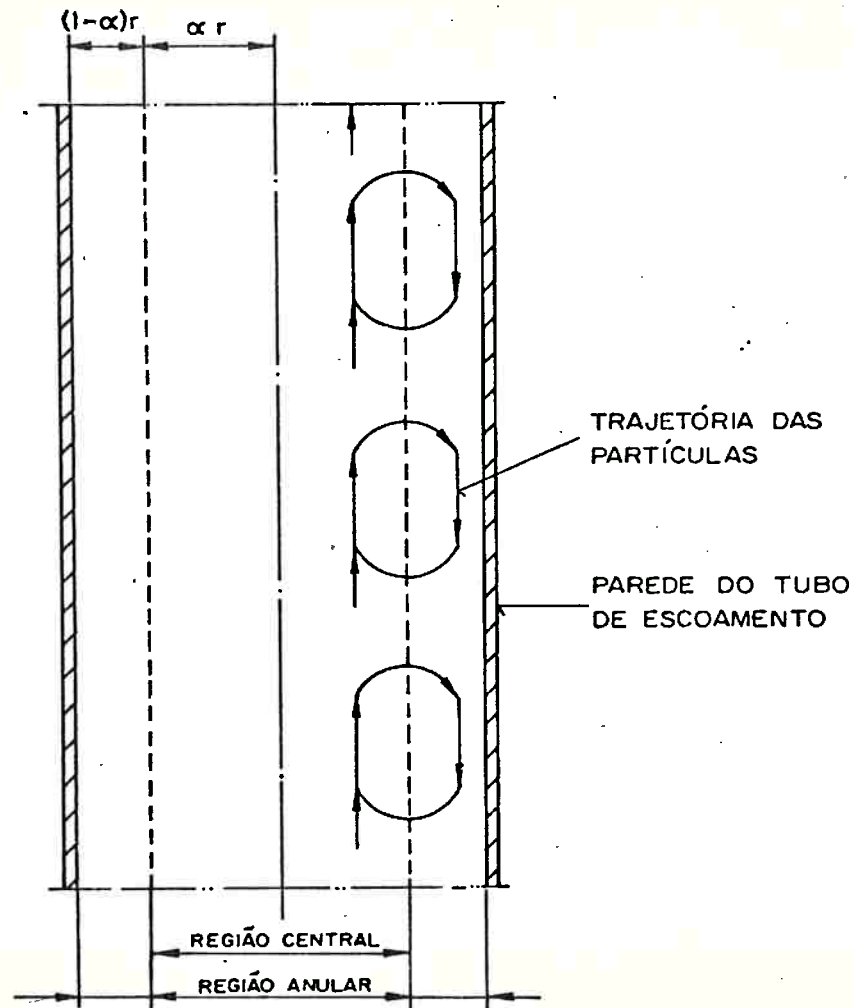


FIGURA 2.5 - Esquema do escoamento em duas regiões (central e anular), conforme formulado por Nakamura e Capes (1973).

te, α tem valores maiores que 0,95, para $u_g > u_{gc}$, mas, para uma dada vazão de sólidos, a diminuição de u_g causa diminuição de α , até que ocorre o colapso ("choking") do sistema, e a recirculação passa a ser intensa, ocorrendo em toda a seção do tubo. Briens e Bergougnou (1986), baseados em observações experimentais, assumem que:

$$u_g = u_{gc} \quad \text{quando} \quad \alpha^2 = 0,75 \quad (2.20)$$

isto é, quando a área da região anular atinge 25% da seção total do tubo de escoamento.

O método de cálculo proposto assume que:

- o sistema opera em condições de mínima perda de carga e a formação de duas regiões de escoamento contribui para isso;
- a velocidade da suspensão na região anular é desprezível, comparada à velocidade da suspensão na região central;
- são desprezadas as interações entre partículas, dada a baixa concentração das mesmas.

A perda de carga total no sistema é a soma das perdas devidas à densidade das partículas, ao atrito das partículas e ao atrito do gás:

$$\frac{dp}{dz} = \frac{dp_{hs}}{dz} + \frac{dp_{fs}}{dz} + \frac{dp_{fg}}{dz} \quad (2.21)$$

onde cada um dos três termos é assim calculado:

- queda de pressão devida à densidade das partículas em suspensão:

$$-\frac{dp_{hs}}{dz} = \rho_p g (1-\epsilon) \quad (2.22)$$

b) queda de pressão devida ao atrito do sólido (baseado em Yang, 1978):

$$-\frac{dp_{fs}}{dz} = 0,5 f_p \cdot \rho_p (1-\epsilon) u_p / D \quad (2.23)$$

com

$$f_p = \frac{0,041}{\epsilon^3} \cdot (1-\epsilon) \left((1-\epsilon) \cdot \frac{Re_t}{Re_p} \right)^{-1,021} \quad (2.24)$$

e

$$u_p = \frac{W_p}{\rho_p (1-\epsilon)} \quad (2.25)$$

c) queda de pressão devida ao atrito do gás:

$$-\frac{dp_{fg}}{dz} = 2 \rho_g f_g u_g^2 / D \quad (2.26)$$

onde f_g é calculado pelo método proposto por Serghides (1984):

$$f_g = \left(A - \frac{(B-A)^2}{(C-2B+A)} \right)^{-2} \quad (2.27)$$

$$A = -2,0 \log \left(\frac{\sigma/D}{3,7} + \frac{12}{Re} \right) \quad (2.28)$$

$$B = -2,0 \log \left(\frac{\sigma/D}{3,7} + \frac{2,51A}{Re} \right) \quad (2.29)$$

$$C = -2,0 \log \left(\frac{\sigma/D}{3,7} + \frac{2,51A}{Re} \right) \quad (2.30)$$

Assume-se rugosidade σ igual a d_p .

O fato de se desprezar a velocidade na região anular torna necessário substituir u_g , W_p e D nas expressões acima por:

$$u_{ga} = u_g / \alpha^2 \quad (2.31)$$

$$W_a = W_p / \alpha^2 \quad (2.32)$$

$$D_a = \alpha \cdot D \quad (2.33)$$

O procedimento de cálculo é o seguinte:

Para cada valor de u_g , fixadas as demais condições, é determinado o valor de α que minimiza a Eq. (2.21). Obtêm-se assim um conjunto de pontos (u_g, α) , a partir do qual u_{gc} é determinado quando $\alpha^2 = 0,75$.

Briens e Bergougnou (1986) testaram esse método tanto para partículas com diâmetro uniforme, quanto para sólidos com distribuição granulométrica, caso em que as expressões são calculadas separadamente para cada fração granulométrica e em seguida somadas ponderadamente para compor a Eq. (2.21).

As correlações acima apresentadas são relativamente bem aceitas na literatura, como métodos para previsão da velocidade de colapso de um sistema de escoamento gás-sólidos. Mesmo assim, apesar de terem sido derivadas de abordagens bastante cuidadosas, não permitem prever com precisão as condições de colapso de forma generalizada. Como mostrado por diversos autores (Satija et alii, 1985; Briens e Bergougnou, 1986, entre outros autores), o erro relativo dessas correlações pode ser pequeno, isto é, menor que 10%, mas situa-se, em geral, entre 20 e 30%, o que não as difere de correlações mais antigas, como a de (Yousfi e Gau, 1974), em que u_{gc} é expressa como:

$$u_{gc} = (gd_p)^{0,5} Re_t^{-0,06} \left(\frac{W_p}{G}\right)^{0,28} \quad (2.34)$$

onde

$$Re_t = \frac{\rho_g u_t d_p}{\mu} \quad (2.35)$$

2.2.1.2 Transição entre escoamento em fase densa e em fase diluída

A transição entre o escoamento em fase densa (onde há recirculação de sólidos) e em fase diluída (escoamento uniforme, sem recirculação) representa a passagem do regime de fluidização rápida para o transporte pneumático.

As principais características dos dois regimes de escoamento podem ser assim resumidas (Leung, 1980):

a) fase diluída:

- suspensão aparentemente uniforme, com ϵ normalmente maior que 0,97;
- ausência de recirculação de sólidos;
- velocidade de escorregamento gás-partículas próxima de u_t ;
- $\frac{\partial}{\partial u_g} \left(\frac{-dp}{dz}\right)_{W_p = cte} > 0$ (o atrito entre suspensão e parede é o principal fator de queda de pressão).

b) fase densa:

- escoamento em condições não uniformes, caracterizado pela presença de aglomerados de partículas ("clusters"), nos quais ϵ tem valores da ordem de 0,75;

- há recirculação interna de sólidos, com fluxo descendente dos mesmos próximo à parede do tubo de escoamento (quando $u_g > u_{gc}$);
- velocidade de escorregamento ("slip velocity") maior que u_t ;
- $\frac{\partial}{\partial u_g} (-dp/dz)_{W_p} = \text{cte} < 0$ (a densidade da suspensão é o fator dominante na queda de pressão ao longo do tubo).

Até o presente esta transição não tem sido satisfatoriamente de finida, nem há métodos desenvolvidos que permitem prevê-la ou ca-racterizá-la.

Leung (1980) propôs o seguinte critério para limite entre ambos os regimes de escoamento, em função das características apresentadas acima:

$$\frac{\partial}{\partial u_g} (-dp/dz)_{W_p} = \text{cte} = 0 \quad (2.36)$$

ou seja, o mínimo da queda de pressão no sistema como função de u_g , equivalente à passagem da região em que a densidade da suspensão é o principal fator na queda de pressão, para a região em que o atrito da suspensão é predominante. Há, porém, grande imprecisão nas correlações desenvolvidas para cálculo de queda de pressão no escoamento gás-sólidos, quando aplicadas à situação aqui tratada, pois os valores envolvidos são pequenos demais, resultando em dispersões significativas nos resultados.

2.2.2 Correlações para o regime de leito fluidizado circulante

No regime de escoamento em fase densa, característico do regime de fluidização rápida, são necessárias quatro expressões básicas para descrever o sistema, sendo as duas primeiras relativas ao ba-

lanço de massa ao longo do tubo de escoamento, para gás e sólido:

$$\frac{d}{dz} (\varepsilon \rho_g \cdot u_f) = 0 \quad (2.37)$$

$$\frac{d}{dz} ((1-\varepsilon) \rho_p u_p) = 0 \quad (2.38)$$

A terceira expressão é obtida através de um balanço da quantidade de movimento para gás e sólido:

$$\frac{-dp}{dz} = \frac{d}{dz} (\rho_g \varepsilon u_f^2 + \rho_p (1-\varepsilon) u_p^2) + \varepsilon \rho_g g + (1-\varepsilon) \rho_p g + F_w \quad (2.39)$$

onde F_w representa a perda de carga devida ao atrito suspensão-parede do tubo, podendo ser representada como a soma de dois termos: atrito sólido-parede e gás-parede.

$$F_w = \frac{dp_{fs}}{dz} + \frac{dp_{fg}}{dz} \quad (2.40)$$

Estes termos podem ser determinados através das Eqs. (2.23) a (2.30), já apresentadas.

A última expressão, que consiste de um balanço energético entre gás e sólido, é a que representa o centro de controvérsias, uma vez que vários autores têm apresentado correlações derivadas de abordagens diferentes, cujas premissas básicas comprometem sua aplicação a sistemas de leito fluidizado circulante, onde a grande circulação de sólidos, a aceleração das partículas e a presença de aglomerados de partículas fluindo no tubo de escoamento tornam o equacionamento consideravelmente complicado. A seguir são apresentadas resumidamente algumas das expressões desenvolvidas para escoamento em fase densa.

2.2.2.1 Modelo de Nakamura e Capes (1973)

As correlações desenvolvidas por esses autores baseiam-se em experimentos feitos Capes e Nakamura (1973) para transporte vertical em fase densa, isto é, com existência das regiões central e anular de escoamento. As correlações são válidas apenas fora da zona de aceleração das partículas (parte inferior do tubo).

Partindo de balanços da quantidade de movimento feitos separadamente para fluido e sólido em cada uma das duas regiões de escoamento, chega-se a expressões relativamente complexas, as quais só podem ser resolvidas através das seguintes simplificações:

- a) o atrito do fluido e do sólido é desprezado, por ter pouca influência, quando comparado à força gravitacional;
- b) o atrito devido à passagem de partículas de uma região a outra foi desprezado, assumindo-se que, na fronteira entre regiões o sólido tenha velocidade vertical próxima de zero;
- c) as trocas de quantidade de movimento para o gás entre as duas regiões, bem como entre gás na região central e sólido na região anular e vice-versa, também foram desprezados.

Para a solução das expressões obtidas, é necessário assumir que o sistema opera em condições de mínima perda de pressão. A expressão final obtida é:

$$\frac{\rho_p}{(\epsilon_1 - \epsilon_2)^2} \left[\frac{\lambda(1 - \epsilon_1)}{(1 - \epsilon_2)} \left(\frac{-u_g}{u_t} + \epsilon_1^n + \frac{\epsilon_1 u_s}{(1 - \epsilon_1) u_t} \right) \right]^{1/2} \cdot H = 0 \quad (2.41)$$

onde:

n = expoente de Richardson-Zaki (1954)

$$H = (\epsilon_1 - \epsilon_2)^2 + \left[\frac{\lambda (1 - \epsilon_1) (1 - \epsilon_2)}{\left(-\frac{u_g}{u_t} + \epsilon_1^n + \frac{\epsilon_1 u_s}{u_t (1 - \epsilon_1)} \right)} \right]^{1/2} \cdot \left[(1 - \epsilon_1) (\epsilon_1^n - \epsilon_2^n) - \right. \\ \left. - n (1 - \epsilon_1) (\epsilon_1 - \epsilon_2) \epsilon_2^{n-1} \right] \quad (2.42)$$

$$\lambda = \frac{4 \tau_s u_t}{\rho_p u_s g \cdot D} \quad (2.43)$$

para que a (Eq. 2.41) seja válida, temos:

$$-\frac{u_g}{u_t} + \epsilon_1^n + \frac{\epsilon_1 u_s}{(1 - \epsilon_1) u_t} > 0 \quad (2.44)$$

A solução da Eq. (2.41) implica em $H=0$. A determinação de $\epsilon_1, \epsilon_2, \alpha$ e dp/dz é feita através do cálculo de $H = f(\epsilon_2)$ para diferentes valores de ϵ_1 , a $\lambda = \text{constante}$, sendo ϵ_1 mínimo obtido da Eq. (2.44).

As expressões de Nakamura e Capes resultam em boa concordância com dados experimentais dos próprios autores. As simplificações adotadas restringem a aplicação do modelo nas condições da zona de aceleração das partículas, bem como em baixos valores de u_g , próximos a u_t .

2.2.2.2 Modelo de Arastoopour e Gidaspow (1979)

Esta correlação foi derivada de grandezas termodinâmicas do sistema, e baseia-se na velocidade relativa entre fluido e sólido.

$$\frac{\rho_p}{2} \frac{d}{dz} (u_f - u_p)^2 + F_s = \rho_p g \quad (2.45)$$

onde F_s é a força de arraste por unidade de volume das partículas.

Segundo os autores, a resolução da Eq. (2.45) (por integração numérica, a partir de valores iniciais em $z = 0$) resultou em boa concordância com dados experimentais obtidos por eles próprios, mas apenas para escoamento em fase diluída. No caso de fase densa, foi necessário considerar as partículas agregadas ("clump"), com diâmetro várias vezes superior ao diâmetro das partículas isoladas. O diâmetro desses agregados, por sua vez, teve que ser variado ao longo do tubo. Também contribuiu para a imprecisão, o fato de ter sido considerado apenas o atrito entre gás e parede, desprezando-se a participação das partículas.

2.2.2.3 Modelo de Kwauk e colaboradores

As correlações desenvolvidas por Kwauk e seus colaboradores baseiam-se nas seguintes observações experimentais (Li Youchou e Kwauk, 1980 e Li Youchou et alii, 1982):

- a) a distribuição axial da fração média de vazios, ϵ , segue tipicamente uma curva do tipo ilustrado na Figura 2.6, curva 2.
- b) nessa curva, ϵ aproxima-se assintoticamente de um valor ϵ^* , na parte superior do tubo de escoamento, a partir de um valor ϵ_a na parte inferior, passando por um ponto de inflexão, na altura z_i . Na Figura 2.6, a curva 2 ilustra uma típica curva de distribuição, enquanto que a curva 1 pode ser entendida como possuindo ponto de inflexão, z_i , situado acima do topo do tubo de escoamento. Da mesma forma, a curva 3 tem z_i abaixo do extremo inferior do tubo.
- c) uma parte dos sólidos está dispersa uniformemente, formando uma fase diluída contínua, enquanto outra parte está suspensa nessa fase diluída, na forma de aglomerados de partícu-

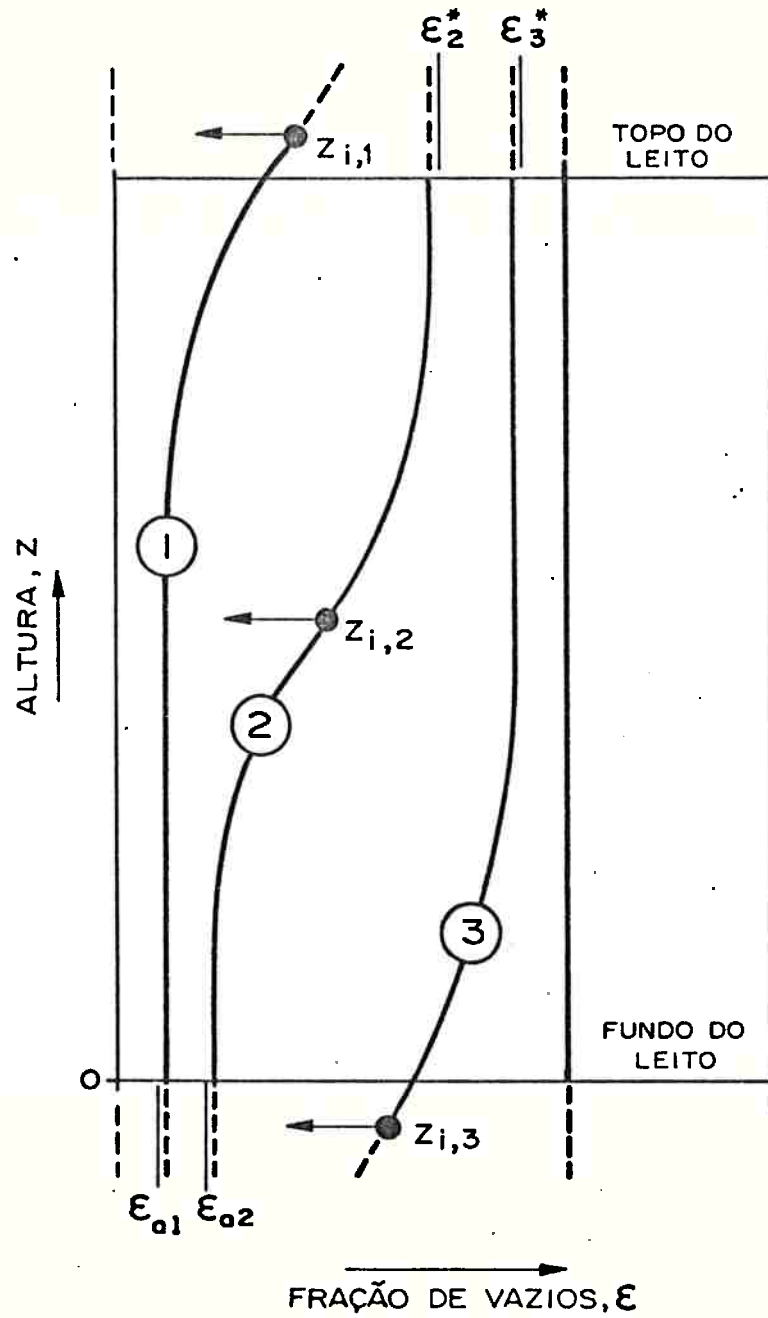


FIGURA 2.6 - Curvas de distribuição de ϵ no longo de z , conforme apresentada por Li Youchou e Kwauk (1980).

las ("clusters" ou "strands") sujeitas à formação e desaparecimento rápidos.

O modelo supõe que, a qualquer altura z no tubo de escoamento, os aglomerados movem-se no sentido ascendente por um mecanismo de difusão, a partir da região de maior densidade (parte inferior). A partir de uma certa altura do tubo, com densidade menor que um dado valor, esses aglomerados tendem a descer, como consequência do menor empuxo. Para se ter equilíbrio no sistema, os dois fluxos de vem ser iguais.

Assume-se que a difusão é determinada pelo gradiente de concentração de aglomerados:

$$\text{fluxo por difusão} = \psi \frac{d}{dz} (\rho_p f_a (1-\epsilon_a)) \quad (2.46)$$

O fluxo descendente é determinado pela diferença entre a concentração de sólidos, $(1-\epsilon)$, e a concentração de sólidos nos aglomerados, $(1-\epsilon_a)$:

$$\text{fluxo descendente} = \omega |(\rho_p - \rho_g)(1-\epsilon_a) - (\rho_p - \rho_g)(1-\epsilon)| f_a (1-\epsilon_a) \quad (2.47)$$

com

$$(1-\epsilon) = f_a (1-\epsilon_a) + (1-f_a) (1-\epsilon^*) \quad (2.48)$$

Nas condições de equilíbrio:

$$\text{fluxo por difusão} = - \text{fluxo descendente} \quad (2.49)$$

Combinando as (Eqs. 2.46 a 2.49), obtêm-se:

$$\frac{d\epsilon}{(\epsilon^* - \epsilon)(\epsilon - \epsilon_a)} = \frac{\omega(\rho_p - \rho_g)}{\psi \rho_p} dz \quad (2.50)$$

que, integrada, resulta em:

$$\ln \left(\frac{\epsilon - \epsilon_a}{\epsilon^* - \epsilon} \right) = \frac{(z - z_i)}{z_o} \quad (2.51)$$

onde:

$$z_o = \frac{\psi \rho_p}{\omega (\rho_p - \rho_g)} \left(\frac{1}{\epsilon^* - \epsilon_a} \right) \quad (2.52)$$

A Eq. (2.51) resulta numa curva tendendo a ϵ^* e a ϵ_a quando z tende a $+\infty$ e a $-\infty$ respectivamente.

Li Youchou et alii (1982) apresentaram correlações para os parâmetros ϵ_a , ϵ^* , z_i e z_o :

$$\epsilon_a = 0,756 \left(\frac{18Re_s + 2,7Re_s^{1,687}}{Ar} \right)^{0,0741} \quad (2.53)$$

$$\epsilon^* = 0,924 \left(\frac{18Re_s + 2,7Re_s^{1,687}}{Ar} \right)^{0,0286} \quad (2.54)$$

onde:

$$Re_s = \frac{d_p \rho_g (u_g - u_p)}{\mu} \quad (2.55)$$

$$z_i = 175,4 \left[\left(\frac{\rho_p - \rho_g}{\rho_g} \right) d_p g \right]^{1,922} \cdot u_p (u_g - u_p)^{-3,844} \quad (2.56)$$

$$z_o = 500 \cdot \exp \left[-69 (\epsilon^* - \epsilon_a) \right] \quad (2.57)$$

Embora a Eq. (2.51) tenha apresentado boa concordância com dados experimentais dos próprios autores (Li Youchou e Kwauk, 1980), bem como com dados mais recentes, publicados por Hartge et alii, (1986), os parâmetros envolvidos não puderam ser determinados da

forma apresentada, segundo este último autor. De fato, as Eqs. (2.53), (2.54), (2.56) e (2.57) foram obtidas por um método de regressão apenas, não tendo em princípio qualquer fundamentação fenomenológica, o que restringe a aplicação generalizada da Eq. (2.51).

2.2.2.4 Modelo de Rhodes e Geldart (1987)

Estes autores partiram de correlações já conhecidas na literatura, referentes ao arraste de sólidos a partir de um leito fluidizado convencional, desenvolvidas por Wen e Chen (1982). Estas correlações relacionam a densidade de fluxo de sólidos no sentido ascendente com a distância acima da superfície do leito, da seguinte forma:

$$E = E_{\infty} + (E_0 - E_{\infty}) \exp(-aL) \quad (2.58)$$

A existência de decaimento exponencial na taxa de arraste de sólidos parece ser um fato geralmente aceito, restando confirmar a validade dos métodos de cálculo de E_{∞} , E_0 , bem como do parâmetro a da Eq. (2.58). Rhodes e Geldart obtiveram resultados concordantes com dados experimentais usando as correlações sugeridas por Wen e Chen (1982) para cálculo de E_{∞} e E_0 , mas tiveram que adaptar o valor de a a seus próprios experimentos.

Através da Eq. (2.58) é possível calcular a posição da interface entre a região de arraste e a região de maior densidade, equivalente a um leito fluidizado borbulhante (na parte inferior do leito) dados a altura e diâmetro do tubo, as propriedades físicas do gás e do sólido, u_g e W_p , fazendo-se $E = W_p$.

Para o cálculo de ε em função de z , as expressões utilizadas são:

$$u_f = u_g / \epsilon \quad (2.59)$$

$$u_p = \frac{E}{\rho_p (1-\epsilon)} \quad (2.60)$$

$$u_p = u_f - u_t \quad (2.61)$$

Combinando essas expressões chega-se a:

$$u_t \epsilon^2 - \epsilon (u_g + u_t + \frac{E}{\rho_p}) + u_g = 0 \quad (2.62)$$

Essa expressão é válida quando z é maior que a altura da interface entre a fase densa inferior e a região de arraste, superior. Quando z é menor que a altura dessa interface, ϵ é considerado constante, sendo calculado através de correlações desenvolvidas pelos autores.

O modelo de Rhodes e Geldart apresenta alguns pontos questionáveis, tais como:

- a) embora baseado em correlações de Wen e Chen para o arraste de sólidos, Eq.(2.62), não há concordância com estes autores quanto ao valor do parâmetro a . Wen e Chen obtiveram valores de a entre 2,2 e 6,6 m^{-1} , enquanto que, no modelo, o valor que melhor se adaptou aos dados experimentais foi $a = 0,5 m^{-1}$;
- b) o perfil de $\epsilon = f(z)$ resultante é, na verdade, descontínuo: tem valor constante na fase densa inferior, sofre descontinuidade na interface entre as fases e decresce exponencialmente na fase diluída ($L = z - L^*$). Tal descontinuidade não tem correspondência com a prática;
- c) o escoamento em leito fluidizado circulante ocorre em condições em que não há qualquer leito borbulhante (fase densa, no caso)

presente, podendo ser imaginada apenas uma tendência a tal situação, dada a grande turbulência do escoamento.

De qualquer modo, estas correlações apresentam duas vantagens em relação às demais apresentadas:

- a) baseia-se em uma abordagem semi-empírica, com correlações aceitas de modo generalizado;
- b) aplica-se diretamente ao caso de escoamento intermediário entre turbulento e fase diluída, considerando a intensa recirculação de sólidos, característica do regime de fluidização rápida.

2.2.3 Comentários sobre a aplicabilidade das correlações desenvolvidas

As dificuldades técnicas para a medição precisa de variáveis tais como ϵ , dp/dz e velocidades locais de gás e partículas têm constituído o principal obstáculo para a verificação experimental de uma série de hipóteses assumidas no desenvolvimento de correlações fluidodinâmicas para leito fluidizado circulante.

Apenas recentemente, algumas das dificuldades têm sido superadas, através da aplicação de técnicas de medição e tratamento de dados adequados aos sistemas em estudo.

A seguir são feitos comentários a respeito da aplicabilidade das correlações fluido dinâmicas citadas, com base em resultados experimentais recentemente publicados:

- a) o diagrama de Reh tem sido, sem dúvida, válido como delimitador inicial da região de operação de leitos fluidizados circulantes, como pode ser comprovado verificando-se as condições de operação utilizadas nos trabalhos publicados;

- b) aparentemente, no escoamento gás-sólido em fase densa o modelo de duas regiões, central e anular, é válido. Morooka et alii (1983); Hartge et alii (1986); Ishii et alii (1988) e Nowak et alii (1988) realizaram medições em condições de escoamento em fase densa estabilizado, indicando que, na região central, o sentido de escoamento médio das partículas é ascendente, enquanto na região anular as partículas têm escoamento descendente. Morooka et alii (1983) observou que a espessura da região anular é da ordem de 4 a 5 mm para tubos com 0,06 e 0,12 m de diâmetro. Os demais autores não chegaram a quantificar a espessura dessa região, mas, a partir dos resultados apresentados, verifica-se que não ultrapassa 15% do raio dos tubos. O mesmo comportamento é observado para os valores de ϵ : na região central, ϵ tem valores maiores que 0,97, enquanto na região anular ϵ tem valores entre 0,85 e 0,95. Este modelo deixa de valer, porém, quando se tem alta concentração de sólidos, ou na região de alta densidade do leito fluidizado circulante, onde não há uma divisão clara, provavelmente devido à grande turbulência existente;
- c) os dados publicados, relativos ao perfil axial de concentração de sólidos, mostram que a correlação desenvolvida por Kwauk e colaboradores (Li Youchou e Kwauk, 1980 e Li Youchou et alii, 1982) pode ser aplicada, restando, porém, desenvolver um método de estimar os parâmetros envolvidos (Weinstein, 1988; Hartge et alii, 1986; Ishii et alii, 1988);
- d) a afirmação feita por Yerushalmi et alii (1976) sobre o escoamento pistonado do gás ("plug flow") foi confirmada recentemente por Lee et alii (1988), através do uso de gás traçador, medindo a dispersão radial e axial do gás;
- e) quanto às transições no regime de escoamento, Satija et alii,

(1985) fizeram medições baseadas no tratamento estatístico das oscilações de pressão diferencial, para caracterização da velocidade de colapso e da transição no escoamento em fase diluída e fase densa. O tratamento dos dados consistiu da determinação da frequência dominante, do desvio padrão dos dados, e da concentração de sólidos (i.é. valor médio da pressão diferencial) obtendo boa concordância para o colapso, comparado às correlações de Yang (1975). No entanto, a caracterização da transição fase diluída-fase densa sem colapso não foi possível pela metodologia utilizada.

2.3 Transporte de calor e massa em leitos fluidizados circulantes

Diferentemente, do que ocorre com leitos fluidizados convencionais, borbulhantes, as trocas de calor e massa em leitos circulantes se dão na suspensão, entre partículas e fluido e entre suspensão e superfícies de contato, uma vez que não há a presença de bolhas como fase adicional no sistema. Por esse mesmo motivo, as trocas na suspensão são otimizadas, uma vez que não ocorre fluxo do fluido em curto-circuito ("by-pass flow") e as velocidades relativas gás-sólidos são máximas (Broedermann, 1981).

2.3.1 Transporte de calor

2.3.1.1 Transporte entre suspensão e parede

Poucos têm sido os trabalhos publicados, relativos ao estudo de troca de calor em leitos fluidizados circulantes. O primeiro trabalho dedicado à troca suspensão-paredes do tubo em leitos circu-

lantes foi apresentado por Kiang et alii (1976). Esses autores realizaram experimentos em equipamento com 0,1m de diâmetro e cerca de 4m de altura, com partículas de catalisador com cerca de 50 μ m de diâmetro. As principais conclusões obtidas são:

- a) pode-se manter alto coeficiente de troca de calor entre leito e parede para uma ampla faixa de valores da velocidade do gás;
- b) a alta recirculação do sólido intensifica a troca de calor;
- c) a taxa de troca de calor suspensão-parede é uniforme em todo o leito.

Finalmente, é proposta uma correlação para o coeficiente de troca de calor de forma similar à já apresentada por Kunii e Levenspiel (1969), isto é:

$$\frac{h_{sw} d_p}{k_g} = \text{const.} (1-\epsilon)^a \cdot \left(\frac{c_g \rho_g}{k_g}\right)^b \cdot \left(\frac{d_p \rho_g u_g}{\mu}\right)^c \cdot \left(\frac{c_p}{c_g}\right)^d \cdot \left(\frac{\rho_p}{\rho_g}\right)^e \quad (2.63)$$

onde a, b, c, d e e são parâmetros a serem determinados.

A Tabela 2.1 apresenta uma série de correlações publicadas para estimativa de h_{sw} , com base em Subbarao e Basu (1986). A essas deve ser adicionada aquela publicada por Santana e Oliveira (1986), para esferas de vidro ($d_p = 240$ e $400 \mu\text{m}$, $\rho_p = 2500 \text{ kg/m}^3$) e partículas de carvão ($d_p = 1020$ e $1440 \mu\text{m}$, $\rho_p = 1750 \text{ kg/m}^3$), escoando em tubo com 0,095m de diâmetro, u_g variando de 4 a 6 m/s, $\frac{W_p}{u_g \rho_g}$ variando de 4 a 10 para esferas de vidro e de 0,4 a 6 para partículas de carvão (medições baseadas na troca suspensão-parede):

$$\frac{h_{sw} d_p}{k_g} = 0,02685 \left(\frac{\rho_g d_p u_g}{\mu}\right)^{0,491} \left(\frac{k_p}{k_g}\right)^{0,124} \left(\frac{c_p}{c_g}\right)^{1,256} \left(\frac{\rho_p}{\rho_g}\right)^{0,521} (1-\epsilon)^{0,412} \quad (2.64)$$

TABELA 2.1 - Sumário das correlações publicadas para estimativa de h_{sw} (Subbarao e Basu, 1986).

Referência	D (m)	Diâm. sonda (m)	d_p (µm)	ρ_p (kg/m ³)	W_p (kg/m ²)	u_g (m/s)	Correlação proposta
a) medição baseada na troca suspensão-parede:							
Mickley e Trilling (1949)	0,1 0,0254	---	70 - 452 102 - 285	2500 2500	---	0,25-4,15 2,47-4,27	$h_{sw} = 0,029 \left(\frac{\rho_p u}{d_p} \right)^{0,263}$ (2.64)
Farber e Morley (1957)	0,0175	---	catalisador à base de alumina e sílica	0 - 270	0 - 270	11,58 - 23	$\frac{h_{sw}^D}{k_g} = 0,14 \left(\frac{D u_p}{\mu} \right) \cdot \left(\frac{\rho_p}{\rho_u} \right)^{0,6} \left(\frac{W_p}{g} \right)^{0,45}$, para $\frac{W_p}{\rho_u} > 1$ (2.65)
Wen e Miller (1961)	0,0064	---	4 - 200	1300-2800	76-10890	0,60-18,9	$\frac{h_{sw}^D}{k_g} = \left(\frac{D u_p}{\mu} \right) \cdot \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^{0,3} \left(\frac{u_t}{g} \right)^{0,21}$ (2.66)
Danziger (1963)	0,0381 0,0476	---	50 catalisador FCC	1070	59,3-276	0,15-6,77	$\frac{h_{sw}^D}{k_g} = 0,0784 \left(\frac{D u_p}{\mu} \right)^{0,66} \left(\frac{W_p}{\rho_u} \right)^{0,45}$ (2.67)
b) medição baseada na troca suspensão-sonda:							
Mickley e Trilling (1949)	0,075	0,0125	40 - 452	2420-2830	---	0,51-2,53	$h_{sw} = 0,00834 \left(\rho_m \frac{0,466}{d_p} \right)^{0,699}$ (2.68)
Kiang et alii. (1976)	0,10	0,019	53	880	---	0,3 - 2,00	(VER TEXTO)
Fraley et alii. (1983)	0,075	0,0095	37	2800	45,3-136	0,56-2,82	$h_{sw} = 1,27 \times 10^{-5} c_s \rho_s \left(\frac{\rho_m}{\rho_d} \right)^{0,518}$ (2.69)

Nem todas as correlações empíricas apresentadas levam em consideração o efeito da concentração de sólidos na suspensão sobre h_{sw} . De qualquer modo, observa-se uma razoável discrepância entre os valores estimados por diferentes correlações, quando aplicadas a um dado sistema. Aparentemente uma causa para isso é a falta de dados experimentais que possibilitem quantificar a influência dos vários fatores envolvidos.

Subbarao e Basu (1986) desenvolveram correlações baseadas num modelo para estimativa do diâmetro, densidade e velocidade dos aglomerados de partículas ("clusters") que se formam em um leito fluidizado circulante. Assumindo que h_{sw} é a soma de duas parcelas: uma referente a esses aglomerados e outra à fração da suspensão mais diluída, a expressão final obtida é:

$$h_{sw} = \left(\frac{4k_{cl}c_{cl}u_g^{1/3}W_p^{2/3}\rho_m}{\pi d_b \rho_p^{2/3} (1-\epsilon_{cl})^{2/3}} \right)^{0,5} \cdot \left(1 + \sqrt{\frac{k_g \rho_g c_g (\epsilon - \epsilon_{cl})}{k_{cl} c_{cl} \rho_m (1 - \epsilon_{cl})}} \right) \quad (2.70)$$

com ϵ_{cl} igual a 0,5.

h_{sw} representa a média no tempo do coeficiente, uma vez que a dinâmica de formação e desaparecimento dos aglomerados de partículas é razoavelmente rápida e não existem modelos desenvolvidos para prever esse fenômeno. A Eq. (2.70) pode ser transformada na Eq. (2.71) se for considerada apenas a troca de calor entre parede e aglomerados, uma vez que, segundo os autores, a troca com a região fora dos aglomerados, aqui chamada de "bolhas" (com $\epsilon = 1$) é muito pequena, comparada à troca com os aglomerados:

$$\frac{h_{sw} D}{k_g} = \left(\frac{6,35 k_p^{0,45} c_{cl} \mu^{0,5}}{\pi k_g} \right)^{0,5} \cdot \left(\frac{\rho_m}{\rho_p^{2/3} \rho_g^{1/3}} \right)^{0,5} \cdot \left(\frac{Du_g \rho_g}{\mu} \right)^{0,5} \cdot \left(\frac{W_p}{\rho_g u_g} \right)^{0,33} \quad (2.71)$$

Mais uma vez aqui, nota-se a grande dependência de h_{sw} com ϵ . Embora os autores comentem que as Eqs. (2.70) e (2.71) estão sendo avaliadas experimentalmente, concluem, com base na comparação com dados de Fraley et alii (1983), que podem ser utilizadas para estimar h_{sw} .

Partindo do mesmo modelo para aglomerados de partículas Basu e Nag (1987) desenvolveram um modelo mais completo para h_{sw} , incluindo não apenas os efeitos de convecção, como também de radiação entre partículas e parede. A correlação final obtida é:

$$h_{sw} = \frac{\delta_{cl}}{\frac{d_p}{10k_{cw}} + \sqrt{\left(\frac{\pi t_{cl}}{4k_{cl}c_{cl}\rho_{cl}}\right)}} + \left((1-\delta_{cl}) \cdot \left(\frac{k_g}{d_p}\right) \left(\frac{c_p}{c_g}\right) \left(\frac{\rho_m}{\rho_p}\right)^{0,3} \cdot \left(\frac{U_t^2}{gd_p}\right)^{0,21} \right) + \sigma \cdot f_{cw} (T_s - T_w) \cdot (T_s^2 - T_w^2) \quad (2.72)$$

Os autores comparam uma série de dados experimentais com a Eq. (2.72), obtendo boa concordância com relação ao efeito da densidade da suspensão e do diâmetro das partículas. Aparentemente, com base nos dados experimentais disponíveis na literatura, a Eq. (2.72) oferece precisão aceitável para estimativa de h_{sw} .

Num artigo de revisão apresentado por Grace (1986), são feitas considerações bastante claras sobre o mecanismo de troca de calor em leito fluidizado circulante. O coeficiente de troca foi decomposto em tres coeficientes, referentes à convecção da fase gasosa, convecção devida às partículas e radiação entre partículas e parede:

$$h_{sw} = h_{gc} + h_{pc} + h_{rad} \quad (2.73)$$

O autor propõe que cada termo da Eq. (2.73) seja estimado da seguinte forma:

a) coeficiente de troca por radiação entre partículas e parede:

$$h_{\text{rad}} = \frac{\sigma (T_s^4 - T_w^4)}{\left(\frac{1}{e_s} + \frac{1}{e_w} - 1\right) (T_s - T_w)} \quad (2.74)$$

aqui, a suspensão é considerada um corpo cinza, sendo o cálculo baseado na área unitária da parede do tubo em contato com a suspensão. Esta, por sua vez, tem emissividade dada por:

$$e_s = 0,5 (1 + e_p) \quad (2.75)$$

b) coeficiente de troca por convecção entre gás e parede:

Conforme Grace apresenta, h_{gc} normalmente é muito menor que h_{pc} e, a altas temperaturas, menor que h_{rad} também. Neste trabalho, h_{gc} é calculado através de correlação apresentada por Gnielinski (1976), a qual leva em consideração a relação L/D do tubo de escoamento:

$$h_{gc} = \frac{0,0214}{D} g (Re^{0,8} - 100) Pr^{0,4} \left[1 + \left(\frac{D}{L}\right)^{2/3} \right] \left(\frac{T_g}{T_w}\right)^{0,45} \quad (2.76)$$

c) coeficiente de troca por convecção devida às partículas

Este é o principal fator na composição de h_{sw} . Grace apresenta um modelo desenvolvido por Martin (1980, 1984) (citado por Grace, 1986), baseado numa analogia entre o movimento das partículas no gás e o movimento de moléculas descrito na teoria cinética dos gases. As correlações são:

$$\frac{h_{pc} d_p}{k_g} = (1-\epsilon) Z (1-\exp(-Nu_{sp}/KM.Z)) \quad (2.77)$$

onde:

$$Nu_{sp} = \frac{h_{sp} d_p}{k_g} = 4 \left[(1 + Kn) \ln(1 + 1/Kn) - 1 \right] \quad (2.78)$$

com

$$Kn = \frac{4}{d_p} \left(\frac{2}{\gamma} - 1 \right) \frac{k_g \sqrt{2\pi RT/M}}{p(2c_g - R/M)} \quad (2.79)$$

O coeficiente de acomodação, γ , é calculado pela expressão:

$$\gamma = (1 + 10^{(0,6B-1-1000/T)/B})^{-1} \quad (2.80)$$

onde $B = 2,80$ para ar.

O grupo adimensional Z vale:

$$Z = \frac{\rho_p c_p}{6k_g} \sqrt{\frac{gd_p^3 (\epsilon - \epsilon_{mf})}{5(1-\epsilon)(1-\epsilon_{mf})}} \quad (2.81)$$

Finalmente, KM é uma constante introduzida por Martin, a qual, segundo Grace (1986), deve ter valores entre 2 e 4. Com $KM = 2,6$, Grace afirma que Martin obteve boa concordância com uma larga faixa de dados experimentais para leitos fluidizados borbulhantes.

Os resultados obtidos pela aplicação das correlações acima parecem concordar razoavelmente com dados experimentais, sendo possível, inclusive, prever tendências de aumento em h_{sw} com a diminuição de ϵ ou de d_p , assim como com o aumento da temperatura da suspensão. Dentre os fatores que compõem h_{sw} , o termo relativo à convecção pelo movimento das partículas é o principal, enquanto o termo relativo à radiação ganha importância com o aumento da temperatura.

2.3.1.2 Transporte entre partícula e fluido

Grace (1986) parte de um balanço energético em uma partícula esférica não reagente para estimar o tempo e a distância para que o equilíbrio térmico entre partícula e fluido seja atingido. Assim como previamente exposto por Kunii e Levenspiel (1969), a distância necessária para que esse equilíbrio ocorra (diferença de 1% entre temperatura da partícula e do fluido) é, nos casos mais desfavoráveis, suficientemente pequeno para que a suspensão possa ser tratada como tendo $T_p = T_g$. Os casos mais desfavoráveis ocorrem quando d_p é grande, u_g é pequeno e não se considera a recirculação interna de sólidos no tubo de escoamento. Mesmo assim, Grace estima em no máximo 0,5m essa distância, quando $d_p = 0,5\text{mm}$, $\epsilon = 0,98$, $T_g = 298\text{K}$, $T_s = 298\text{K}$, $u_g = 12\text{ m/s}$, comparada a uma altura total do reator da ordem de 12m. Para partículas com $d_p = 50\mu\text{m}$ e $\epsilon = 0,8$ (concentração típica na extremidade inferior de um tubo de escoamento), a distância não passa de 2mm.

Este fato parece confirmar-se através da comparação de expressões clássicas para determinação de h_{gp} (Kunii e Levenspiel, 1969) que, para uma partícula esférica isolada:

$$\text{Nu}_{gp} = \frac{h_{gp} d_p}{k_g} = 2 + 0,6 \text{Pr}^{1/3} \text{Re}_p^{1/2} \quad (2.82)$$

e para leitos fluidizados:

$$\text{Nu}_{gp} = \frac{h_{gp} d_p}{k_g} = 0,3 \text{Re}_p^{1/3} \quad (2.83)$$

2.3.2. Transporte de massa

A presença de uma fase emulsão e uma fase bolha, como ocorre no leito fluidizado convencional, não é válida em leitos fluidizados circulantes, onde apenas existe uma suspensão gás-sólidos com concentração variável de sólidos.

Assim sendo, da mesma forma que o transporte de calor entre partícula e fluido, o transporte de massa é restrito à partícula isolada no fluido, podendo o coeficiente k_m ser expresso por:

$$Sh = \frac{k_m d_p y}{D_i} = 2,0 + 0,6 Sc^{1/3} Re_p^{1/2} \quad (2.84)$$

onde y é a fração mássica logarítmica média do componente que não difunde (inerte). Esta correlação, para uma partícula isolada no fluido, é adequada a leitos fluidizados circulantes, nos quais ϵ é normalmente grande.

2.4 Modelagem matemática de reatores gás-sólidos operando em regime de fluidização rápida

Ao contrário do que ocorre com leitos fluidizados convencionais, não há na literatura, até o momento, um número considerável de artigos tratando da modelagem matemática de reatores químicos operando em regime de fluidização rápida. A razão para isso parece residir na ausência de correlações fluidodinâmicas confiáveis, viáveis de aplicação generalizada, tal como acontece com os modelos para leito fluidizado convencional.

A seguir são descritas duas publicações surgidas recentemente, as quais apresentam modelos matemáticos para reatores químicos do tipo leito fluidizado circulante.

A primeira delas (Weiss e Fett, 1986) apresenta um modelo de reator aplicado à decomposição de bicarbonato de sódio, construído na forma de uma série de células, baseado em modelos existentes para leitos fluidizados clássicos (Rajan e Wen, 1980).

No que concerne ao reator, as seguintes hipóteses foram assumidas:

- a) existe uma suspensão homogênea gás-sólidos, com ϵ constante numa dada seção, mas que pode variar com a altura;
- b) os sólidos alimentados são aquecidos instantaneamente, sendo as trocas de calor confinadas às paredes apenas;
- c) a temperatura da carcaça do reator é constante em um dado compartimento, mas varia com as condições do processo;
- d) na última célula do reator (na extremidade superior do mesmo) é assumido reciclo externo;
- e) não há mistura axial do gás (é assumido fluxo pistonado do fluido).

A mistura interna de sólidos é considerada no modelo através de um fluxo de mistura, cujos parâmetros não ficam claros no artigo citado.

Os autores alegam boa concordância com dados experimentais, embora isso pareça ser válido apenas para a temperatura da suspensão e para a concentração de CO_2 nos gases. A concentração de reagente calculada vale, sistematicamente, a metade do valor medido. Es

te modelo foi posteriormente modificado para reações de combustão de carvão, mas não foi possível, até o presente, obter maiores informações a respeito.

O modelo apresentado por Hashimoto et alii (1988) é aplicado a reações catalíticas altamente exotérmicas, especificamente à síntese de metanol. As hipóteses assumidas são:

- a) as partículas são dispersas homogeneamente no leito;
- b) a diferença de temperatura entre gás e sólido é desprezível;
- c) a troca de calor parede-suspensão é expressa na forma de um coeficiente global;
- d) a troca de calor causada pela circulação de partículas é levada em consideração;
- e) a fração de vazios, ϵ , é considerada constante ao longo do tubo de escoamento, mas varia com as condições de operação;
- f) o leito é dividido axialmente em células, nas quais gás e partículas estão completamente misturados;
- g) são desprezados efeitos do espaço acima da região densa do leito ("freeboard").

Entre as hipóteses acima, seria questionável assumir ϵ constante ao longo do reator. No entanto, aparentemente, o reator opera com valores de u_g e W_p tais, que a variação axial de ϵ não é pronunciada, de acordo com o que se deduz das correlações fluidodinâmicas.

Os resultados do modelo apresentam boa concordância com dados experimentais, e os autores apresentam um estudo de sensibilidade com relação aos parâmetros ϵ , vazão de recirculação do sólido e al

tura de cada célula. A conclusão apresentada é que os perfis da concentração do produto no gás e de temperatura são fortemente influenciados pelo valor de ϵ , enquanto os demais parâmetros não têm influência considerável.

Esta conclusão evidencia a importância das correlações fluidodinâmicas nos modelos de leitos fluidizados circulantes, principalmente quando se opera em condições tais que ϵ varie com a altura do tubo de escoamento, como é o caso, normalmente, quando u_g tem valores maiores que u_t .

3. MATERIAIS E MÉTODOS

Este capítulo descreve o material, o equipamento e a metodologia utilizados na realização da parte experimental envolvida no presente trabalho, isto é, nos experimentos voltados à caracterização fluidodinâmica das transições no regime de escoamento, bem como no estudo referente à reação química adotada como reação modelo na modelagem matemática.

3.1 Caracterização de transições no regime de escoamento

3.1.1 Equipamento

Para execução dos experimentos voltados ao estudo fluidodinâmico do sistema de leito fluidizado circulante, foi construído um equipamento experimental conforme esquematizado na Figura 3.1, o qual consiste basicamente de um tubo de escoamento (T) construído em vidro, composto por dois segmentos flangeados, com diâmetro interno de 0,055m e comprimento total de 2,23m. O sólido é alimentado a uma altura de 0,15m acima do distribuidor de gás, e sua vazão é controlada por uma rosca alimentadora (F). O sistema todo de realimentação é composto por dois ciclones em série (C) construídos em vidro, conectados a um silo receptor pulmão (A) acoplado à rosca, a qual é acionada por um motor elétrico acoplado a um redutor de velocidade com variador. O distribuidor de gás (D) é uma placa de vidro sinterizado. Ao longo do tubo de escoamento existem 9 pontos de tomada de pressão, distantes 0,22m entre si (o ponto 1 situa-se 0,5m acima do distribuidor), os quais foram utiliza

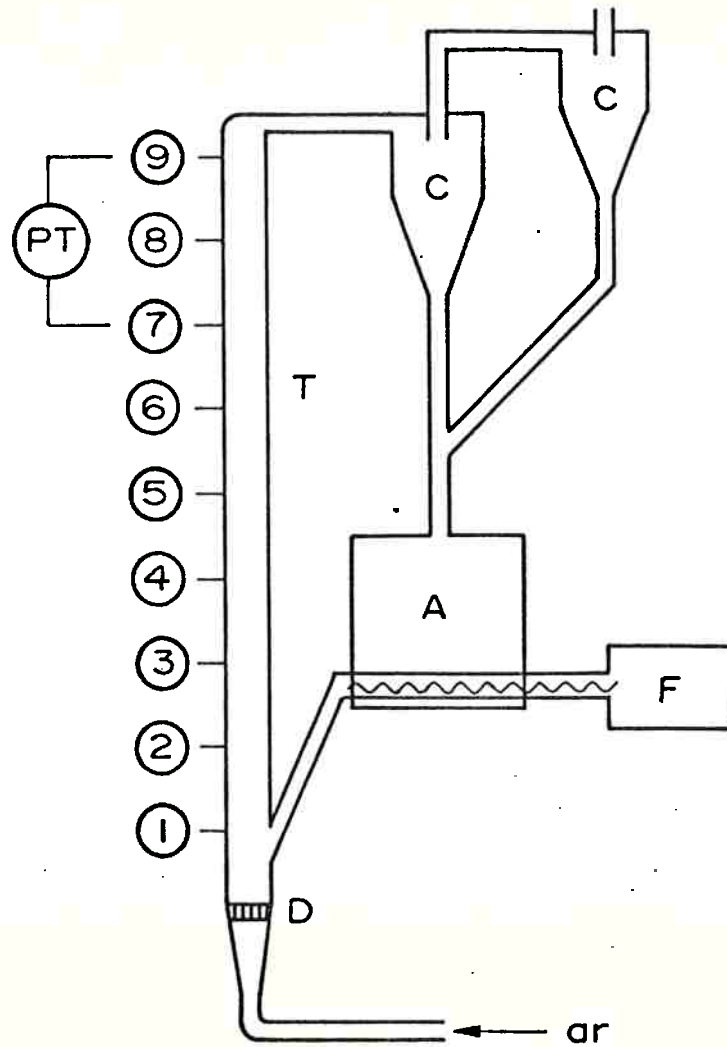


FIGURA 3.1 - Esquema do equipamento construído para os experimentos voltados ao estudo fluidodinâmico do leito fluidizado circulante.

dos tanto para tomada de pressão quanto para introdução de uma sonda isocinética para coleta de partículas, em medições de ϵ a diferentes alturas. A vazão de sólidos é medida através da calibração preliminar da rosca alimentadora. A vazão de gás (ar seco alimentado através de um controlador de pressão) é medida por um rotâmetro e controlada manualmente por uma válvula tipo globo.

A medição de pressão é efetuada por um transdutor de pressão diferencial (PT) de alta precisão, com tomadas de pressão nos pontos 7 e 9 da Figura 3.1, pontos esses escolhidos por situarem-se suficientemente distantes de interferências causadas pela eventual presença da região com maior densidade de sólidos, na parte inferior do tubo de escoamento. O transdutor utilizado, produzido pela "Furness Controls Ltd.", modelo FC 060, gera um sinal amplificado na saída entre 0 e 1V para 5 faixas de pressão, desde 0 a 10Pa até 0 a 1kPa, com frequência de ressonância de 250Hz.

Os sinais gerados pelo transdutor são alimentados a um sistema de aquisição de dados constituído por um conversor analógico/digital, um processador baseado no microprocessador de 32 bits MC 68000 e um computador da série PDP 11. A Figura 3.2 mostra um esquema do sistema montado para processamento dos dados de oscilação de pressão diferencial.

3.1.2 Sólido utilizado

O sólido utilizado nos testes é um minério moído e classificado, cujo componente principal é um mineral constituído por fosfato de alumínio hidratado, o qual foi também utilizado nos estudos de decomposição térmica, descritos no item 3.2. A Tabela 3.1 apresenta as características das duas frações granulométricas utilizadas nos experimentos.

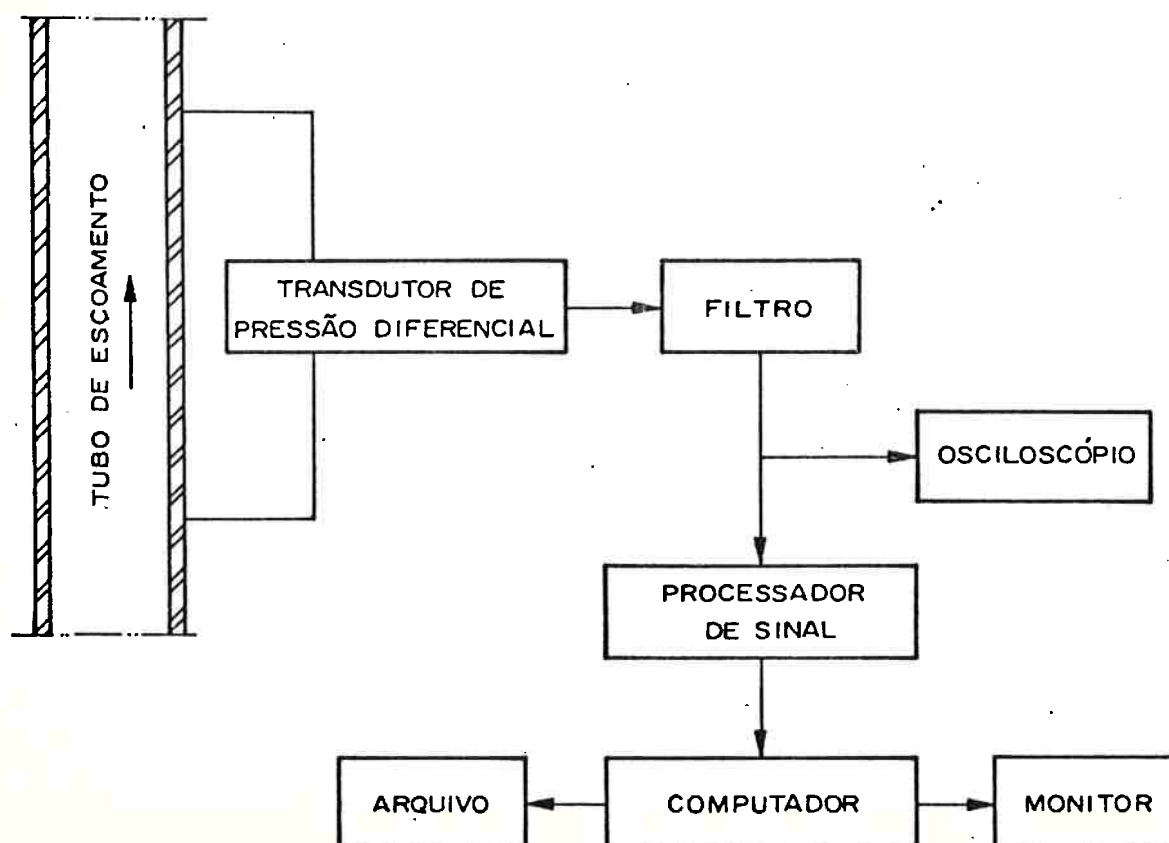


FIGURA 3.2 - Esquema do sistema de processamento dos sinais de oscilação de pressão diferencial no leito fluidizado circulante.

TABELA 3.1 - Características físicas do sólido utilizado nos estudos.

d_p (μm)	120	200
1. Distribuição granulométrica:		
diâmetro (μm)	Fração retida (%)	
100	22	--
120	45	--
130	21	--
150	12	--
160	--	12
180	--	24
200	--	25
230	--	21
250	--	18
2. Densidade da partícula (kg/m^3)		
	2550	2550
3. Esfericidade		
	0,8	0,8
4. $u_{mf}^{(a)}$ (m/s)		
	0,012	0,039
5. $u_t^{(b)}$ (m/s)		
	0,66	1,18

(a) a 20°C , estimada conforme Nakamura et alii (1985)

(b) a 20°C , estimada conforme Yang (1973, 1985).

3.1.3 Condições experimentais

Trabalhou-se com velocidades de gás de até 2,0 m/s e densidades de fluxo de sólido de até 6,7 kg/m²s. A taxa de alimentação de sólidos foi limitada pelas características construtivas da rosca alimentadora. Porém, o uso da rosca assegura controle preciso da alimentação de sólidos e permitiu estudar todos os regimes de escoamento do sistema.

3.1.4 Tratamento dos dados de pressão diferencial

A metodologia de tratamento dos dados de pressão diferencial envolveu a análise estatística das séries temporais das oscilações do sinal gerado pelo transdutor, resultantes do processo de aparecimento e desaparecimento de aglomerados com maior densidade de partículas, ou da presença de bolhas na fase densa, ou ainda da ressonância do próprio sistema em consequência do escoamento do gás. Foram medidos tanto o valor médio das oscilações, quanto as frequências dominantes de oscilação de pressão diferencial. Além disso, estudou-se o ajuste dos dados a modelos auto-regressivos. Uma breve descrição dos métodos utilizados é apresentada a seguir.

3.1.4.1 Análise espectral (Bendat e Piersol, 1971)

A análise espectral envolveu, no presente caso, a estimação da frequência dominante e do valor médio das oscilações de pressão diferencial observadas nos diferentes regimes de escoamento estudados, obtida através do cálculo da função densidade espectral de potência, $G_x(f)$, dada por:

$$G_x(f) = 2 \int_{-\infty}^{+\infty} R_x(\tau) e^{-i2\pi f\tau} d\tau \quad (3.1)$$

onde $R_x(\tau)$ é a função de autocorrelação do sinal aleatório $x(t)$, para diferentes intervalos de tempo τ (no caso, $x(t)$ é o valor da pressão diferencial no instante t):

$$R_x(\tau) = \frac{1}{T} \int_0^T x(t) \cdot x(t + \tau) dt \quad (3.2)$$

Os dados aleatórios $x(t)$ são assumidos ergódicos, de modo que as propriedades dos dados podem ser determinadas a partir de médias temporais de registros de amostras individuais.

Na prática, porém, $G_x(f)$ é estimada diretamente a partir de N valores de $x(t)$ (distantes entre si por um intervalo de tempo $\Delta t \leq 1/2fc$, onde fc é a frequência de corte) através do uso de um algoritmo baseado na transformada rápida de Fourier (FFT, ou "fast Fourier transform"), sem necessidade de se estimar $R_x(\tau)$. O método utilizado, conhecido por "Cooley-Tukey" pode ser visto em detalhe em Bendat e Piersol (1971). Neste caso,

$$\tilde{G}_x(f) = \frac{2}{T} |X(f, T)|^2 \quad (3.3)$$

onde $T = N\Delta t$, com $N = 2^p$ ($p =$ inteiro positivo)

$$\text{onde } X(f, T) = h \sum_{n=0}^{N-1} x_n \exp(-i2\pi fn\Delta t) \quad (3.4)$$

Procedimentos para cálculo de $X(f, T)$ e $\tilde{G}_x(f)$ são normalmente disponíveis na literatura na forma de rotinas de computador prontamente adaptáveis (por exemplo, ver IEEE, 1979).

3.1.4.2 Ajuste dos dados a modelos auto-regressivos

O ajuste é baseado na modelagem paramétrica de séries temporais.

Modelos paramétricos de séries temporais são baseados na geração de uma série temporal $|X_i|$, a qual é considerada centralizada em relação à média μ_x (isto é, $X_i = X'_i - \mu_x$, onde X'_i é o valor do dado em $t = t_i$), a partir de um processo de ruído branco $|w_i|$, através de um filtro linear:

$$X_i \longrightarrow \text{filtro linear} \longrightarrow w_i.$$

O ruído branco é um conjunto de valores do sinal com distribuição normal, média zero e variância σ_w^2 (para ruído branco, $G_x(f) =$ constante para qualquer valor de f).

Três modelos básicos podem ser definidos: modelo auto-regressivo (AR), modelo de deslocamento da média (MA, "moving average") e modelo auto-regressivo, com deslocamento da média (ARMA, "autorregressive moving average").

No modelo auto-regressivo de ordem p , o valor de $X(t)$ em qualquer instante de tempo t (aqui denominado X_t) é expresso como uma combinação linear finita de valores anteriores da série temporal, mais o ruído branco, isto é:

$$X_t = a_1 X_{t-1} + a_2 X_{t-2} + \dots + a_p X_{t-p} + w_t \quad (3.5)$$

No modelo de deslocamento da média de ordem q , o valor X_t é expresso a partir dos valores atual e anteriores de w_t :

$$X_t = w_t + b_1 w_{t-1} + b_2 w_{t-2} + \dots + b_q w_{t-q} \quad (3.6)$$

Finalmente, o modelo ARMA combina os dois modelos anteriores, possibilitando maior flexibilidade no ajuste de séries temporais:

$$X_t = a_1 X_{t-1} + a_2 X_{t-2} + \dots + a_p X_{t-p} + w_t + b_1 w_{t-1} + b_2 w_{t-2} + \dots + b_q w_{t-q} \quad (3.7)$$

No presente estudo, os valores da pressão diferencial em cada instante de tempo foram ajustados por um modelo auto-regressivo (AR), conforme a Eq. (3.5). Os parâmetros do modelo podem ser obtidos utilizando-se o fato de que a função autocorrelação, Eq. (3.2), é uma função par, isto é,

$$R_x(-\tau) = R_x(\tau) \quad (3.8)$$

Assim, multiplicando-se a Eq. (3.5) por $X_{t-\tau}$ obtêm-se:

$$X_t X_{t-\tau} = a_1 X_{t-1} X_{t-\tau} + a_2 X_{t-2} X_{t-\tau} + \dots + a_p X_{t-p} X_{t-\tau} + w_t X_{t-\tau} \quad (3.9)$$

Integrando-se a Eq. (3.9) para um intervalo de tempo de 0 a T, dividindo-se pelo segmento de tempo T e tomando-se o limite quando T tende ao infinito obtêm-se:

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T X_t X_{t-\tau} dt = R_x(-\tau) = R_x(\tau) = a_1 R_x(\tau-1) + a_2 R_x(\tau-2) + \dots + a_p R_x(\tau-p) + \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T w_t X_{t-\tau} dt \quad (3.10)$$

O último termo à direita da Eq. (3.10) representa a função autocorrelação de variáveis não correlacionadas, pois w_t é um ruído branco:

$$R_w(\tau) = \lim_T \frac{1}{T} \int_0^T w_t w_{t+\tau} dt = \sigma_w^2 \text{ para } \tau = 0$$

$$= 0 \text{ para } \tau \neq 0 \quad (3.11)$$

Portanto, a Eq. (3.10) pode ser escrita, para $\tau > 0$, como:

$$R_x(\tau) = a_1 R_x(\tau-1) + a_2 R_x(\tau-2) + \dots + a_p R_x(\tau-p), \tau > 0 \quad (3.12)$$

Finalmente, substituindo-se na Eq. (3.12) valores de $\tau=1,2,\dots,p$ obtêm-se um conjunto de equações lineares com os parâmetros a_1, a_2, \dots, a_p em termos de $R'_x(1), R'_x(2), \dots, R'_x(p)$, onde $R'_x(l) = \frac{R_x(l)}{R_x(0)}$, sen $R_x(0)$, num processo estacionário, constante para diferentes valores de τ (note-se o uso da Eq. 3.8):

$$R'_x(1) = a_1 + a_2 R'_x(1) + \dots + a_p R'_x(p-1)$$

$$R'_x(2) = a_1 R'_x(1) + a_2 + \dots + a_p R'_x(p-2) \quad (3.13)$$

$$\vdots$$

$$\vdots$$

$$R'_x(p) = a_1 R'_x(p-1) + a_2 R'_x(p-2) + \dots + a_p$$

As expressões acima são conhecidas como equações de Yule-Walker (Box e Jenkins, 1976), sendo os coeficientes estimados normalmente por vários algoritmos computacionais.

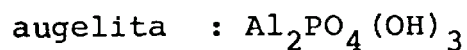
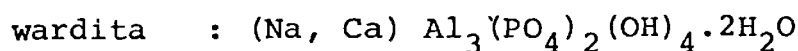
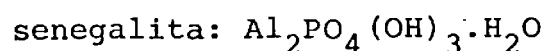
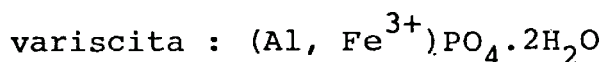
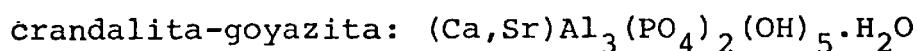
3.2 Estudos experimentais com a reação modelo: testes de calcinação de minério de fosfato de alumínio em reatores de leito fluidizado, escala de bancada

Os experimentos de calcinação de minério de fosfato de alumínio envolveram essencialmente três etapas. A primeira delas consistiu da caracterização das transformações térmicas de 4 amostras de minério, provenientes de diferentes ocorrências, localizadas nos Estados do Pará e Maranhão. Apenas uma das amostras, procedente da ocorrência de Jandiá - PA, foi utilizada nas etapas subsequentes. A segunda etapa consistiu da determinação da cinética aparente da reação química de decomposição do minério e da avaliação do calor específico da matéria-prima, bem como da entalpia da reação. Finalmente, a terceira etapa consistiu de testes contínuos de calcinação do minério em dois tipos de reatores: leito fluidizado convencional (borbulhante) e leito fluidizado circulante.

3.2.1 Matéria-prima

As ocorrências de rochas contendo fosfato de alumínio próximas ao litoral dos Estados do Pará e Maranhão são conhecidas desde o início do século XX, quando a reserva da ilha de Trauíra (MA) era considerada a única grande reserva fosfática do Brasil (Braun, 1983). No entanto, em função tanto da distância dessas reservas em relação aos centros consumidores de fertilizante fosfatado (principal produto decorrente da exploração dessas rochas), como em função da ausência de mercado na região, como ainda devido à tradição da indústria brasileira de fertilizantes, a qual adota tecnologia baseada na acidulação de fosfatos de cálcio (apatita), tais reservas nunca chegaram a ser exploradas comercialmente.

Os fosfatos de alumínio em questão, cuja localização pode ser vista na Figura 3.3, foram formados por intemperismo laterítico acentuado, de rochas-mães primariamente mineralizadas por fosfatos (Costa e Sá, 1980). Os principais minerais fosfáticos que podem estar presentes nesses minérios são:



Além desses, encontram-se em menores quantidades, goethita, gib_sita, boehmita, quartzo e anatásio.

A reserva total dos vários depósitos conhecidos na região chega a quase 30 milhões de toneladas de minérios (Costa, 1984), sendo mais da metade situada na ilha de Trauira e na serra de Pirocaua (MA).

O processamento industrial dessas rochas envolve o aquecimento, com a perda de água combinada e formação de uma fase amorfa, na qual o fósforo encontra-se disponível como nutriente vegetal.

A calcinação de rochas similares às aqui utilizadas é praticada em escala comercial no Senegal, utilizando-se fornos rotativos, e nas ilhas Christmas (Oceania), em reatores de leito fluidizado convencional (borbulhante) a temperaturas de cerca de 500°C.

Diversos estudos agronômicos têm sido efetuados no Brasil, com material calcinado preparado experimentalmente no IPT, pela EMBRAPA (Souza, 1980; Cruz, 1981); Goedert e Lobato, 1981) com resultados animadores.

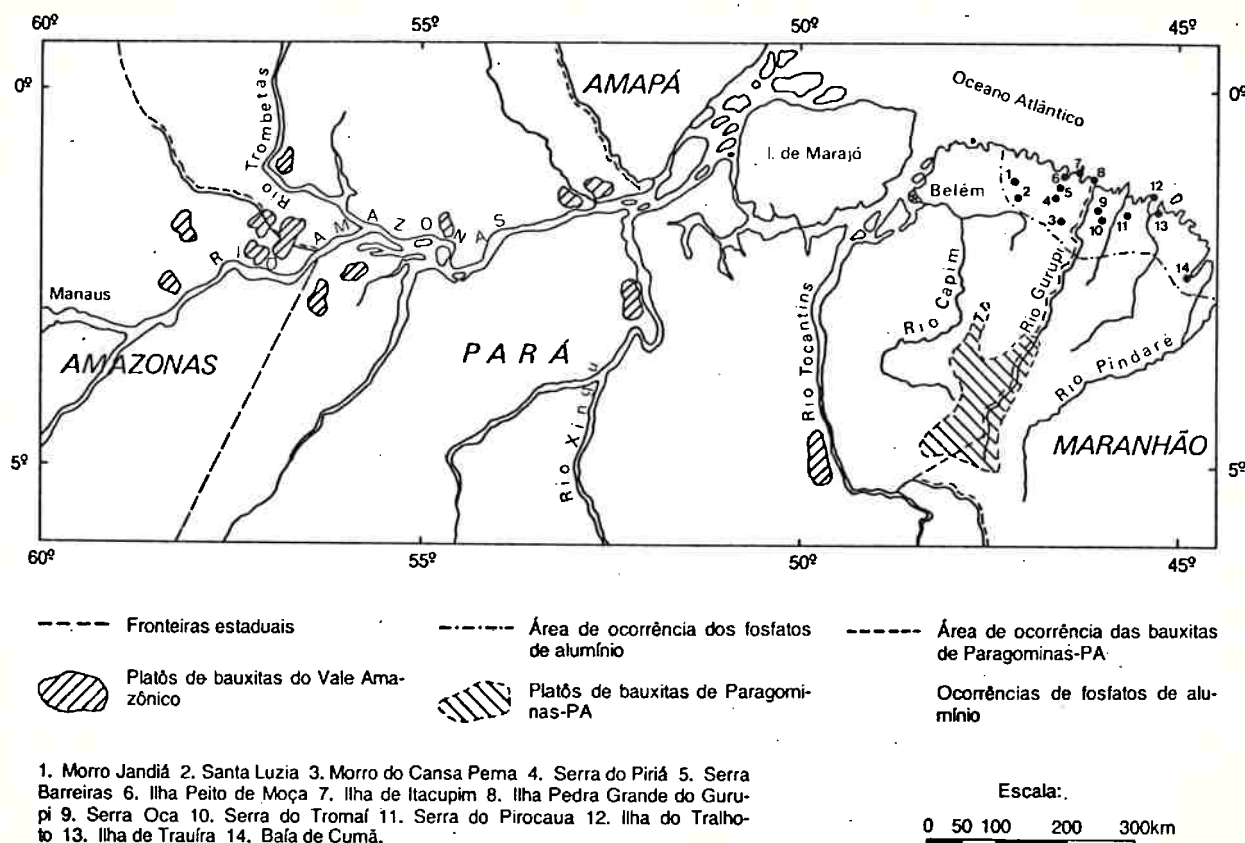


FIGURA 3.3 - Localização das ocorrências de minérios contendo fosfato de alumínio no Brasil.

A Tabela 3.2 apresenta a composição química das 4 amostras estudadas, procedentes das ocorrências de Jandiá (PA), Pirocaua (MA) e Trauira (MA) (duas amostras). Em todas elas, o principal mineral fosfático presente é a crandalita-goyazita, com pequenas quantidades de wardita.

3.2.2 Equipamento e procedimento experimental

3.2.2.1 Caracterização das transformações térmicas

Esta etapa do estudo envolveu o aquecimento das amostras a diferentes temperaturas entre 300 e 1100°C, por 1 hora, seguido do resfriamento ao ar. O procedimento envolveu a colocação de 5g de amostra moída (até passar em malha ABNT nº 100) em uma navícula de alumina e colocação desta em um forno elétrico estacionário pré-aquecido à temperatura desejada. A medição da temperatura era feita por dois termopares colocados ao lado da navícula, junto a esta.

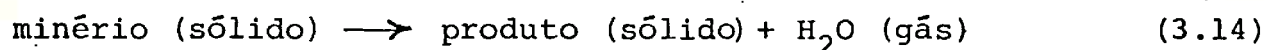
As amostras calcinadas eram examinadas por difração de raios X (difratômetro marca Rigaku, modelo Geigerflex, com tubo de cobre e detecção da radiação CuK_α), bem como enviadas para determinação da quantidade de P_2O_5 solúvel em solução neutra de citrato de amônio, conforme método oficial (Ministério da Agricultura, S.D.). Este método, dadas as características do produto de calcinação, é o mais adequado dentre os métodos oficialmente adotados, para avaliar a disponibilidade do fósforo como nutriente vegetal (Braun, 1983).

TABELA 3.2 - Composição química (componentes principais) das amostras testadas (base seca).

AMOSTRA	COMPOSIÇÃO QUÍMICA (% em massa)					
	P ₂ O ₅	CaO	SiO ₂	Fe ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	Perda ao Fogo
Jandiã	20,6	4,58	29,4	6,32	20,2	14,8
Pirocaua	16,0	2,41	7,49	20,3	28,8	19,7
Trauira 1	27,2	6,91	2,84	4,21	29,3	18,5
Trauira 2	20,9	4,22	11,5	14,6	24,2	17,2

3.2.2.2 Determinação da cinética aparente, calor específico e entalpia de reação (amostra de Jandiã)

Uma vez que a decomposição térmica da matéria-prima estudada envolve a perda de massa, segundo a equação:



a taxa de conversão X_A em cada instante de tempo t foi avaliada através da massa perdida da amostra original, isto é:

$$X_A = \frac{m(t) - m_{in}}{m_f - m_{in}} \quad (2.15)$$

onde $m_f - m_{in}$ equivale a perda total de massa da amostra (perda ao fogo na Tabela 3.2).

Para registro de $m(t)$ foi utilizada uma termobalança marca Shimadzu, modelo TG20, acoplada a um registrador, com nitrogênio como gás de arraste do vapor de água liberado, com velocidade de aquecimento e vazão do gás de arraste ajustáveis.

O calor específico do sólido e a entalpia da reação de decomposição foram medidos por um calorímetro diferencial de varredura (DSC) marca Perkin-Elmer, modelo DSC2, com limite na temperatura de operação de 500°C e taxa de aquecimento variável, utilizando-se nitrogênio como gás de arraste e padrão de safira.

3.2.2.3 Testes de calcinação em reatores de leito fluidizado convencional e circulante

Os testes de calcinação da rocha fosfática de Jandiã foram realizados em escala de bancada, em testes contínuos, os quais não tiveram o objetivo de otimizar as condições de processamento, mas apenas de obter dados que possibilitassem uma avaliação comparativa das características de cada reator em relação ao processo. Os reatores de laboratório, construídos para estes testes, são a seguir descritos.

3.2.2.3.1 Reator de leito fluidizado convencional

Um esquema do equipamento utilizado pode ser visto na Figura 3.4.

Este reator, construído em aço inóx, tem 0,14m de diâmetro interno e 0,14m de altura total do leito. O distribuidor de gás foi construído na forma de um sanduiche, com uma camada de lã de alumina entre duas placas perfuradas de aço inóx, as quais tinham 128 furos de 1mm cada, distribuídos em triângulo. A rocha era alimentada por meio de um alimentador de rosca e o produto retirado por transbordamento.

O reator era aquecido através tanto de pré-aquecimento do ar, por meio de um pré-aquecedor localizado abaixo do distribuidor de ar e acoplado ao reator, quanto por mantas com resistências ao redor do reator. O controle de temperatura era feito automaticamente, a partir de medições por termopares localizados no leito. As condições de operação eram monitoradas através de medição de temperatura e perda de pressão ao longo do leito, bem como pela medição

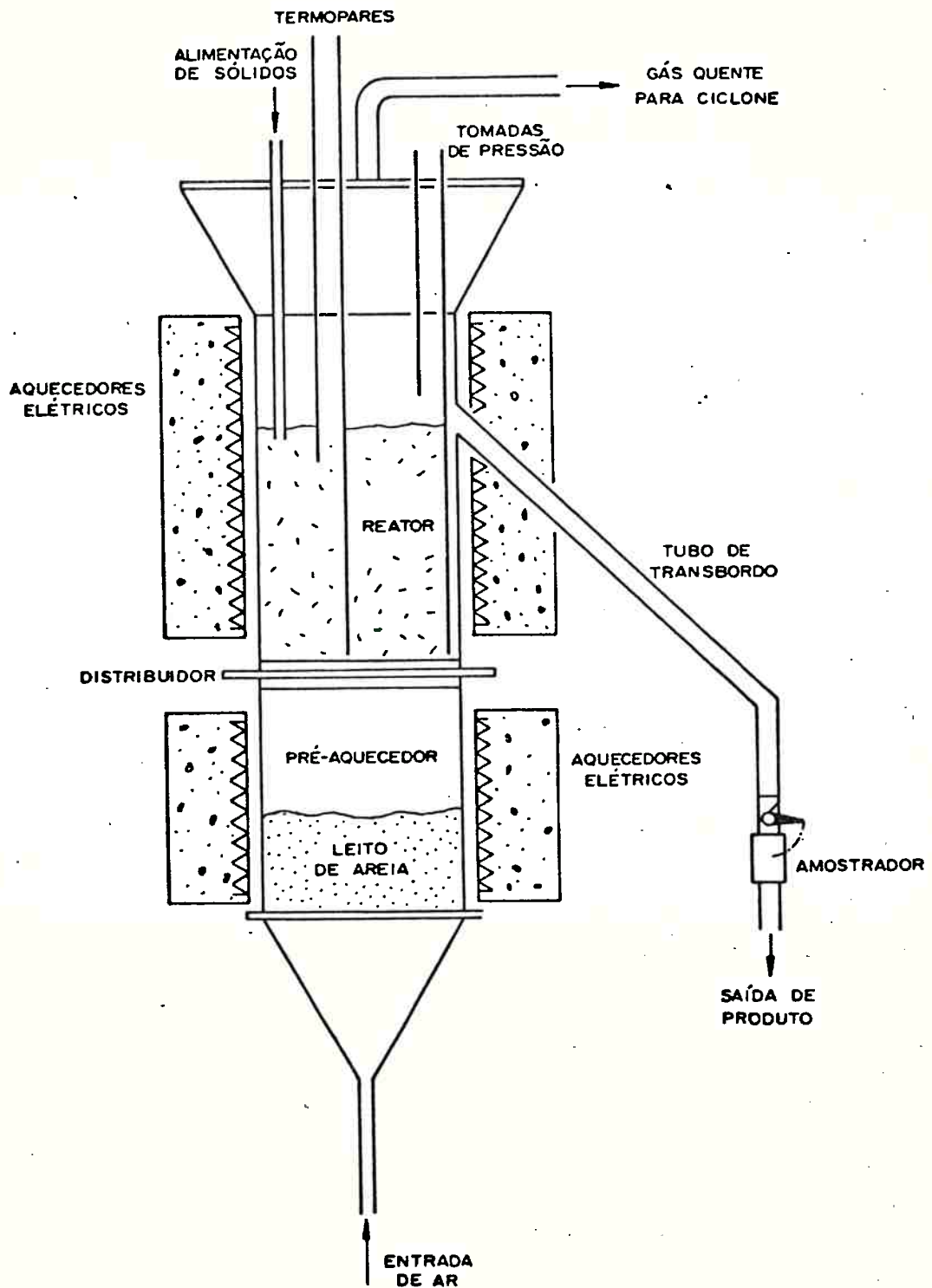


FIGURA 3.4 - Esquema do reator de leito fluidizado convencional utilizado nos testes contínuos em laboratório.

das vazões de gás e de sólidos. O produto era amostrado tanto através de retirada de amostras de dentro do leito, a diferentes alturas, por meio de uma sonda, como através de um amostrador no tubo coletor de produto.

3.2.2.3.2 Reator de leito fluidizado circulante

O reator utilizado nos testes (ver Figura 3.5) é constituído por um tubo vertical de aço inóx, com diâmetro interno de 0,07m e altura de 1,30m. Este tubo é acoplado a um ciclone, onde os sólidos são separados e recirculados ao reator, o que é feito através de um selo de pressão, constituído por um pequeno leito fluidizado, o qual é capaz de manter vazão uniforme de sólidos. A massa de sólidos no reator é mantida constante através do controle do nível de sólidos neste pequeno leito fluidizado, o que é feito através do monitoramento visual por uma janela de vidro e pelo acionamento manual de uma válvula desvio. Os demais itens do equipamento (aquecimento, instrumentos, etc.) são similares ao reator de leito fluidizado clássico, já descrito.

3.2.2.4 Procedimento experimental

O procedimento experimental para ambos os reatores consistiu, inicialmente, da introdução de uma massa determinada de matéria-prima sólida, do ajuste da velocidade de gás desejada e início do aquecimento. Quando o reator atingia a temperatura desejada, iniciava-se a alimentação e retirada contínuas de sólidos. Amostras de produtos eram retiradas a intervalos de aproximadamente 15 minutos. Depois de ser atingido regime permanente, com temperaturas constantes no sistema, a operação continuava por mais duas horas aproxima

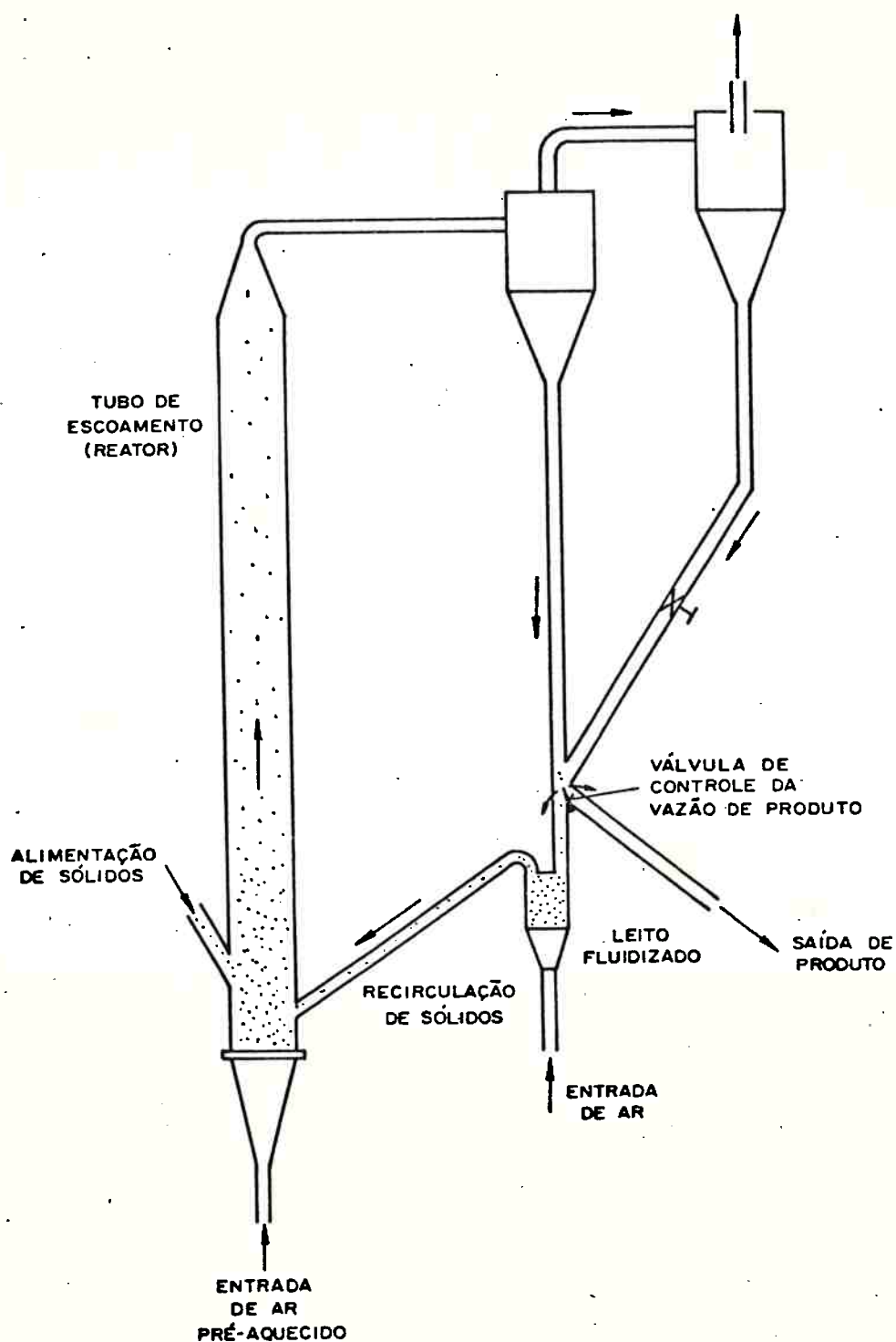


FIGURA 3.5 - Esquema do reator de leito fluidizado circulante utilizado nos testes contínuos em laboratório.

damente. O tempo total de cada teste contínuo era de cerca de 8 horas. Além das temperaturas e vazões, as amostras do produto eram avaliadas quanto à fração convertida, a qual era medida através da perda ao fogo das mesmas, isto é:

$$X_A = \frac{(1 - \text{perda ao fogo da amostra})}{\text{perda ao fogo total (Tabela 3.2)}} \quad (3.16)$$

4. RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO

Os resultados experimentais são a seguir apresentados e discutidos na mesma ordem utilizada no Capítulo 3 para a descrição da metodologia, com vistas à caracterização das transições nos regimes de escoamento, bem como ao estudo da reação química modelo.

4.1 Caracterização das transições no regime de escoamento

Em experimentos preliminares, observou-se, através da análise espectral das oscilações de pressão diferencial, que praticamente toda a energia contida na flutuação de pressão situava-se na faixa de frequência entre 0 e 25 Hz. Este fato, propiciou que fosse feita uma filtragem do sinal gerado no transdutor por um filtro de alta frequência, com frequência de corte igual a 25 Hz, o que eliminou a presença de interferências no sinal, causadas pela rede elétrica.

Para se obter uma resolução adequada na frequência das oscilações, o sinal filtrado foi lido pelo sistema de aquisição com uma frequência de amostragem igual a 50 Hz.

O comprimento total do intervalo de tempo de amostragem, ΔT , bem como o número de pontos por segmento, N , foi arranjado de forma a se obter um compromisso adequado entre a resolução de frequência, Δf , e o erro relativo da função densidade espectral, Err , os quais, conforme Bendat e Piersol (1971) são definidos como:

$$\Delta f = \frac{1}{N\Delta t} \quad (4.1)$$

e

$$\text{err} = \frac{1}{q^{1/2}} \quad (4.2)$$

onde Δt = intervalo de tempo entre pontos amostrados (s);

q = número de segmentos no intervalo de tempo T .

isto é:

$$\Delta T = N \cdot q \cdot \Delta t \quad = (4.3)$$

Nos experimentos optou-se pelos seguintes valores: $\Delta t = 0,02$ s;

$N = 500$ pontos por segmento; $q = 24$ segmentos, de modo que:

$$\Delta T = 240 \text{ s}$$

$$\Delta f = 0,1 \text{ Hz}$$

$$\text{err} = 0,2$$

Todas as medições foram efetuadas mantendo-se a vazão de sólidos, W_p em um valor desejado e variando-se a vazão de gás, G . A uma dada vazão de sólidos, a partir de altos valores de G , três regimes básicos de escoamento puderam ser visualmente observados, com o decréscimo de G :

- a) escoamento em fase diluída, com as partículas fluindo no sentido ascendente numa suspensão aparentemente uniforme;
- b) escoamento em fase densa, com a presença de "nuvens" com maior concentração de partículas, fluindo em meio à suspensão menos densa; este regime é caracterizado por recirculação intensa de partículas, as quais se movem com trajetória tortuosa; junto à parede do tubo é notado escoamento descendente de partículas;

c) escoamento em fase densa turbulenta, com a acumulação, na parte inferior do tubo, de um leito denso de partículas. A turbulência deste leito diminui sensivelmente com a diminuição de G , passando a um leito borbulhante convencional.

No que se refere às oscilações de pressão diferencial, a Figura 4.1 ilustra o aspecto da série temporal (centralizada no valor médio) e da função densidade espectral de potência quando apenas ar escoava no tubo de teste, sem a presença de sólidos. O espectro concentra-se em torno da frequência dominante de cerca de 18 Hz, correspondendo à frequência de ressonância do sistema.

No regime de escoamento em fase diluída, não é observada diferença no espectro de frequências de oscilação de pressão diferencial, em relação ao escoamento de ar apenas, como ilustra a Figura 4.2.

Com a diminuição na velocidade do gás, observa-se uma transição para o escoamento anular do sólido, em fase diluída, associada à formação, junto à parede do tubo, de uma camada estreita, na qual o sólido flui no sentido descendente. Com o aumento na concentração de partículas, inicia-se a formação das "nuvens" de partículas já mencionadas. A formação e desaparecimento dessas regiões com aglomerados de partículas causa pequenas alterações nas oscilações de pressão diferencial, fazendo com que o espectro de frequências de oscilações apresente um componente de baixa frequência, conforme mostrado na Figura 4.3.

Com a diminuição subsequente de G , a tendência à formação de aglomerados aumenta, junto com o aumento na concentração de sólidos. Essa maior tendência à segregação faz com que o espectro de frequências apresente maior tendência à concentração de energia no

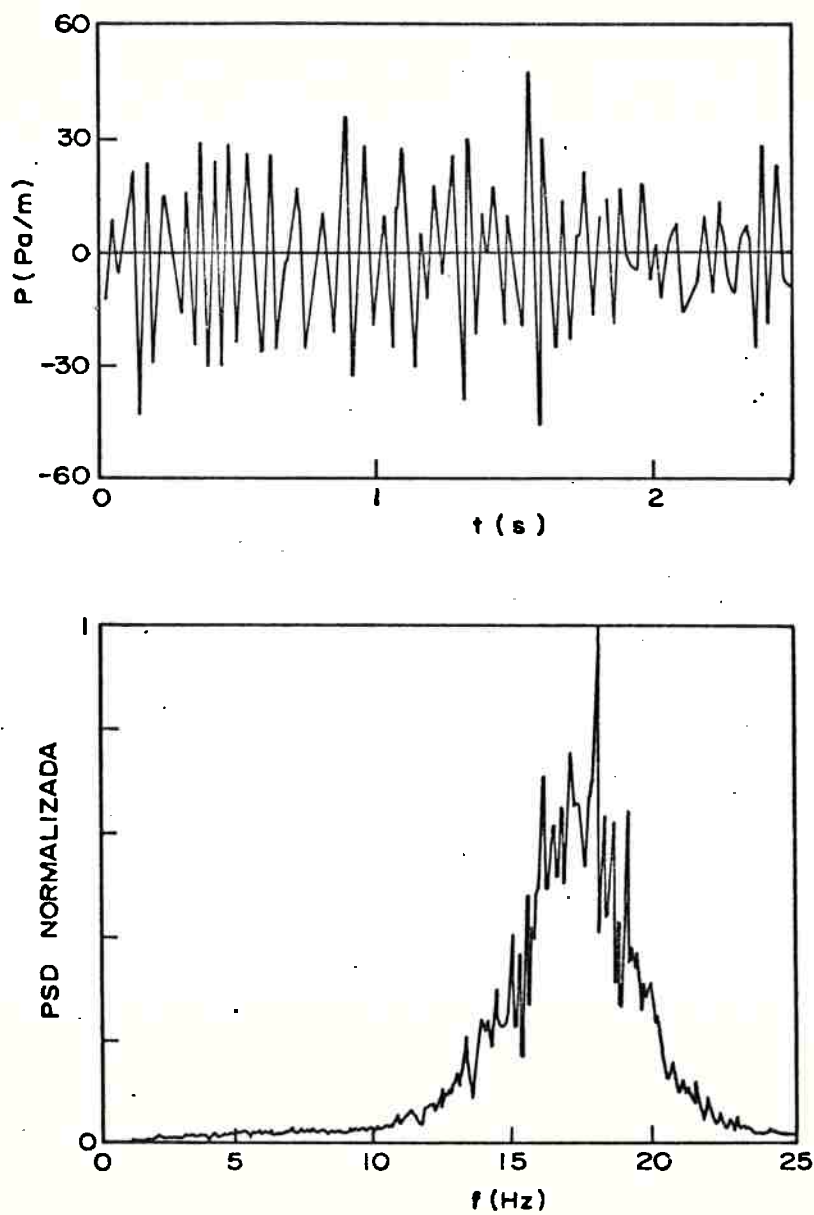


FIGURA 4.1 - Série temporal (centralizada no valor médio) e espectro de potência das flutuações de Δp , para $W_p = 0$ e $u_g = 2,04$ m/s.

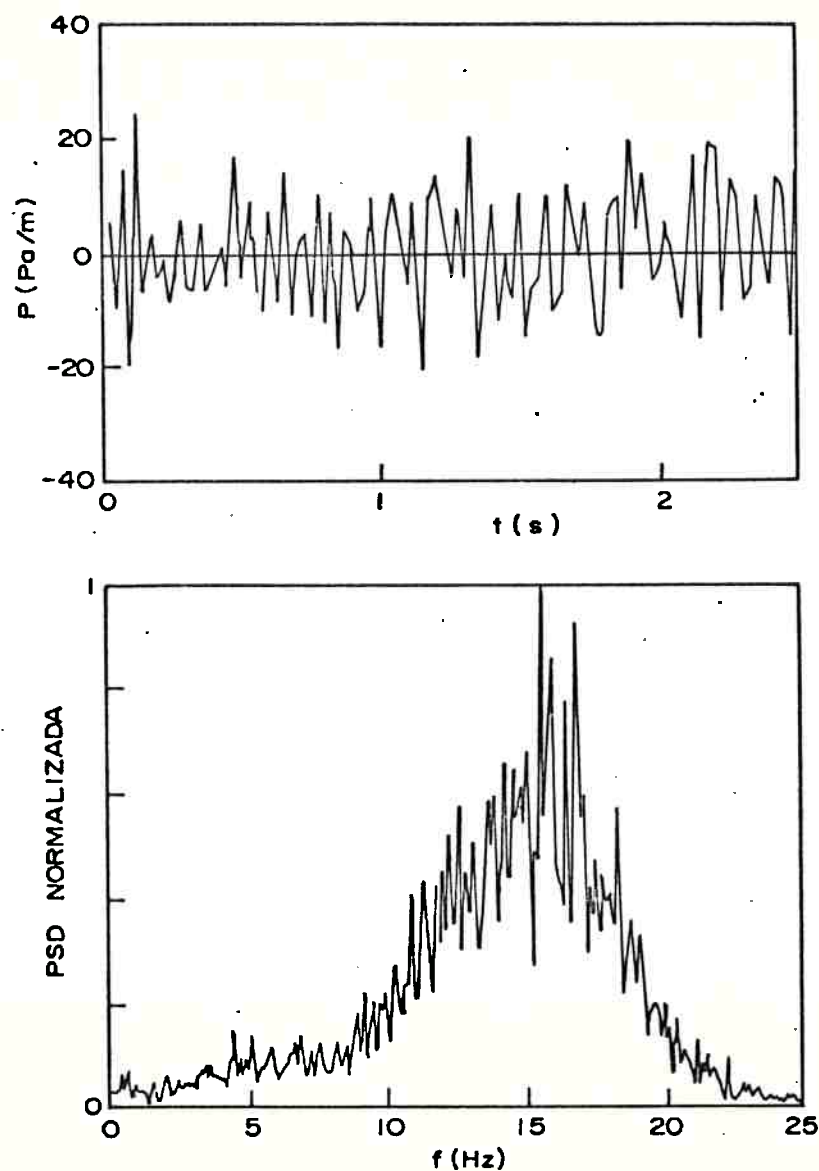


FIGURA 4.2 - Série temporal (centralizada no valor médio) das oscilações de Δp , para $W_p = 0,21 \text{ kg/m}^2\text{s}$, $u_g = 2,04 \text{ m/s}$ e $d_p = 200\mu\text{m}$.

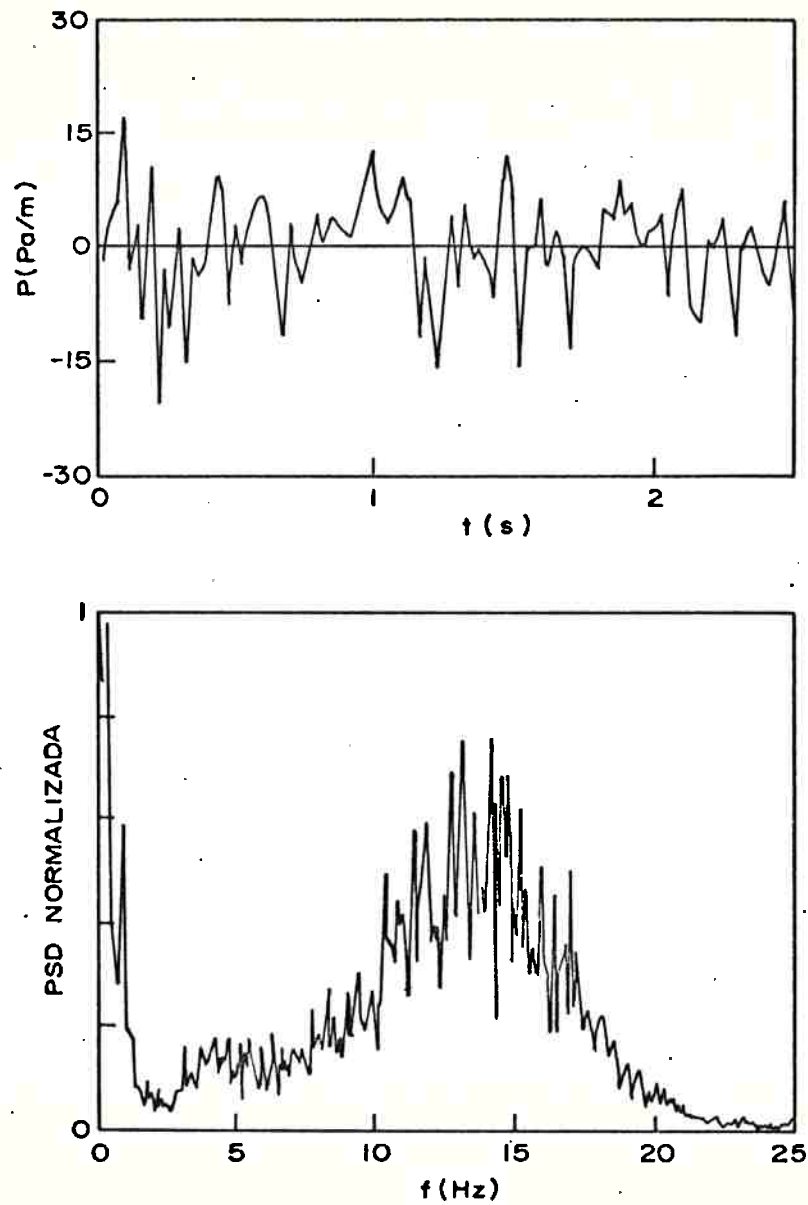


FIGURA 4.3 - Série temporal (centralizada no valor médio) e espectro de potência das flutuações de Δp , para $w_p = 1,22 \text{ kg/m}^2\text{s}$, $u_g = 1,88 \text{ m/s}$ e $d_p = 200\mu\text{m}$.

componente de baixa frequência, conforme ilustra a Figura 4.4.

Em termos do valor médio da pressão diferencial, as transições descritas são menos nítidas, confirmando observações já feitas por Leung (1981). A Figura 4.5 ilustra esse fato. Para altas velocidades do gás, o principal componente da queda de pressão é o atrito suspensão-parede. Esta região, de escoamento uniforme em fase diluída, corresponde ao trecho A-B da curva de dp/dz em função de u_g . A transição para regime de escoamento em fase diluída anular é pouco nítida na Figura 4.5, mas situa-se no segmento da curva entre os pontos B e C. A transição para fase densa, correspondendo ao aumento da concentração de sólidos, corresponde ao segmento C-D na curva da Figura 4.5, representando um aumento brusco no valor médio de dp/dz .

A partir deste ponto, ainda mantendo-se W_p constante, a diminuição de G faz com que o gás já não seja capaz de transportar todo o sólido alimentado, causando o acúmulo deste na parte inferior do tubo, na forma de um leito denso, ao passo que a concentração de sólidos decresce com a altura do tubo. Esta transição corresponde ao ponto D na Figura 4.5, denominado colapso, ou "choking". O ponto D' corresponde a dp/dz na parte inferior do tubo, na região mais densa. Conforme se pode observar, dp/dz aumenta sensivelmente com a diminuição de u_g na parte inferior do tubo, devido à diminuição na expansão do leito. Ao mesmo tempo, na parte superior do tubo, dp/dz diminui, devido à menor concentração de sólidos, e formação de um leito borbulhante com superfície nítida. A velocidade de colapso, u_{gc} , pode ser claramente determinada através do ponto D na Figura 4.5, isto é, do máximo na curva de dp/dz na parte superior do tubo.

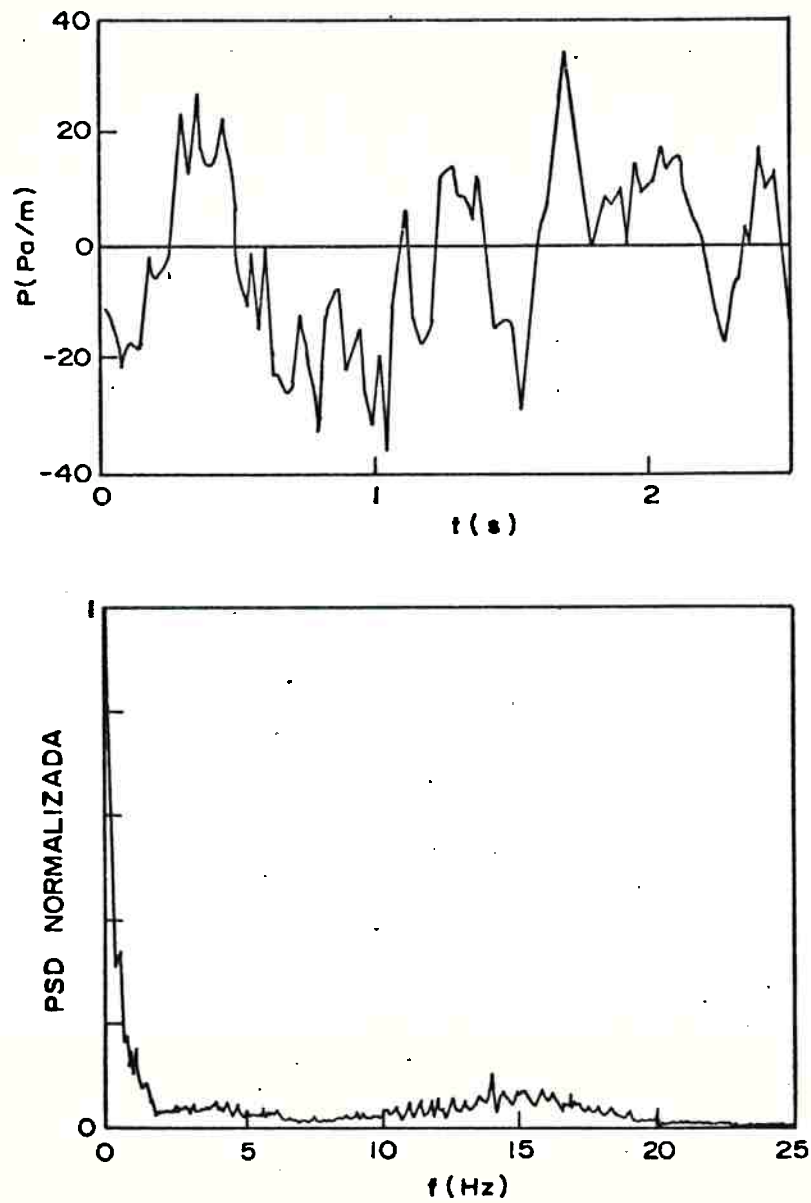


FIGURA 4.4 - Série temporal (centralizada no valor médio) e espectro de potência das oscilações de Δp , para $W_p = 2,0$ $\text{kg/m}^2\text{s}$, $u_g = 1,52$ m/s e $d_p = 200\mu\text{m}$.

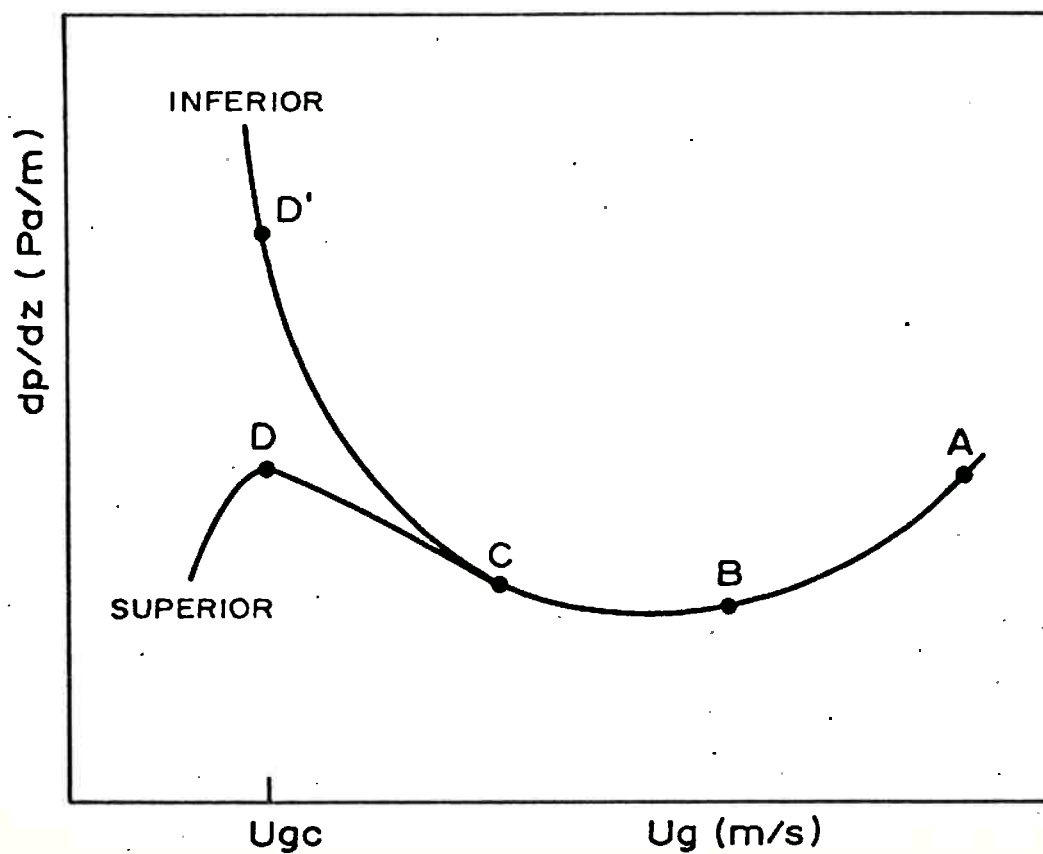


FIGURA 4.5 - Queda de pressão local, em função da velocidade superficial do gás, para duas regiões do tubo de escoamento.

4.1.1 Resultados da determinação da velocidade de colapso,

$$u_{gc}$$

A Figura 4.6 ilustra a transição de colapso, isto é, escoamento em fase densa - escoamento em leito borbulhante, para partículas com d_p igual a $120\mu\text{m}$, em termos da curva de dp/dz na parte superior do tubo em função de u_g .

Os dados obtidos para u_{gc} em função de W_p para os dois valores de d_p estudados estão sumarizados na Tabela 4.1. Também são apresentados os valores de u_{gc} calculados segundo as correlações de Yang (1983) e Yousfi e Gau (1974). Estas correlações correspondem às Eqs. (2.13), (2.14) e (2.15) e à Eq. (2.34) respectivamente. Conforme pode ser observado, para as partículas menores ($120\mu\text{m}$), a concordância obtida entre u_{gc} obtida experimentalmente, pelo máximo da curva de dp/dz em função de u_g , e os valores calculados por ambas as correlações é comparável: o erro relativo médio é de 8% para a correlação de Yousfi e Gau e 6% para a correlação de Yang. Para as partículas maiores ($200\mu\text{m}$) o desvio em relação às correlações é maior: o erro relativo médio é de 10% para a correlação de Yousfi e Gau e 12% para a correlação de Yang. A razão para o maior desvio obtido para as partículas maiores não é clara, mas pode ser devido à maior influência de erros envolvidos nos cálculos de u_t , ou ajustes nos parâmetros. De qualquer modo, a determinação experimental de u_{gc} através do máximo da curva de dp/dz em função de u_g forneceu concordância bem melhor com as correlações utilizadas para comparação, do que a precisão normalmente citada para elas, da ordem de $\pm 30\%$, segundo Briens e Bergougnou (1986).

Para valores de u_g menores que u_{gc} , mas ainda maiores que u_t das partículas em uso, o tubo de escoamento apresenta, na parte in

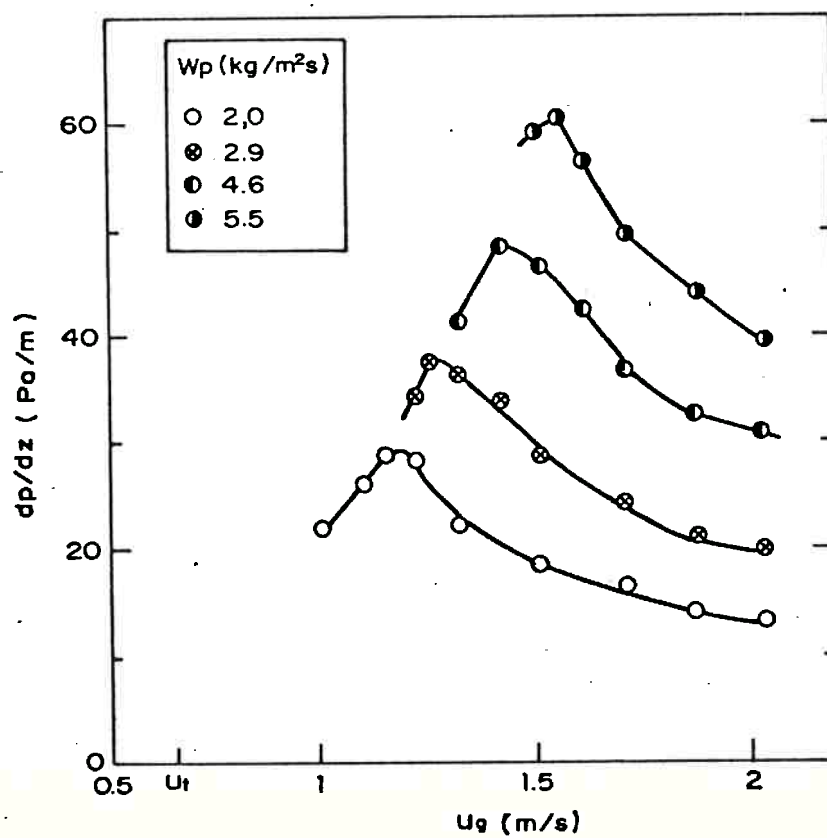


FIGURA 4.6 - Curvas de dp/dz em função de u_g , para partículas com $d_p = 120\mu\text{m}$, referentes à transição de colapso.

TABELA 4.1 - Comparação entre resultados experimentais e previstos por correlações publicadas, para a velocidade de colapso, u_{gc} .

d_p (μm)	W_p ($\text{kg}/(\text{m}^2\text{s})$)	VELOCIDADE DE COLAPSO, u_{gc} (m/s)		
		Valor Experimental	Segundo Yousfi and Gau (1974)	Segundo Yang (1983)
200	2,02	1,47	1,25	1,68
	2,40	1,49	1,31	1,71
	3,03	1,54	1,39	1,75
	3,75	1,58	1,46	1,80
	4,60	1,62	1,55	1,84
	5,64	1,68	1,58	1,89
120	1,35	1,06	1,02	1,11
	1,52	1,12	1,04	1,12
	2,02	1,17	1,11	1,16
	2,90	1,27	1,20	1,24
	3,58	1,37	1,25	1,28
	4,55	1,47	1,31	1,32
	5,55	1,55	1,36	1,37

ferior, um leito denso borbulhante ou turbulento, com altura definida mas que oscila devido à presença de bolhas de grande diâmetro. Acima dessa região mais densa, forma-se uma fase diluída e as oscilações de pressão medidas na parte superior do tubo têm espectro de frequências similares àquelas para escoamento em fase diluída, isto é, com frequência dominante próxima de 18 Hz. No entanto, aparece um componente de intensidade bem menor, com frequência dominante da ordem de 6 Hz, correspondendo à presença das bolhas na fase densa inferior. A Figura 4.7 mostra os espectros obtidos na mesma condição, com sinal filtrado em 25 Hz e em 10 Hz, correspondentes ao espectro geral e ao componente devido às bolhas respectivamente.

4.1.2 Resultados da determinação da transição entre escoamento em fase diluída e escoamento em fase densa

Enquanto a determinação de u_{gc} é possível de ser feita com base apenas no máximo da curva de dp/dz em função de u_g , medida na parte superior do tubo de escoamento, a transição fase diluída - fase densa, que corresponde ao surgimento de recirculação interna, com formação de "nuvens" mais densas, não é perceptível por essa curva.

Para esta transição, no entanto, o espectro de frequências de oscilação mostra-se sensivelmente diferente, como pode ser visto comparando-se as Figuras 4.2 e 4.3. A determinação experimental dessa transição pode, assim, ser feita com base na distinção entre ambos os espectros de frequências. No presente trabalho essa distinção foi feita de dois modos: a) através da determinação da frequência dominante no espectro; b) através do ajuste de um modelo auto-regressivo aos dados de oscilação de pressão diferencial.

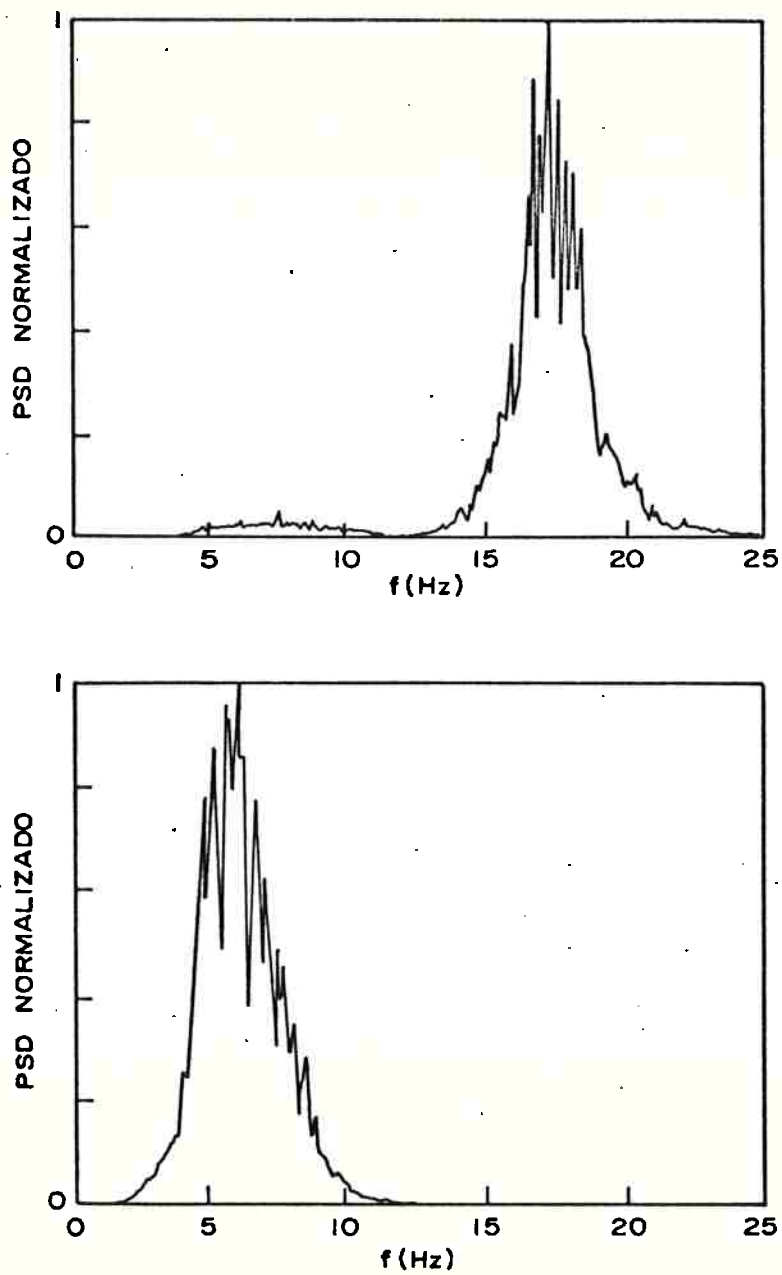


FIGURA 4.7 - Exemplos de espectros de potência das flutuações de Δp para leito borbulhante, com sinal filtrado em 25Hz (superior) e em 10Hz (inferior).

A determinação da frequência dominante foi feita diretamente através do espectro de frequências de oscilação. O ajuste dos dados a um modelo auto-regressivo de ordem k , pode ser feito, neste caso, através da correlação tanto do valor ótimo de k , quanto dos valores dos coeficientes do modelo, com W_p e u_g .

Em testes preliminares visando verificar a ordem ótima do modelo, usando um critério de erro de previsão final (Akaike, 1974), verificou-se que um modelo de primeira ordem ($k = 1$) é o mais adequado para a distinção entre ambos os regimes de escoamento. Isto, porque as oscilações de pressão medidas têm o seguinte efeito sobre o coeficiente de primeira ordem, a_1 , do modelo:

- a) quando o sinal medido oscila rapidamente e o espectro de densidade de potência é dominado por altas frequências, a_1 tem valor negativo;
- b) quando sinais vizinhos da série temporal têm valores próximos e a série mostra tendências marcantes nas oscilações (isto é, oscilações de baixa frequência com alta intensidade), a_1 tem sinal positivo.

Assim sendo, a ordem ótima determinada para o modelo AR, visando a descrição das oscilações de pressão diferencial em regime de escoamento em fase diluída, é $k \geq 2$. No entanto, para fins de identificação da transição fase diluída - fase densa, um modelo AR de primeira ordem parece o mais adequado. A Tabela 4.2 apresenta os resultados da aplicação desse método para identificação da transição considerada. Os valores de a_1 foram estimados com diferentes comprimentos da série temporal, concluindo-se que mesmo com 20 s, à frequência de 50 Hz, a_1 tem valor representativo do processo. Conforme se pode observar, a concordância entre o sinal de a_1 e o re-

TABELA 4.2 - Valores do coeficiente a_1 para transição entre escoamento em fase diluída e em fase densa.

d_p (μm)	u_g (m/s)	W_p ($\text{kg}/(\text{m}^2\text{s})$)	Frequência dominante (Hz)	a_1	Regime de escoamento
200	2,04	0,21	16,8	-0,29	Fase diluída (Fig.4.2)
		2,0	13,6	-0,01	Transição
		5,4	0,2	0,47	Fase densa
	1,88	0,42	16,0	-0,20	Fase diluída
		1,22	0,1	0,1	Transição (Fig.4.3)
	1,71	0,21	14,7	-0,1	Fase diluída
		1,22	0,1	0,42	Transição
		4,6	0,1	0,51	Fase densa
		1,52	0,60	0,2	0,38
	120	2,04	2,0	0,1	0,63
0,38			15,4	-0,20	Fase diluída
1,33		0,21	17,1	-0,18	Fase diluída
		1,22	10,4	0,10	Transição
0,91		2,31	0,2	0,57	Fase densa
		0,42	0,1	0,41	Fase densa
		2,04	--	18,3	-0,50
0,91		--	17,2	-0,46	Ar

rime de escoamento é satisfatória.

A Tabela 4.3 resume os critérios para identificação dos três regimes de escoamento presentes no sistema. Com a aplicação simultânea desses critérios é possível obter-se uma descrição detalhada do estado fluidodinâmico do sistema.

4.2 Experimentos com a reação modelo

4.2.1 Transformações térmicas e solubilidade do minério de fosfato de alumínio

Os resultados dos experimentos de calcinação das quatro amostras de minério de fosfato de alumínio em forno estacionário, por 1 hora, a diferentes temperaturas, podem ser observados na Figura 4.8, que mostra a solubilidade das amostras (expressa em porcentagem de P_2O_5 solubilizado) em função da temperatura de calcinação. A Tabela 4.4 apresenta, qualitativamente, a composição mineralógica das amostras calcinadas, em termos dos minerais fosfáticos presentes, determinada por difração de raios X.

Todas as amostras apresentam um máximo na curva de solubilidade entre 600 e 700°C. A solubilidade decai consideravelmente com a calcinação a temperaturas maiores que 700°C. O exame da Tabela 4.4 mostra um decaimento gradual na quantidade do principal mineral fosfático presente nas rochas, crandalita-goyazita até que, com a calcinação à temperatura de cerca de 500°C (por 1 hora) não é mais notada a presença de qualquer composto fosfático cristalizado, a não ser pequenas quantidades de fosfocristobalita, $AlPO_4$, que começa a se formar a cerca de 600°C.

TABELA 4.3 - Resumo dos critérios propostos para identificação do regime de escoamento, em sistemas de contato gás-sólido, com fluxo ascendente de gás.

CRITÉRIO	REGIME DE ESCOAMENTO		
	Fase diluída	Fase densa	Borbulhante
$\frac{\partial}{\partial u_g} \left(\frac{dp}{dz} \right) (W_p = \text{cte})$ (Superior)	> 0	< 0	> 0
$\frac{\partial}{\partial u_g} \left(\frac{dp}{dz} \right) (W_p = \text{cte})$ (Inferior)	> 0	< 0	< 0
$\frac{\Delta p \text{ inferior}}{\Delta p \text{ superior}}$	1	> 1	>> 1
Frequência dominante (Hz)	>> 1	< 1	> 1
a_1	< 0	> 0	< 0

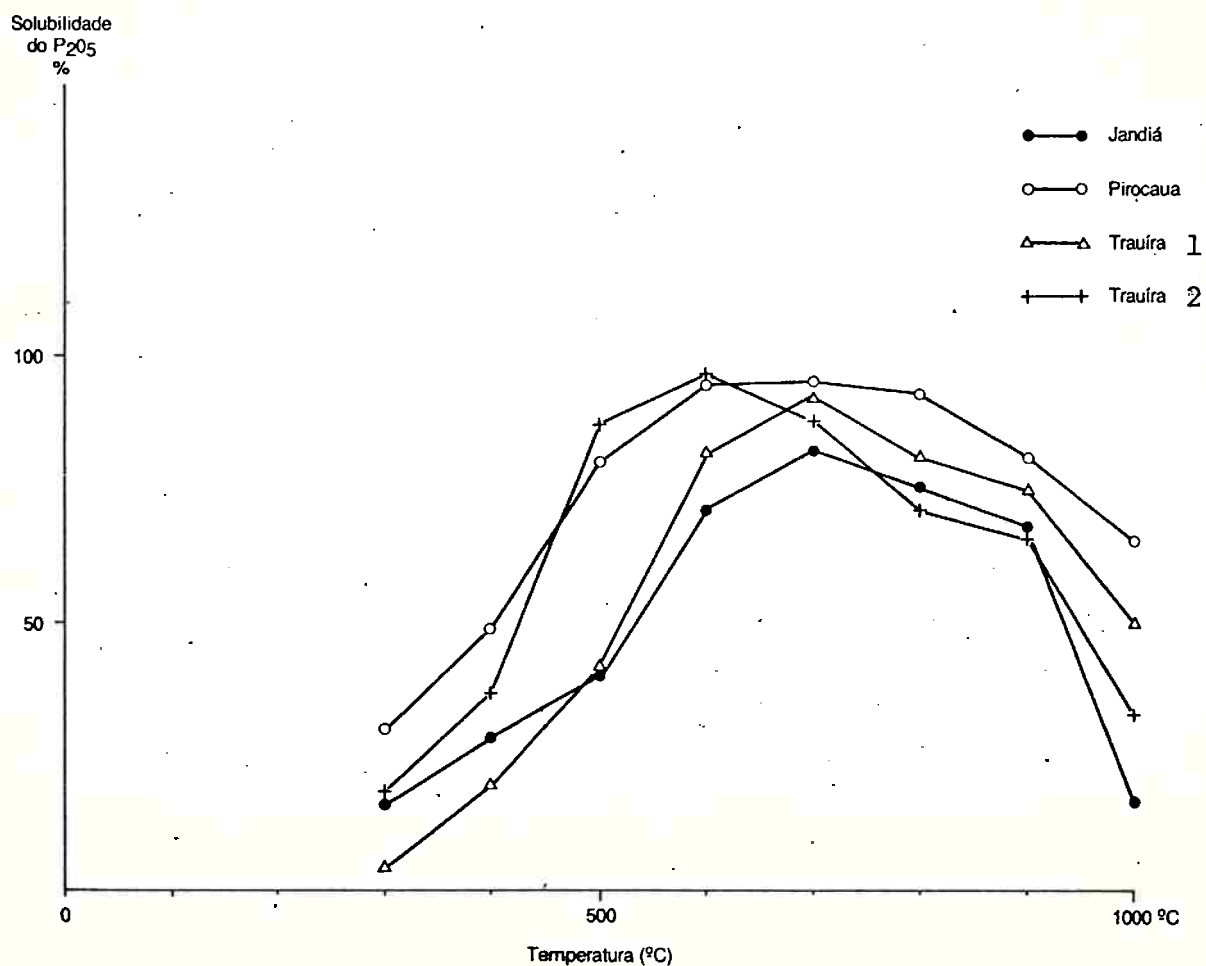


FIGURA 4.8 - Resultado dos experimentos de calcinação de amostras de minério de fosfato de alumínio por 1 hora em forno estacionário.

TABELA 4.4 - Fases cristalinas que sofrem transformações térmicas no aquecimento de amostras de minério de fosfato de alumínio (detectadas por difração de raios X).

Temperatura (°C)	Jandiá			Pirocaua			Trauíra 1			Trauíra 2						
	C-G	T	FC	C	C-G	T	FC	C	C-G	T	FC	C	C-G	T	FC	C
20	XXX				XXX				XXX				XXX			
200	XXX				XXX				XXX				XXX			
300	XX				XX				XX				XX			
400	XX				XX				XX				XX			
500	X				X				X				X			
600			X								X				X	
700			X				X				X				X	
800		X	XX				X			X	XX			X	XX	
900		XX	XX	X		X	XX	X		XX	XX	X		XX	XXX	X
1000		XXX	XXX	XX		XX	XXX	XX		XXX	XXX	XX		XXX	XXX	XX
1100		XX	XX	XXX		XX	XX	XXX		XX	XX	XX		XX	XX	XXX

C-G: crandalita-goyazita; T: β - $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$; FC = fosfocristobalita, AlPO_4

C : α - Al_2O_3

XXX - picos de difração de alta intensidade

XX - picos de difração de média intensidade

X - picos de difração de baixa intensidade.

Com o aumento da temperatura, ocorre um aumento na quantidade de fosfocristobalita; a partir de 800°C começam a cristalizar fosfato tricálcico, $\beta\text{-Ca}_3(\text{PO}_4)_2$, e corundum, $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. A presença de maior quantidade de cristais desses compostos pouco solúveis, juntamente com o maior grau de cristalinidade advindo da cristalização a temperaturas mais altas, causa o decréscimo da solubilidade, observado na Figura 4.8.

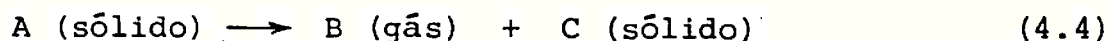
Não foi observada qualquer alteração no tamanho das partículas, antes e depois da calcinação, fato constatado pela observação das mesmas em microscópio petrográfico.

Com a calcinação a temperaturas superiores a 1000°C, todas as amostras iniciaram um processo de sinterização, notado tanto pela aglomeração das partículas, quanto pela alteração na intensidade dos picos de difração de raios X, também indicada na Tabela 4.4.

Portanto, com vistas à obtenção de um fertilizante com alta solubilidade, é essencial que a calcinação seja feita a temperaturas inferiores a 600°C, de modo a evitar a cristalização de compostos que diminuem a solubilidade do produto calcinado.

4.2.2 Estudo da cinética da decomposição do minério de fosfato de alumínio de Jandiá (PA)

A reação química de decomposição do minério de fosfato de alumínio pode ser representada pela seguinte expressão:



Vários modelos foram desenvolvidos para descrição de reações químicas heterogêneas não-catalíticas entre gás e sólido. No pre-

sente trabalho, os dados referentes à decomposição do minério estudado foram tratados visando a obtenção de uma expressão simples, capaz de descrever a reação química estudada para o processamento do minério em reatores de leito fluidizado circulante.

Na primeira fase dos experimentos, uma série de ensaios preliminares foi realizada em termo-balança, com variação da faixa granulométrica do sólido e vazão do gás de arraste. O objetivo desses experimentos preliminares foi determinar as condições para aquecimento da amostra, nas quais o efeito da difusão do gás liberado na reação química através da partícula, bem como, através da camada gasosa que envolve as partículas, não oferece resistência ao processo. Verificou-se que, para vazões de gás de arraste da ordem de 2,5 ml/s ou maiores, este fator não tem qualquer efeito observado sobre a curva de perda de massa da amostra. Da mesma forma, nenhum efeito do diâmetro de partícula foi observado, para d_p menor que 0,100mm, nas mesmas condições acima. Em todos estes testes foi aplicada uma velocidade de aquecimento de 5°C/min.

Após os testes preliminares, realizou-se ensaios de aquecimento em termo-balança nas seguintes condições:

massa de amostra : 5mg

tamanho de partícula: menor que 0,100mm

vazão de gás de arraste: 2,5ml/s

velocidade de aquecimento: 5 e 10°C por minuto

A Figura 4.9 apresenta curvas da fração convertida, X_A , em função da temperatura, para os ensaios realizados nessas condições. Os dados foram, então, ajustados a um modelo tendo a reação química como estágio controlador, com a seguinte forma:

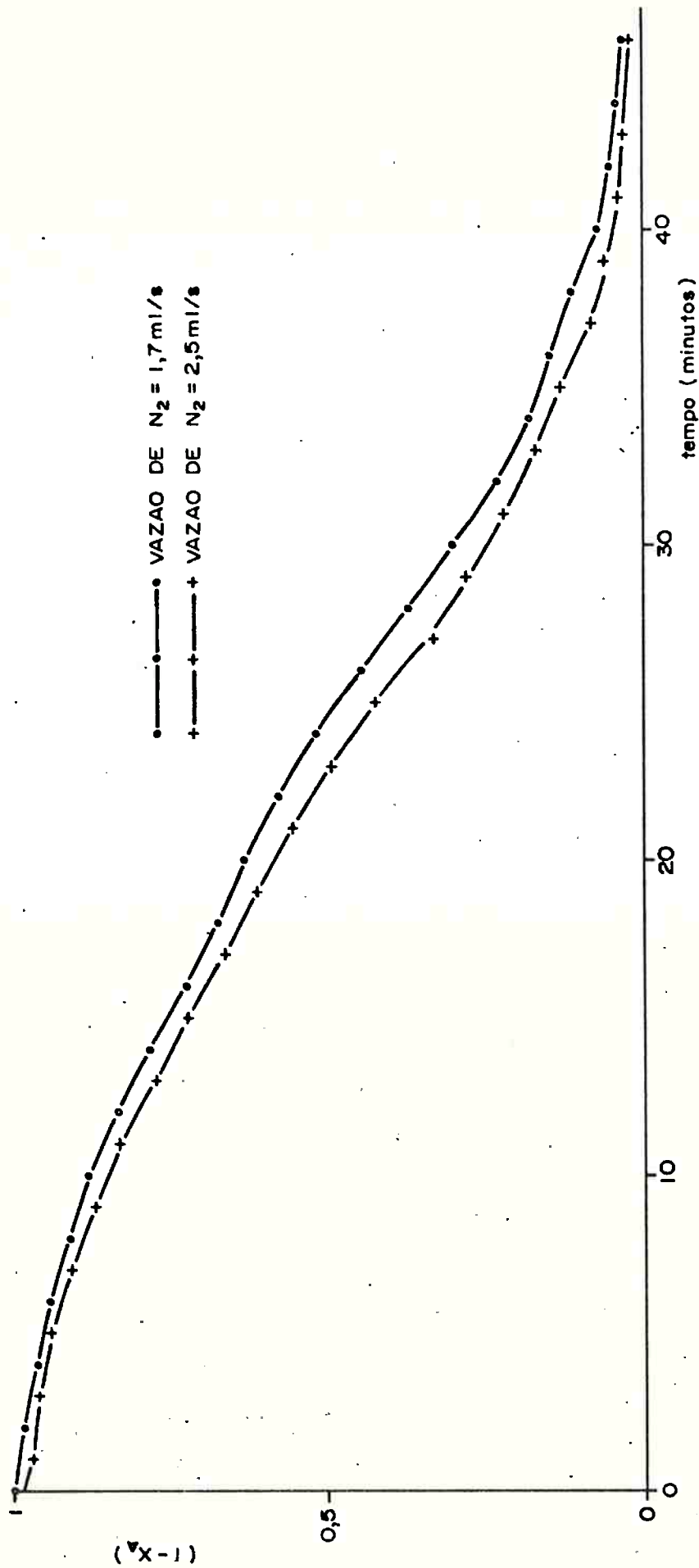


FIGURA 4.9A - Curvas de X_A em função do tempo, obtidas em termobalança. Taxa de aquecimento: $10^\circ\text{C}/$ minuto; temperatura em $t = 0$, 170°C .

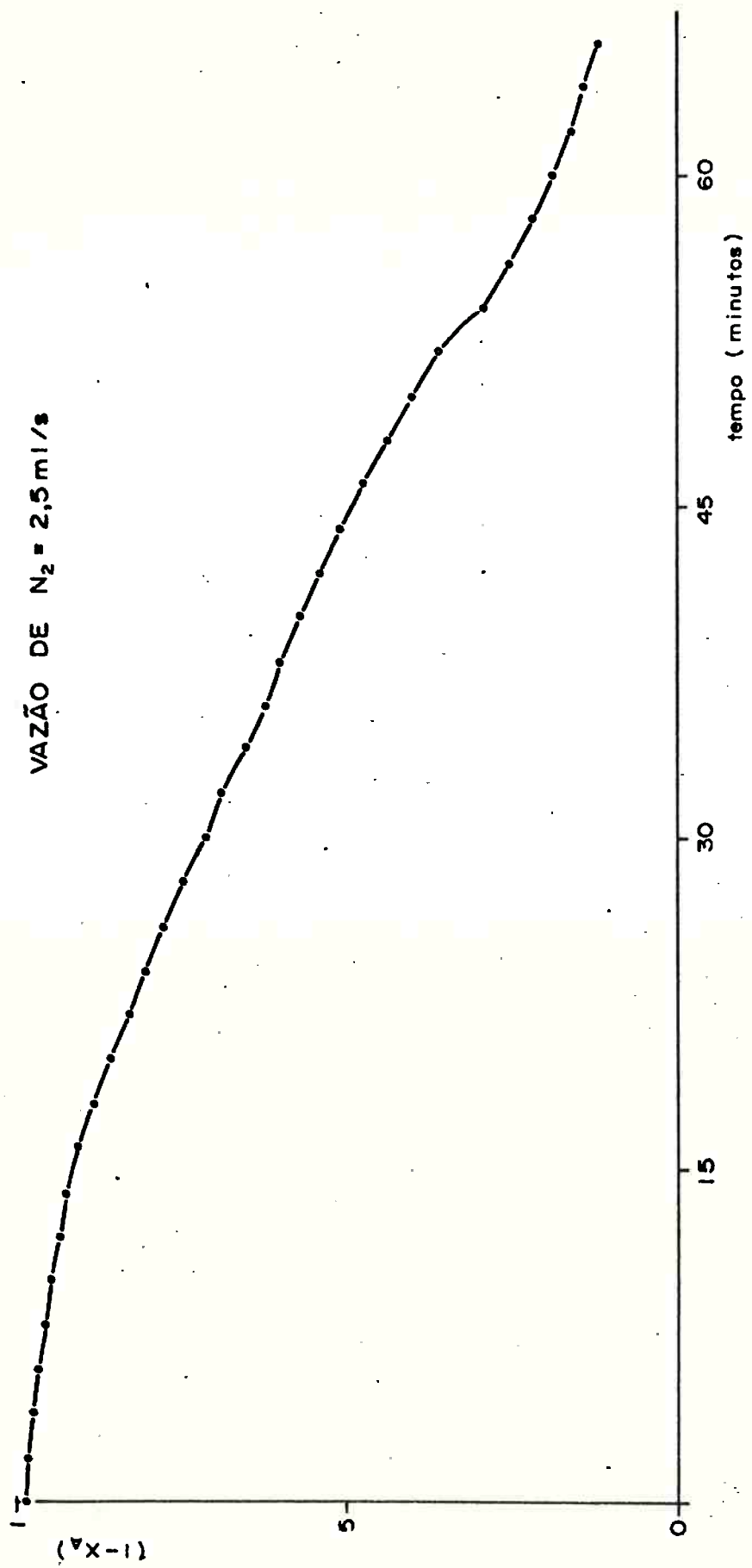


FIGURA 4.9B - Curva de X_A em função do tempo, obtida em termobalança. Taxa de aquecimento: $5^\circ\text{C}/\text{min}$; temperatura em $t = 0$, 170°C .

$$\frac{dX_A}{dt} = k_R f(X_A) = k_R (1-X_A)^n \quad (4.5)$$

o qual tem constante de velocidade expressa como:

$$k_R = k_0 \exp(-E/RT) \quad (4.6)$$

A Eq. (4.6), conhecida como equação de Arrhenius, foi desenvolvida para sistemas homogêneos, não sendo justificável sua aplicação a reações heterogêneas. Aqui, essa expressão deve ser considerada como uma correlação empírica apenas, capaz de descrever observações experimentais (Baker, 1978).

Os parâmetros do modelo, k_0 , E e n foram estimados por regressão dos dados de k_R e T , com um critério de máximo coeficiente de correlação, obtendo-se:

$$n = 1,1$$

$$E/R = 3824 \text{ K}$$

$$k_0 = 0,240 \text{ s}^{-1}$$

$$\text{coeficiente de correlação} = 0,969$$

Observe-se, mais uma vez, que a correlação adotada, com os parâmetros acima, constitui-se em um modelo empírico apenas, capaz de descrever os dados experimentais.

4.2.3 Determinação do calor específico e da entalpia de decomposição

A Figura 4.10 mostra a curva obtida a partir do aquecimento da amostra do minério de Jandiã em calorímetro diferencial de varredura

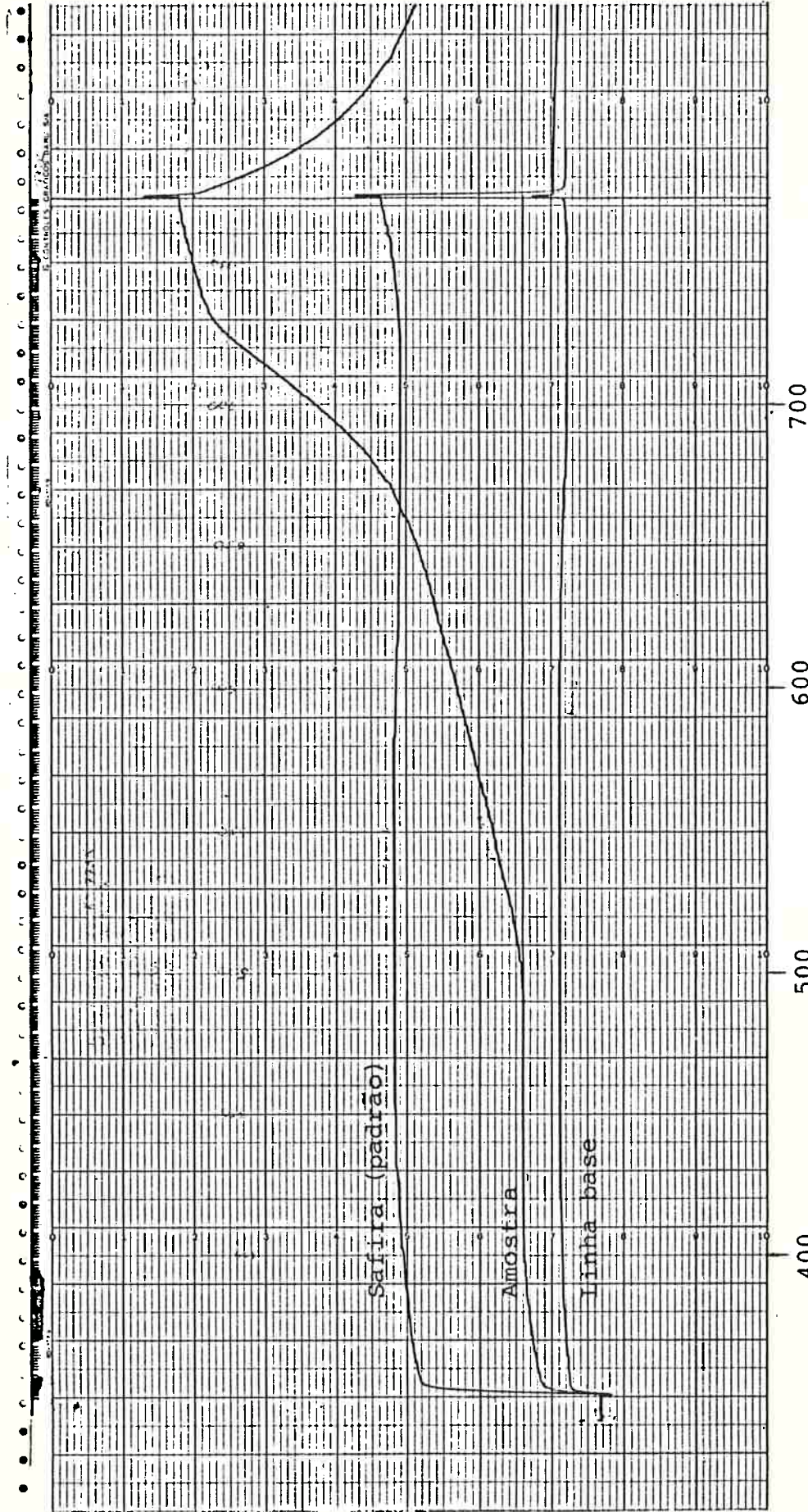


FIGURA 4.10 - Curvas de dH/dt obtidas por calorímetro diferencial de varredura (DSC), para a amostra estudada.

- . velocidade de aquecimento: $10^{\circ}\text{C}/\text{minuto}$
- . massa de safira: 29,3mg
- . massa de amostra: 5,1mg

ra à temperatura de até 500°C, a uma velocidade de aquecimento de 10°C por minuto. Cada divisão na escala da ordenada equivale a 3×10^{-3} W e a integral da curva no intervalo de tempo considerado fornece a energia total envolvida no aquecimento da amostra.

Para o intervalo de temperatura em que não ocorre a reação química, isto é, até 500 K, obteve-se um valor de c_p praticamente constante, isto é, variando entre 1213 j/kg.K e 1339 j/kg.K no intervalo de temperatura entre 360 e 500 K.

A entalpia de decomposição foi estimada considerando-se $\frac{dc_p}{dT}$ constante, igual a $0,9 \frac{j}{kgK^2}$.

Uma vez que o equipamento utilizado não permite a obtenção de conversão completa da rocha durante o aquecimento, calculou-se o valor de X_A obtido através das Eqs. (4.5) e (4.6), com os dados cinéticos obtidos no item 4.2.2, a uma taxa de aquecimento de 10°C por minuto. Até 760 K, obtêm-se, dessa forma, $X_A = 0,63$.

Assim sendo, a integral da curva da Figura 4.10 foi dividida pelo valor de X_A no intervalo de ocorrência da reação química. O valor obtido, com base na massa de rocha que reage, é:

$$\Delta H = 2,03 \times 10^6 \frac{j}{kg}$$

4.2.4 Testes contínuos de calcinação em reatores de leito fluidizado

O minério fosfático de Jandiá (PA) foi utilizado em testes contínuos de calcinação em dois tipos de reatores de leito fluidizado de laboratório, conforme descritos no Capítulo 3.

Em cada um dos reatores, as condições utilizadas nos testes foram:

a) Leito fluidizado convencional:

- propriedades dos sólidos:

faixa granulométrica: 95% entre 0,1 e 0,5mm;

diâmetro médio (Sauter): 0,217mm;

densidade aparente: 2,46 g/cm³;

esfericidade: 0,8;

velocidade mínima de fluidização a 20°C: 0,024 m/s.

- faixa de temperatura: 350 a 500°C;

- vazão de sólidos: 1,3 a 2,4 kg por hora.

As velocidades do ar foram selecionadas de modo a serem no mínimo iguais à velocidade de mínima fluidização das maiores partículas presentes no leito e mais baixas do que um valor que pudesse causar excessiva turbulência ou fluxo pistonado, devido à formação de bolhas grandes demais. Estes limites foram examinados em testes preliminares, tendo sido fixados em: mínimo = 0,075 m/s; máximo = 0,145 m/s. Isto corresponde respectivamente a valores de $u_g - u_{mf}$ iguais a 0,05 e 0,12 m/s. Visando manter aproximadamente constantes as condições de escoamento no reator, os valores de $u_g - u_{mf}$ foram mantidos constantes em todos os testes, em 3 níveis: 0,05; 0,08 e 0,12 m/s.

b) Leito fluidizado circulante

- propriedades dos sólidos

faixa granulométrica 1: partículas menores que 0,1mm, diâme-

tro médio (Sauter): 0,03mm; velocidade terminal a 20°C: 0,25 m/s.

faixa granulométrica 2: entre 0,10 e 0,15mm; diâmetro médio (Sauter): 0,12mm; velocidade terminal a 20°C: 0,56 m/s.

densidade aparente: 2,550 g/cm³

- faixa de temperatura: 260 a 580°C;
- vazão de sólidos: 1,8 kg por hora.

As velocidades do ar foram selecionadas de modo a situar o sistema aproximadamente na parte central da região de escoamento em leito fluidizado circulante do diagrama de Reh (1961).

Os níveis escolhidos foram: 0,7; 1,1 e 1,5 m/s.

As Tabelas 4.5 e 4.6 apresentam, de forma sumarizada, os resultados da operação em regime permanente de ambos os reatores, em termos da fração de reagente convertida, X_A . As tabelas mostram: a temperatura do ensaio (cujas diferenças foram sempre menores que 10°C ao longo dos testes, bem como, em todo o volume dos reatores); tempo de residência médio dos sólidos, assumido como igual ao quociente entre massa de sólidos no reator e vazão mássica de sólidos (isto é válido, pois a circulação interna de sólidos em ambos os reatores é intensa); velocidade do gás e as frações convertidas.

Pode-se observar que, nos testes em leito fluidizado clássico, há uma forte influência da velocidade do gás sobre a fração convertida. Isto já não ocorre no leito fluidizado circulante, onde a conversão parece depender mais da temperatura. A operação do leito fluidizado clássico a $u_g - u_{mf}$ igual a 0,12 m/s não resultou em incremento sensível na fração convertida, quando comparada aos testes com valores mais baixos de $u_g - u_{mf}$, provavelmente devido ao con

TABELA 4.5 - Sumário dos resultados dos testes contínuos de calcinação em reator de leito fluidizado clássico.

Teste nº	Temperatura (°C)	Tempo de residência médio (s)	u_{mf} (m/s)	$u_g - u_{mf}$ (m/s)	X_A (%)
1	350	3200	0,024	0,08	49
2	450	3530	0,022	0,05	45
3	450	3630	0,022	0,08	60
4	450	3500	0,022	0,12	65
5	500	3350	0,021	0,05	70
6	500	3500	0,021	0,08	75
7	500	3470	0,021	0,12	70

TABELA 4.6 - Sumário dos resultados dos testes contínuos de calcinação no reator de leito fluidizado circulante.

Teste nº	Diâmetro médio dos sólidos (mm)	Temperatura (°C)	u_g (m/s)	Tempo de residência médio (s)	X_A (%)
1	0,03	260	0,7	900	16
2	0,03	350	0,7	1100	27
3	0,03	350	1,1	1100	31
4	0,03	450	0,7	1100	50
5	0,03	450	1,1	1100	57
6	0,03	580	0,7	1100	74
7	0,03	580	1,1	1200	85
8	0,12	480	1,1	1100	58
9	0,12	480	1,5	1100	56

tato inadequado gás-sólidos. Isto pode ser devido a que, nas condições dos testes, calculou-se diâmetros de bolhas da ordem de 6 a 7cm na parte superior do leito, equivalentes a praticamente metade do diâmetro do reator (Wen e Fan, 1975).

Foram obtidos valores similares para a fração convertida em ambos os reatores, mas no leito fluidizado circulante foi necessário apenas um terço do tempo de residência médio.

O estudo aqui relatado não objetivou otimizar as condições de operação dos reatores. Porém, os resultados obtidos permitem uma comparação preliminar entre ambos, uma vez que as condições selecionadas correspondem à operação normal dos mesmos. A comparação é aqui efetuada entre os valores experimentais obtidos para a fração convertida e aqueles valores "ideais", isto é, previstos supondo que apenas a cinética da reação química é o passo controlador do processo. Assim, o desempenho de cada reator é avaliado pela diferença entre frações convertidas obtidas nos testes e o caso ideal correspondente, à mesma temperatura e tempo de reação (este é assumido como sendo o tempo de residência médio dos sólidos). Isto torna claro o efeito do contato gás-sólidos em cada reator, fato este a ser levado em consideração quando da seleção de alternativas de processo. As Figuras 4.11, 4.12 e 4.13 mostram curvas de X_A em função da temperatura, referentes às Eqs. (4.5) e (4.6) com os parâmetros cinéticos obtidos no presente trabalho. Os pontos assinalados correspondem aos valores de X_A obtidos nos testes contínuos nos reatores de leito fluidizado, bem como nos testes em forno elétrico estacionário, o qual pode ser considerado como um reator de leito fixo, sem circulação forçada de ar. As figuras ilustram a vantagem comparativa de reatores de leito fluidizado circulante em comparação com outros sistemas, no processamento de material particulado fino, para reações entre gás e sólidos.

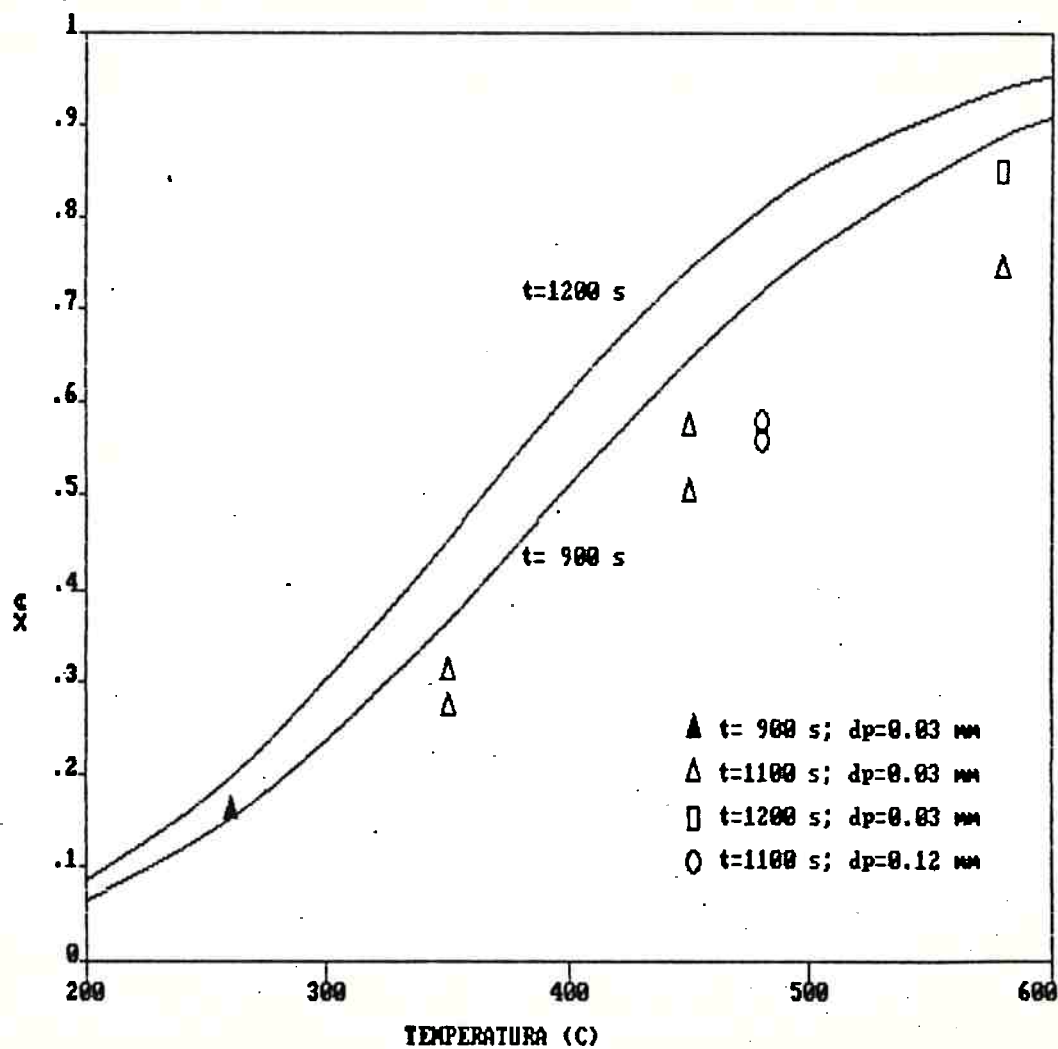


FIGURA 4.11 - Comparação entre os resultados experimentais dos testes contínuos de calcinação de fosfato de alumínio e as curvas "ideais", para o reator de leito fluidizado circulante (as condições dos testes estão resumidas na Tabela 4.6).

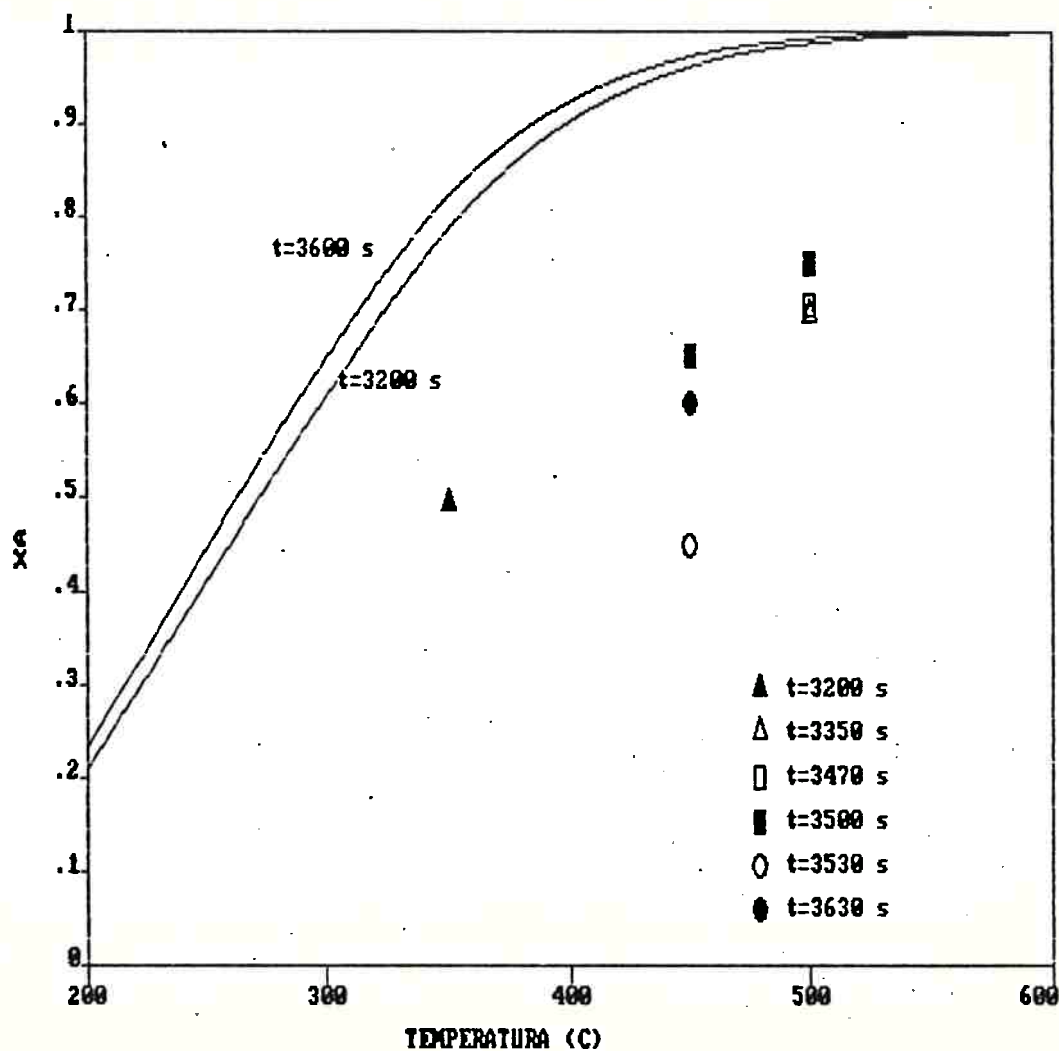


FIGURA 4.12 - Comparação entre os resultados experimentais dos testes contínuos de calcinação de fosfato de alumínio e as curvas "ideais", para o reator de leito fluidizado convencional (as condições dos testes estão resumidas na Tabela 4.5).

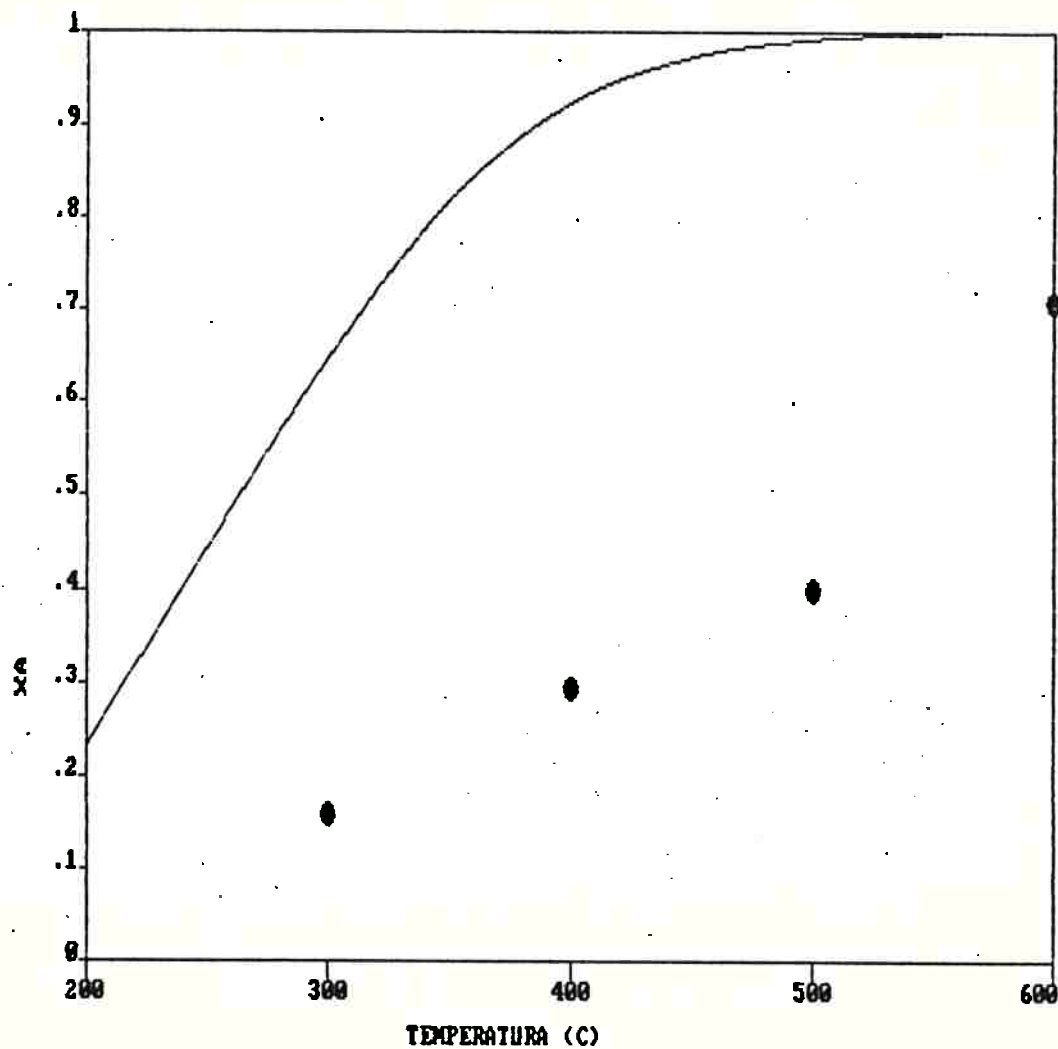


FIGURA 4.13 - Comparação entre os resultados experimentais dos testes de calcinação de fosfato de alumínio e a curva "ideal", para o forno estacionário.

5. MODELO MATEMÁTICO DE UM REATOR DE LEITO FLUIDIZADO CIRCULANTE

Em função do exposto no Capítulo 2 deste trabalho, a obtenção de correlações fluidodinâmicas confiáveis parece ser o principal obstáculo ao desenvolvimento de modelos de uso generalizado para reatores químicos do tipo leito fluidizado circulante.

Modelos baseados em equacionamentos fenomenológicos para partículas isoladas transportadas por gás, como o modelo de Nakamura e Capes (1973), ou o de Arastoopour e Gidaspow (1979) não são aparentemente aplicáveis em condições de alta concentração de sólidos, talvez por não considerarem a interação entre partículas. Assim sendo, com base nos comentários apresentados no item 2.2.3 deste trabalho, optou-se por um modelo fluidodinâmico baseado no valor médio de ϵ no tempo, isto é, não considerando a dinâmica de formação e desaparecimento de regiões de alta concentração de sólidos ("clusters").

O modelo matemático montado baseia-se nas seguintes hipóteses:

- a) o reator opera em regime estacionário;
- b) em todo o volume do reator existe apenas uma fase presente do ponto de vista fluidodinâmico, isto é, uma suspensão de partículas sólidas em gás;
- c) a densidade da suspensão sólidos-gás varia apenas na direção axial, sendo constante a uma dada altura, z , em toda a seção de escoamento, para determinadas condições de operação. A variação radial de ϵ não foi considerada no presente modelo, uma vez que tal variação não é claramente definida em condições de alta

- concentração de sólidos e alta recirculação interna de sólidos;
- d) a recirculação interna de sólidos pode existir em todo o volume do reator, sendo determinada pela taxa de arraste de sólidos;
- e) não existe recirculação de gás; admite-se fluxo pistonado do mesmo;
- f) a concentração e o fluxo de sólidos no reator variam em função da taxa de arraste no sistema. Estas variáveis são computadas com base no modelo de Wen e Chen (1982) para arraste de sólidos. Porém, diferentemente do proposto por Rhodes e Geldart (1987), não existe descontinuidade na curva de $\epsilon = f(z)$. Para que a curva seja contínua, assume-se que o volume de vazios na extremidade inferior do reator, na hipótese de existência da região mais densa inferior, tenda assintoticamente ao valor ϵ_a , conforme o modelo de Kwauk e colaboradores (Li Youchou e Kwauk, 1980). A passagem da região inferior densa para a região superior, mais diluída (ponto de descontinuidade no modelo de Rhodes e Geldart, 1987), é considerada, no presente trabalho, equivalente ao ponto de inflexão z_i . Esta formulação é mais próxima das evidências experimentais que o modelo de Rhodes e Geldart (1987), resulta em expressão de $\epsilon = f(z)$ similar à obtida por Li Youchou e Kwauk (1980), Eq. (2.51), e tem parâmetros ϵ^* , ϵ_a e z_i calculados através de uma abordagem semi-empírica, conforme sugestões de Wen e Chen (1982) e Rhodes e Geldart (1987), e não puramente empírica como proposto por Li Youchou et alii (1982). O modelo aqui adotado tem, como único parâmetro determinado empiricamente, a taxa de decaimento, cujo valor adotado é aquele sugerido por Rhodes e Geldart (1987);
- g) o coeficiente de transferência de calor entre gás e partícula é considerado suficientemente alto para que ambos possam ser con-

siderados como estando à mesma temperatura, isto é, a temperatura da suspensão, T_s . Esta hipótese é justificada através tanto das considerações formuladas por Grace (1986), quanto por meio de um balanço energético por unidade de volume do reator, utilizando-se h_{gp} determinado pela Eq. (2,83);

- h) a temperatura da suspensão é uniforme numa dada seção do tubo de escoamento, devido à grande turbulência e recirculação interna de sólidos;
- i) a transferência de calor se dá entre suspensão e parede do tubo de escoamento, segundo as correlações apresentadas por Grace (1986);
- j) no processo ao qual o modelo é aplicado no presente trabalho, o gás entra pré-aquecido por uma fornalha externa ao reator, enquanto o sólido entra à temperatura ambiente (25°C);
- l) da mesma forma como ocorre com a transferência de calor entre gás e partícula, a transferência de massa na suspensão se dá apenas entre gás e partícula. Um balanço referente à troca de massa por unidade de volume do reator, nas condições de operação de leitos fluidizados circulantes, com os dados cinéticos determinados no presente trabalho, adotando-se k_m calculado conforme a Eq. (2.85), indica que a única resistência à transferência de massa a ser considerada é a cinética da reação química. Em outras palavras, a taxa de transferência de massa entre partícula e gás, por unidade de volume de reator, (no caso da reação modelo, água na forma gasosa é liberada) é muito maior que a taxa de formação do componente gasoso pela reação química modelo, a ponto de não interferir no processo de forma que possa aqui ser considerada.

As informações relativas à cinética da reação química modelo são apresentadas em outra parte deste trabalho.

A seguir são apresentadas as expressões que compõem o modelo matemático, bem como o algoritmo de solução do mesmo.

5.1 Modelo fluidodinâmico

Wen e Chen (1982) propuseram a seguinte correlação para a densidade de fluxo de sólidos arrastados de um leito turbulento, W_a , em função da distância entre a saída do equipamento e a altura do leito turbulento, L_{ds} :

$$W_a = W_{inf} + (W_o - W_{inf}) \exp(-a(z - L_{ds})) \quad (5.1)$$

Com base em correlações de outros trabalhos para cálculo da velocidade de uma partícula no transporte pneumático (em fase diluída), apresentados por Yang (1975), Wen (1971) e Wen e O'Brien (1976), a densidade de fluxo de sólidos, W_{inf} é calculada da seguinte forma:

$$W_{inf} = \rho_p (1 - \epsilon_{inf}) u_p \quad (5.2)$$

onde

$$u_p = u_g - u_t \quad (5.3)$$

e

$$\epsilon_{inf} = \left(1 + \frac{\lambda (u_g - u_t)^2}{2gD}\right)^{-1/4,7} \quad (5.4)$$

O coeficiente λ é calculado por uma das duas correlações seguintes:

$$\frac{\lambda \rho_p}{d_p^2} \left(\frac{\mu}{\rho_g}\right)^{2,5} = 5,17 R'e_p^{-1,5} \cdot D^2 \quad \text{para } R'e_p < R'e_{pc} \quad (5.5)$$

ou

$$\frac{\lambda \rho_p}{d_p} \left(\frac{\mu}{\rho_g}\right)^{2,5} = 12,3 R'e_p^{-2,5} \cdot D \quad \text{para } R'e_p \geq R'e_{pc} \quad (5.6)$$

onde:

$$R'e_p = \rho_g (u_g - u_t) \frac{d_p}{\mu} \quad (5.7)$$

e

$$R'e_{pc} = 2,38/D \quad (5.8)$$

λ é um coeficiente de atrito, referente ao choque das partículas entre si e com as paredes do tubo de escoamento.

O cálculo de W_o , isto é, a taxa de arraste de sólidos na superfície de um leito turbulento é calculada pela correlação de Wen e Chen (1982):

$$\frac{W_o}{S d_b} = 3,07 \times 10^{-9} \frac{\rho_g^{3,5} g^{0,5}}{\mu^{2,5}} (u_g - u_{mf})^{2,5} \quad (5.9)$$

A velocidade mínima de fluidização é calculada pela correlação de Nakamura et alii (1985):

$$u_{mf} = \left(\frac{-1460\mu}{d_p^2} + \left(\left(\frac{1460\mu}{d_p^2} \right)^2 + \frac{86\rho_g}{d_p} g(\rho_p - \rho_g) \right)^{1/2} \right) / \left(\frac{43\rho_g}{d_p} \right) \quad (5.10)$$

O diâmetro de bolha, d_b , na superfície de um leito turbulento pode ser calculada de várias formas: utiliza-se aqui a correlação de Kobayashi et alii (1965):

$$d_b = 0,14 \rho_p \cdot d_p \left(\frac{u_g}{u_{mf}} \right) L_{ds} \quad (5.11)$$

Transformando-se a Eq. (5.1) para cálculo de L_{ds} , tem-se:

$$L_{ds} = L + \frac{1}{a} \ln \left(\frac{W_a - W_{inf}}{W_o - W_{inf}} \right) \quad (5.12)$$

ou seja, determina-se L_{ds} para um dado L , fazendo-se W_a igual ao fluxo de alimentação W_p . Ainda assim, no entanto, pelas Eqs. (5.9) e (5.11), temos W_o em função de L_{ds} , sendo necessário um processo iterativo para determinação dos parâmetros, ficando apenas o parâmetro a como manipulável no modelo. Wen e Chen (1982) recomendaram $a = 4,0m^{-1}$ para leitos turbulentos. Rhodes e Geldart obtiveram, como melhor valor, $a = 0,5m^{-1}$ para leito fluidizado circulante.

O modelo de Rhodes e Geldart (1987) assume que, para z maior que L_{ds} , vale a seguinte expressão para ϵ :

$$\epsilon = \left(- \left[\left(\frac{W_a}{\rho_p} + u_g + u_t \right)^2 - 4u_g u_t \right]^{1/2} + \frac{W_a}{\rho_p} + u_g + u_t \right) / 2u_t \quad (5.13)$$

Para valores de z menores que L_{ds} , esses autores assumem ϵ constante, o qual é calculado supondo a existência de um leito turbulento com altura L_{ds} .

$$\epsilon_{ds} = (1 - \epsilon_b) \epsilon_e + \epsilon_b \quad (5.14)$$

As expressões seguintes são recomendadas por Rhodes e Geldart (1987) para cálculo de ϵ_b , utilizando-se diferentes expressões para partículas classificadas como do tipo A ou B, conforme Geldart (1973). O critério de classificação adotado é:

O pó é tipo A quando:

$$(gd_p^3)^{1/2} \cdot (\rho_p - \rho_g) / \mu \leq 400 \quad (5.15)$$

e tipo B quando:

$$(gd_p^3)^{1/2} \cdot (\rho_p - \rho_g) / \mu > 400 \quad (5.16)$$

$$\epsilon_b = \gamma (u_g - \left(\frac{W_a}{\rho_p}\right) - u_{mf}) / u_{bs} \quad (5.17)$$

onde γ é a relação entre a densidade de fluxo aparente de bolhas e a densidade de fluxo de bolhas segundo a teoria de duas fases.

No presente trabalho adota-se, com base em sugestão de Rhodes e Geldart (1987):

$$\begin{aligned} Y &= 0,9 \text{ para pó tipo A} \\ \text{ou} \\ Y &= 0,7 \text{ para pó tipo B} \end{aligned} \quad (5.18)$$

O cálculo de u_{bs} , a velocidade de ascensão de bolhas, segue a correlação de Davidson e Harrison (1963):

$$u_{bs} = \phi (gd_b)^{1/2} + u_g - u_{mf} \quad (5.19)$$

com ϕ determinado segundo Werther (1983):

para pó tipo A:

$$\begin{aligned} \phi &= 1, \text{ para } D \leq 0,1 \text{ m} \\ \phi &= 2,5D^{0,4}, \text{ para } 0,1 < D \leq 1 \text{ m} \\ \phi &= 2,5, \text{ para } D > 1 \text{ m} \end{aligned} \quad (5.20)$$

para pó tipo B:

$$\begin{aligned}\phi &= 0,64, \text{ para } D \leq 0,1\text{m} \\ \phi &= 1,60D^{0,4}, \text{ para } 0,1 < D \leq 1\text{m} \\ \phi &= 1,60, \text{ para } D > 1\text{m}\end{aligned}\quad (5.21)$$

d_b é calculado pela Eq. (5.11). Para pó tipo A existe um diâmetro máximo estável de bolha:

$$d_{b\text{máx}} = \frac{2}{g} (u_{t2,7})^2 \quad (5.22)$$

onde $u_{t2,7}$ é a velocidade terminal de partículas com diâmetro igual a $2,7 d_p$ (Rhodes e Geldart, 1987).

$$\text{Para pó tipo B, } d_{b\text{máx}} = D \quad (5.23)$$

Para o cálculo de ϵ_e , Rhodes e Geldart (1987) recomendaram:

$$\text{Para pó tipo B: } \epsilon_e = \epsilon_{mf} \quad (5.24)$$

para pó tipo A, $\epsilon_e > \epsilon_{mf}$ e a seguinte expressão é recomendada por Abrahamsen e Geldart (1980):

$$\epsilon_e = 1 - \left(\frac{(1-\epsilon_{mf})d_p^{0,1} (g(\rho_p - \rho_g))^{0,118} L_{ds}^{0,043}}{2,54\rho_g^{0,016} \mu^{0,066} \cdot \exp(0,09 F_{45})} \right) \quad (5.25)$$

Em qualquer caso, ϵ_{mf} e F_{45} (fração acumulada do pó com diâmetro menor que $45\mu\text{m}$) são propriedades do sólido em estudo e devem ser determinados experimentalmente.

A Eq. (5.13), válida para z maior que L_{ds} , juntamente com a Eq. (5.14) com parâmetros calculados pelas Eqs. (5.15) a 5.25), fornece um perfil de ϵ em função de z descontínuo em $z = L_{ds}$. Este fa-

to não corresponde às observações experimentais (ver Capítulo 2), assim como a própria presença de bolhas não é notada em um leito fluidizado circulante.

Visando contornar essas incompatibilidades e tornar o perfil de ϵ mais próximo do que é observado experimentalmente, no presente trabalho o modelo de Rhodes e Geldart (1987) foi modificado, através da suposição de que ϵ tende assintoticamente a um valor válido para leito fluidizado turbulento, ϵ_{ds} , o qual é equivalente ao valor limite ϵ_a no modelo de Li Youchou e Kwauk (1980).

Assim, temos:

$$\lim_{z \rightarrow -\infty} \epsilon = \epsilon_{ds} \quad (5.26)$$

e

$$\lim_{z \rightarrow +\infty} \epsilon = \epsilon_{inf} \quad (5.27)$$

A curva modificada é simétrica em relação a L_{ds} , com:

$$W_{Lds} = W_a = \frac{W_o + W_{inf}}{2}, \text{ para } z = L_{ds} \quad (5.28)$$

onde:

$$\lim_{z \rightarrow -\infty} W_a = W_o \quad (5.29)$$

e

$$\lim_{z \rightarrow +\infty} W_a = W_{inf} \quad (5.30)$$

As expressões modificadas ficam:

$$W_a = W_o - (W_o - W_{Lds}) \exp(a(z - L_{ds})), \text{ para } z \leq L_{ds} \quad (5.31)$$

$$W_a = W_{inf} + (W_{Lds} - W_{inf}) \exp(-a(z - L_{ds})), \text{ para } L_{ds} < z \leq L \quad (5.32)$$

e

ϵ é calculado para z entre 0 e L pela Eq. (5.13).

O modelo tem, como único parâmetro manipulável, a taxa de decaimento a , cujo valor aqui adotado é $a = 0,5m^{-1}$, conforme Rhodes e Geldart (1987).

5.2 Expressões do balanço material

Todas as expressões do balanço material são montadas através do balanço diferencial em um elemento de volume do reator com seção transversal S e altura dz .

5.2.1 Balanço global

A variação axial da densidade de fluxo resultante de sólidos, W_p , é expressa como:

$$\frac{dW_p}{dz} = \frac{dW_a}{dz} - \frac{dW_d}{dz} \quad (5.33)$$

A essa variação corresponde uma variação equivalente na densidade de fluxo de gás, G , isto é:

$$\frac{dW_p}{dz} = - \frac{dG}{dz} \quad (5.34)$$

5.2.2 Balanço para cada componente, i, no sólido

$$\frac{dw_{pi}}{dz} = \rho_p (-r_i) (1-\epsilon) \quad (5.35)$$

onde $(-r_i)$ é a taxa de variação da massa do componente i, por unidade de massa do sólido, por unidade de tempo.

Uma vez que:

$$w_{pi} = w_p X_i \quad (5.36)$$

e

$$\frac{dw_p}{dz} = \frac{dw_p}{dX_i} \cdot \frac{dX_i}{dz} \quad (5.37)$$

obtém-se a variação axial da fração mássica do componente i no sólido, X_i , como:

$$\frac{dX_i}{dz} = \frac{\rho_p (-r_i) (1-\epsilon)}{w_p + X_i \frac{dw_p}{dX_i}} \quad (5.38)$$

5.2.3 Balanço para cada componente, j, no gás

$$\frac{dG_j}{dz} = (-r_j) \rho_g \epsilon \quad (5.39)$$

onde $(-r_j)$ é a taxa de variação da massa do componente j, por unidade de massa do gás, por unidade de tempo.

Uma vez que:

$$G_j = G \cdot Y_j \quad (5.40)$$

Obtém-se:

$$\frac{dY_j}{dz} = \frac{(-r_j) \rho_g \epsilon}{G} - \left(\frac{Y_j}{G} \cdot \frac{dG}{dz} \right) \quad (5.41)$$

As expressões para $(-r_i)$ e $(-r_j)$ têm formas diferentes para cada sistema ao qual o modelo é aplicado. Para a reação modelo adotada no presente trabalho, as expressões são determinadas no Capítulo 4.

5.2.4 Expressões do balanço energético

Uma vez que, no presente trabalho, considera-se $T_g = T_p = T_s$ ao longo do tubo de escoamento, todos os componentes do balanço energético, com exceção daqueles relacionados à reação química, referem-se a trocas de calor entre leito e parede do tubo.

Assim sendo, tem-se a seguinte expressão para a variação axial da temperatura da suspensão:

$$\frac{d}{dz} S (c_p W_p T_s + G c_g T_s) = \pi D (Q_{CGW} + Q_{CSW} + Q_{RSW}) + S \cdot QQ \quad (5.42)$$

ou

$$\frac{dT_s}{dz} = \left(\frac{4}{D} (Q_{CGW} + Q_{CSW} + Q_{RSW}) + QQ \right) \cdot \frac{1}{(c_p W_p + c_g G)} \quad (5.43)$$

Os termos do balanço energético são calculados conforme modelo sugerido por Grace (1986), cujas expressões para cálculo dos respectivos coeficientes de transferência de calor já foram apresentados no Capítulo 2 deste trabalho.

Dessa forma, os termos relativos à troca de calor com a parede do tubo são expressos como:

$$Q_{RSW} = h_{rad} (T_w - T_s) \quad (5.44)$$

$$Q_{CSW} = h_{pc} (T_w - T_s) \quad (5.45)$$

$$QCGW = h_{gc} (T_w - T_s) \quad (5.46)$$

Portanto, tem-se esses termos expressos em função de T_w e T_s , além das condições de escoamento e propriedades do sistema. A temperatura da suspensão é determinada, inicialmente, como a obtida pelo equilíbrio entálpico dos fluxos de gás e sólidos alimentados:

$$T_s = \frac{W_p c_p (T_p - T_{ref}) + Gc_g (T_g - T_{ref})}{(W_p c_p + Gc_g)} + T_{ref} \quad (5.47)$$

A temperatura da parede interna do leito, T_w , é determinada a partir do calor total trocado entre reator e ambiente externo, o qual pode ser expresso como:

$$QOW = h_{ow} (T_{amb} - T_{ow}) \quad (5.48)$$

Nesta situação vale a expressão:

$$QOW = \frac{D}{D + 2re} (QRSW + QCSW + QCGW) \quad (5.49)$$

onde re = espessura da parede do tubo, com condutividade térmica K_e . Também vale:

$$QOW = \frac{2K_e (T_{ow} - T_w)}{\ln\left(\frac{2re+D}{D}\right) (2re+D)} \quad (5.50)$$

Normalmente, em operações industriais, QOW tem valor comparativamente pequeno, como consequência do próprio interesse em minimização das perdas de energia dos sistemas, obtida através do isolamento adequado dos equipamentos. Assim sendo, após uma avaliação preliminar de métodos para cálculo de h_{ow} , optou-se por uma rotina simples, baseada em isolamento para vasos industriais, por forne-

cer valores suficientemente precisos para o presente trabalho (Hughes e Deumaga, 1974):

$$h_{ow} = 1,947 (T_{ow} - T_{amb})^{1/4} \cdot (2,863 U_{amb} + 1)^{1/2} + \frac{5,763 \times 10^{-6} e (T_{ow}^4 - T_{amb}^4)}{(T_{ow} - T_{amb})} \quad (5.51)$$

O fluxo de energia consumida ou liberada por unidade de comprimento do reator, devido a reações químicas é expresso como:

$$QQ = \rho_p (-r_i) \Delta H_k (1-\epsilon) + \rho_g (-r_j) \Delta H_n \epsilon \quad (5.52)$$

Aqui, assim como no balanço material, quando o sistema em estudo contém mais que uma reação envolvendo o sólido (índice k) ou o gás (índice n), a taxa de variação da fração mássica, e do fluxo de calor, devem ser a soma das k reações no sólido e das n reações no gás.

5.3 Propriedades físicas do gás e do sólido

As propriedades do sólido utilizado para aplicação do modelo são apresentadas nos Capítulos 3 e 4 deste trabalho.

As propriedades físicas do gás utilizadas no modelo são: composição química, densidade, viscosidade dinâmica, calor específico e condutividade térmica. É assumido que o gás alimentado ao reator seja proveniente de uma fornalha convencional, movida a óleo. Adotou-se, como composição química "típica" para o gás, em termos de

seus componentes principais, a seguinte (porcentagens mássicas): 5% CO_2 ; 2% H_2O ; 75% N_2 , 18% O_2 .

As demais propriedades do gás são calculadas pelo modelo em função da composição química, pressão e temperatura, em cada ponto do eixo do reator. Dadas as condições de necessárias para a reação modelo, o gás é admitido como ideal.

Assim, o calor específico é calculado para gás ideal conforme recomendação de Reid et alii. (1977). A viscosidade dinâmica é calculada pela aproximação de Wilke (1950) e a condutividade térmica pela equação de Wassiljewa (1904), modificada conforme Mason e Saxena (1958). Todas as expressões para esses cálculos são apresentadas por Reid et alii (1977). Os valores de referência para os componentes gasosos puros foram obtidos em Perry e Green (1984).

5.4 Algoritmo de resolução do modelo matemático

O algoritmo montado para o modelo matemático do reator de leito fluidizado circulante resolve o sistema através do cálculo das funções envolvidas nas expressões apresentadas em cada ponto ao longo do eixo do reator, através do método de Runge-Kutta de quarta ordem, a partir de valores iniciais das variáveis. As convergências necessárias para as diversas variáveis assumidas são realizadas pelo método de Wegstein (1958).

As variáveis manipuladas e geométricas do modelo são as seguintes:

Variáveis manipuladas

1. vazão de gás, na alimentação, G_F ;

2. vazão de sólidos, na alimentação, W_F ;
- 3) temperatura do gás, na alimentação, T_g ;
- 4) temperatura do sólido, na alimentação, T_p ;
- 5) taxa de reciclo externa ao reator (vazão de reciclo/vazão de produto); W_R/W_{prod} .

Variáveis geométricas

- 1) diâmetro do reator, D ;
- 2) comprimento do reator, L ;
- 3) espessura da camada de isolante térmico ao redor do tubo, r_e .

É admitido um valor mínimo para a pressão do gás na saída do reator, de modo a poder vencer os sistemas a jusante, tais como ciclones e filtros. Portanto, o modelo ajusta a pressão de entrada do gás para cada condição de operação, de modo a tornar possível o escoamento do mesmo.

A sequência de cálculo, a seguir descrita, pode ser vista na Figura 5.1.

- A. Leitura dos dados de entrada: propriedades físicas e químicas de gás e sólido, variáveis manipuláveis, parâmetros de cálculo (isto é, valor de Δz para o método de Runge-Kutta);
- B. Adoção de valor estimado para $X_{i\text{prod}}$, ou seja, a concentração de reagente no produto;
- C. Cálculo das condições de entrada no reator. Nesta etapa são calculados: T_s , W_p , X_i e as propriedades físicas do gás. Admite-se aqui que a corrente de reciclo, W_R , esteja à temperatura de equilíbrio entálpico entre gás e sólidos, definida pela Eq. (5.47)

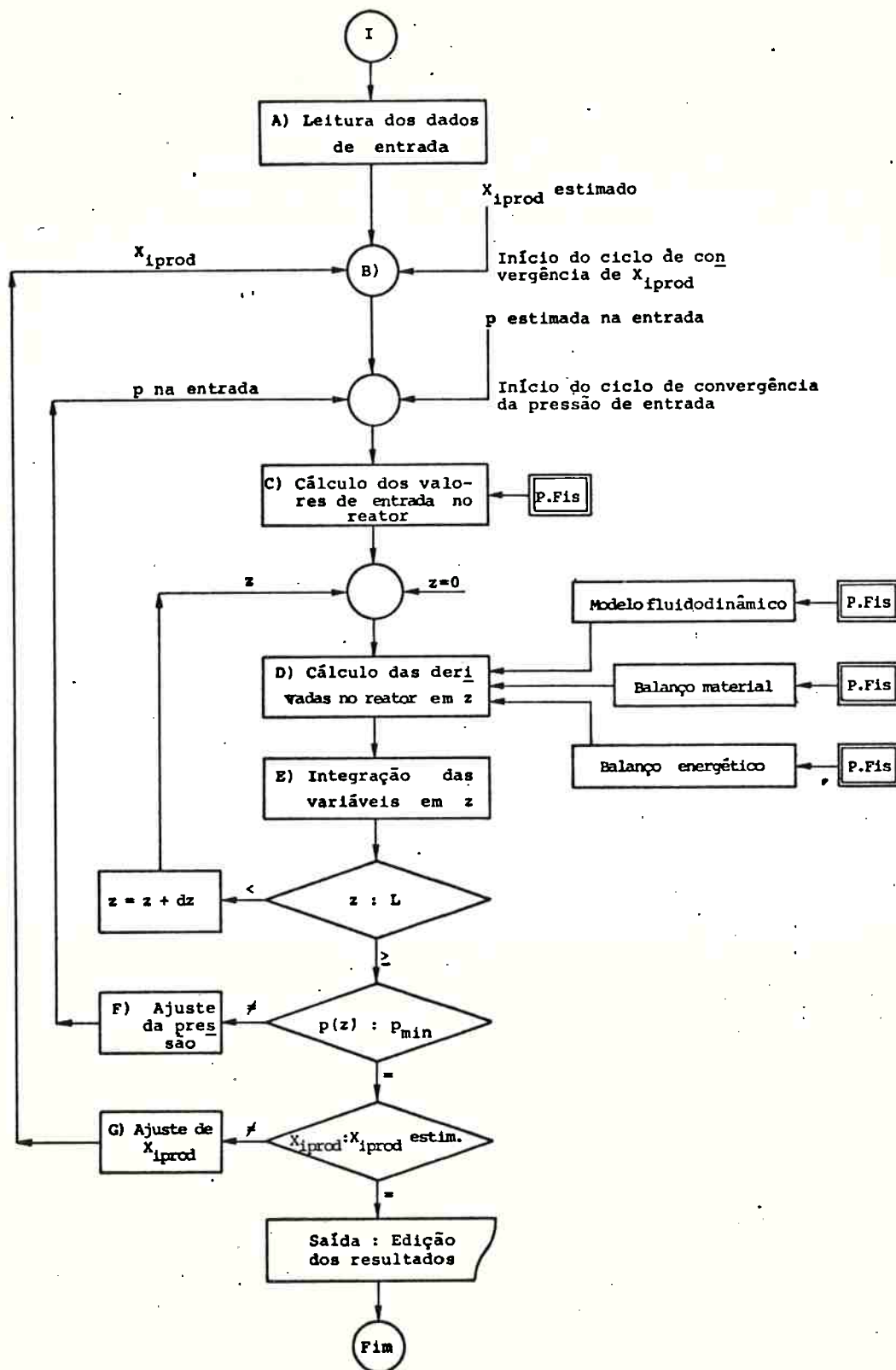


FIGURA 5.1 - Algoritmo da resolução do modelo matemático.

calculada para a saída do reator. Este valor é recalculado a cada passo do processo de convergência executado;

D. Cálculos das variáveis no reator, de $z = 0$ até $z = L$, com intervalo de cálculo Δz . Para cada valor de z são calculados:

D.1- propriedades físicas do gás;

D.2- variáveis fluidodinâmicas: ϵ , W_a , W_d e W_p ;

D.3- queda de pressão no intervalo Δz : $\Delta p/\Delta z$;

D.4- variáveis envolvidas nos balanços material e energético:

$$\frac{dx_i}{dz}, \frac{dG}{dz}, \frac{dy_j}{dz}, \frac{dT_s}{dz} \text{ e os fluxos de calor por unidade de altura } z;$$

E. Integração das variáveis calculadas no passo D. Todas as variáveis envolvidas nos cálculos são atualizadas a cada incremento z . O passo D é executado até $z = L$;

F. Correção do valor da pressão do gás na entrada, em função da queda de pressão total no tubo. Os passos D e E são executados, até que a pressão de entrada seja igual à pressão na saída, mais a queda de pressão total no tubo;

G. Correção do valor de $X_{i\text{prod}}$, em função do valor de X_i calculado em $z = L$. Os passos C até F são executados até que o valor de $X_{i\text{prod}}$ fique estável;

H. Ao final dos cálculos são obtidos os perfis de ϵ , X_i , Y_j , W_p , G , T_s , T_w , T_{ow} , p , ρ_g , ρ_s e todos os fluxos de calor por unidade de comprimento ao longo de z .

Além dos ciclos de convergência indicados na Figura 5.1, há outros, embutidos no modelo fluidodinâmico, para cálculo de W_o e L_{ds} ,

pelas Eqs. (5.9) a (5.12), e no balanço energético, para cálculo de T_w e T_{ow} , pelas Eqs. (5.44) a (5.51).

6. RESULTADOS DA SIMULAÇÃO E DISCUSSÃO

A seguir são apresentados os resultados da aplicação do modelo matemático apresentado no Capítulo 5 à simulação da operação de um reator de leito fluidizado circulante para calcinação de minério de fosfato de alumínio, sob diferentes condições. Inicialmente são comparados os resultados obtidos com o modelo fluidodinâmico apenas, com resultados experimentais publicados, relativos ao perfil axial da concentração de sólidos. Em seguida, o modelo é testado em relação aos dados experimentais com a reação química modelo, em escala de laboratório, apresentados no item 4.2 deste trabalho. Finalmente são efetuadas simulações do desempenho de reatores de leito fluidizado circulante com diferentes geometrias, operando em diferentes condições.

6.1 Teste do modelo fluidodinâmico

A primeira dificuldade que surge, ao se proceder à comparação dos resultados calculados através do modelo com resultados experimentais, refere-se à pouquíssima quantidade de trabalhos publicados que apresentem dados relativos ao perfil de ϵ como função de z . Mesmo as poucas publicações existentes trazem informações incompletas, dificultando a comparação dos resultados. Li Youchou e Kwauk (1980), por exemplo, apresentam alguns gráficos em seu trabalho, os quais oferecem pouca precisão de leitura. Além do mais, os sólidos utilizados nos experimentos não estão adequadamente descritos. Resultados aparentemente precisos são apresentados por Hartge et alii (1986), em função da técnica de medição utilizada (leitura óti

ca, com fonte de raios Laser), bem como, devido à utilização de equipamento de proporções relativamente grandes (diâmetro de 0,4m e altura de 7,8m). Os dados publicados são, no entanto, em pouca quantidade. Rhodes e Geldart (1987) apresentam dados menos precisos, uma vez que baseiam-se na queda de pressão ao longo do reator. Além disso, os dados são apresentados em gráficos de leitura pouco precisa. A comparação do modelo é feita com base nos dados publicados por ambos os autores, em vista das pouquíssimas opções de dados experimentais à disposição.

A Tabela 6.1 mostra os resultados da comparação do modelo com dados desses autores. De modo geral, os valores de ϵ calculados pelo modelo apresentaram desvios relativos menores que 5% em comparação com os dados experimentais. No entanto, os desvios foram maiores na região de maior densidade de suspensão, na parte inferior do tubo de escoamento ($z < L_{ds}$) em relação aos dados de Rhodes e Geldart. Esse desvio maior é devido a dois fatores, aparentemente: primeiro, não foi possível obter-se informações sobre ϵ_{mf} e sobre a distribuição granulométrica das partículas utilizadas por estes autores, tornando necessário assumir-se valores típicos para ϵ_{ds} ; em segundo lugar, é observada uma maior dispersão nos dados experimentais publicados, quando a densidade da suspensão aumenta, fato que contribui para o aumento do desvio.

O modelo testado apresenta perfil de ϵ aparentemente mais próximo do real, sendo mais preciso que o modelo de Rhodes e Geldart (1987), com base na comparação efetuada. No entanto, estudos mais detalhados devem ser efetuados para melhor descrição da concentração de sólidos na parte inferior, mais densa, do tubo de escoamento. Além disso, embora a taxa de decaimento aqui utilizada ($a = 0,5 \text{ m}^{-1}$) tenha-se mostrado adequada, são necessários estudos mais

TABELA 6.1 - Comparação entre os resultados de concentração de sólidos calculados pelo modelo e dados experimentais.

REFERÊNCIA	Condições experimentais					Desvio relativo médio* entre ϵ experimental e calculado em		
	D (m)	L (m)	ρ_p (kg/m ³)	d_p (μ m)	u_g (m/s)	w_p (kg/m ² s)	$z < L_{ds}$	$z \geq L_{ds}$
Rhodes e Geldart (1987)	0,152	6,4	1800	64	2,5	27	--	2,2
						34	17,1	1,4
						41	23,0	3,3
					3,5	47	--	2,6
						67	6,2	3,5
						80	10,6	0,5
					4,5	65	--	2,6
						86	3,4	3,1
						107	5,3	1,1
Hartge et alii (1986)	0,05	3,3	areia (quartzo)	56	3,4	72	--	5,2
						75	--	1,3
	0,40	7,8			4,9	118	3,9	0,8
					5,0	65	--	2,4

$$* \text{Desvio relativo médio} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{|\epsilon_{\text{calc}} - \epsilon_{\text{exp}}|}{\epsilon_{\text{exp}}}, i$$

aprofundados, voltados à correlação da variação da taxa de decaimento da densidade de fluxo de sólidos, em função de propriedades do sistema.

A Figura 6.1 apresenta os resultados do modelo fluidodinâmico, em termos de ϵ calculado e ϵ experimental, medido por Hartge et alii (1986) em reator de 0,4m de diâmetro e 7,8m de altura. A Figura ilustra a forma típica das curvas de $\epsilon = f(z)$, conforme já descritas no Capítulo 2 deste trabalho.

6.2 Comparação com resultados dos testes contínuos de calcinação em laboratório

Os resultados do modelo matemático são aqui comparados com os resultados experimentais de calcinação do minério de fosfato de alumínio de Jandiá (PA), apresentados no Capítulo 4 do presente trabalho.

Para isso, as variáveis e parâmetros do modelo foram fixadas em função das condições dos testes em laboratório. Uma vez que a vazão de reciclo não foi medida nos experimentos, foram realizadas várias simulações para ajuste dessa variável, de modo a se obter ϵ médio no reator igual ao valor medido experimentalmente, o qual serviu de base para o cálculo do tempo de residência médio do sólido:

$$\text{tempo de residência médio} = \frac{\text{massa total de sólidos no reator}}{\text{vazão de alimentação de sólidos}} \quad (6.1)$$

onde:

$$\text{massa total de sólidos} = (1-\epsilon \text{ médio}) \rho_p \frac{\pi D^2 \cdot L}{4} \quad (6.2)$$

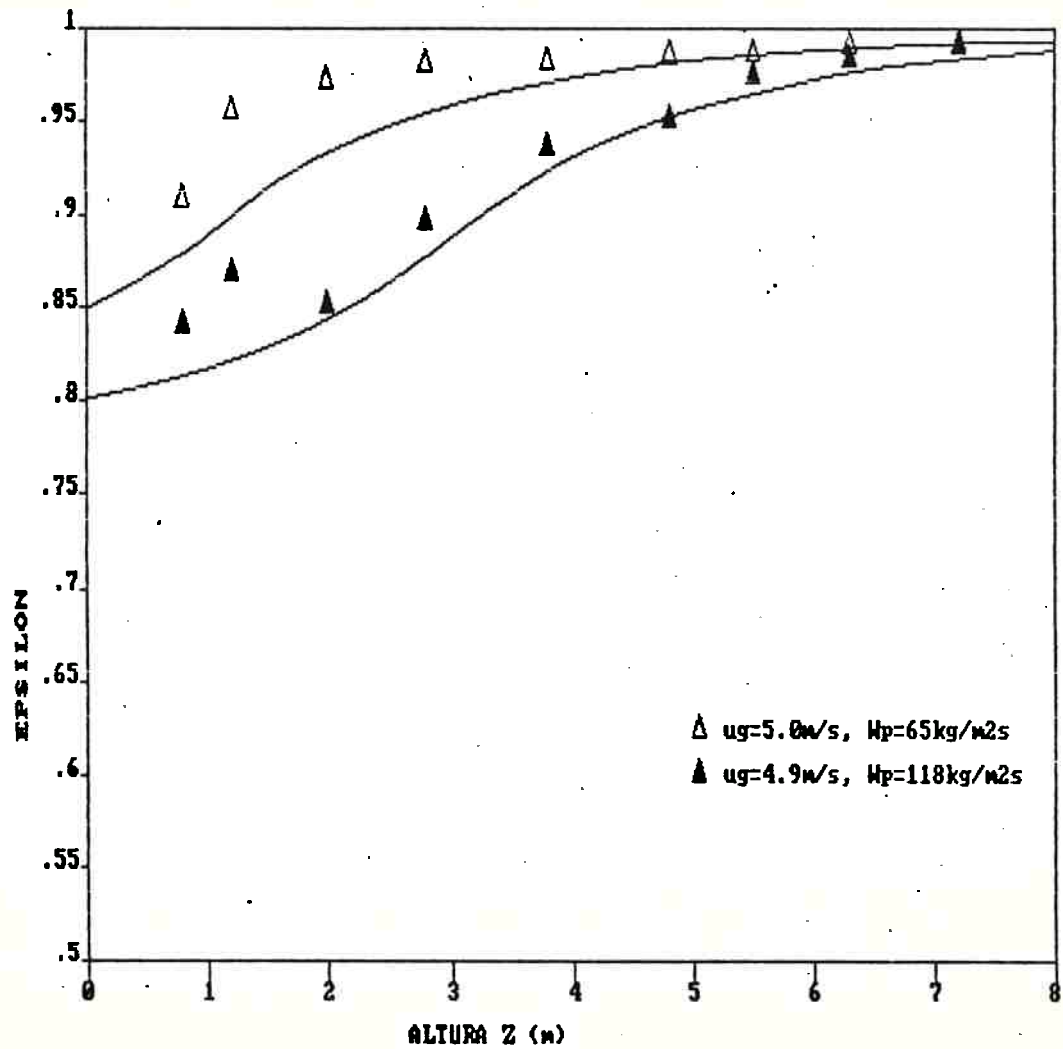


FIGURA 6.1 - Comparação do modelo com dados experimentais publicados por Hartge et alii (1986) para reator com $D = 0,4\text{m}$ e $L = 7,8\text{m}$; o sólido é areia, com $d_p = 56\mu\text{m}$. As curvas representam os valores calculados.

e

$$\bar{\epsilon} = \frac{1}{L} \int_0^L \epsilon dz \quad (6.3)$$

A Figura 6.2 apresenta os resultados obtidos, em termos de X_A experimental e calculado pelo modelo, para os 9 testes contínuos descritos no Capítulo 4. Embora possa ser observado um desvio um pouco maior para o caso de alto valor de X_A , não há qualquer tendência clara nesse sentido, estando os resultados compatíveis com o observado para os demais pontos da figura. Da mesma forma, não é possível verificar qualquer diferença clara nos resultados obtidos com partículas com diâmetro de 0,12mm, podendo-se afirmar que o modelo reproduz com boa precisão (desvio quadrático médio de 5,4%) os dados experimentais. Infelizmente as características do equipamento experimental não permitiram a medição do perfil de ϵ , mas, em todos os experimentos, o valor médio esteve acima de 0,9, o que indica que a recirculação interna de sólidos foi baixa, ficando praticamente toda a recirculação para o circuito externo ao tubo de escoamento, isto é, para o ciclone e sistema de re-alimentação.

6.3 Resultados de simulações

6.3.1 Estudo do efeito da geometria do tubo de escoamento e das variáveis operacionais sobre o perfil axial de ϵ

Uma vez que o modelo fluidodinâmico é formulado em função da altura total do tubo de escoamento, L , o perfil axial de ϵ foi primeiramente calculado, em condições de operação representativas de lei-

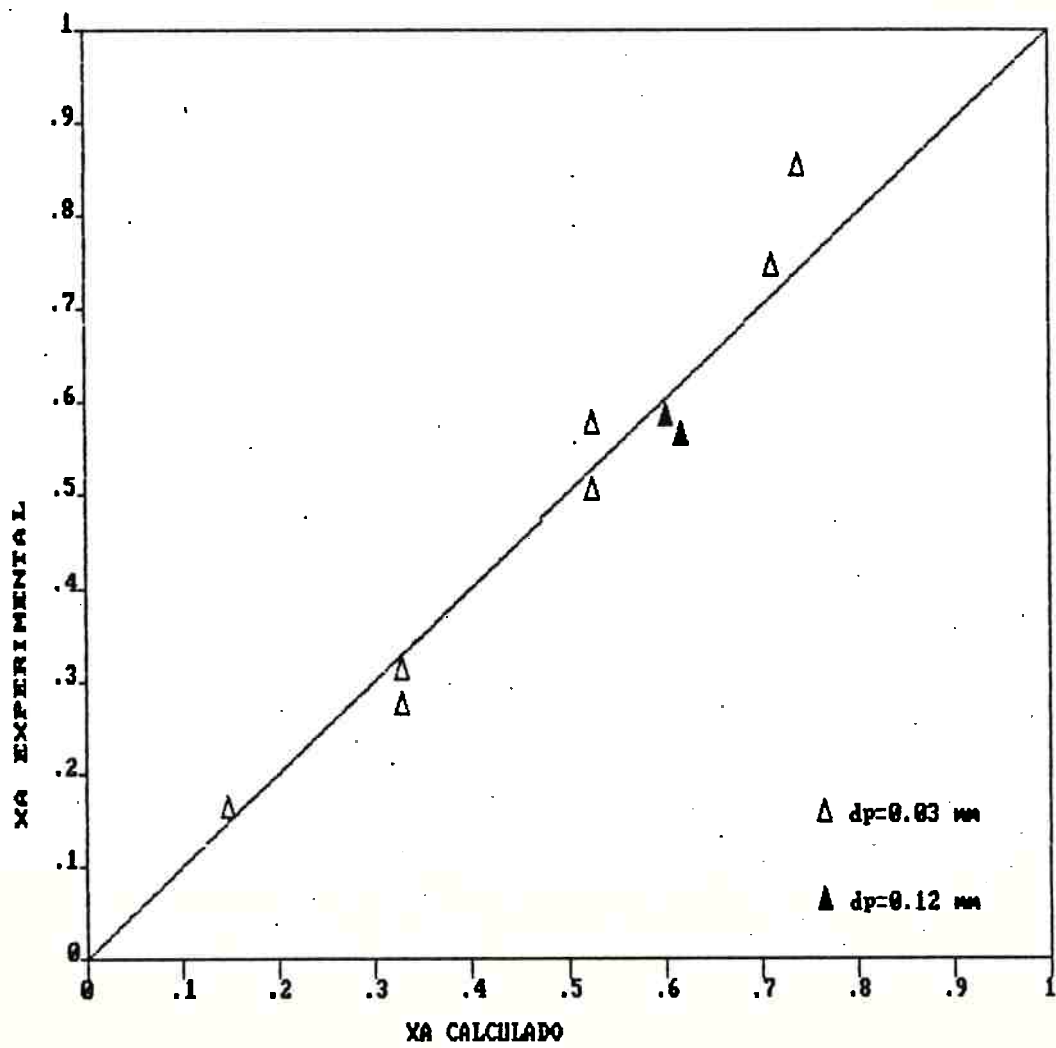


FIGURA 6.2 - Comparação do modelo com os resultados dos testes contínuos de calcinação em escala de bancada (Capítulo 4.2).

tos fluidizados circulantes, para diferentes valores de L. A Figura 6.3 apresenta o perfil de ϵ para dois valores de L e de D, obtidos nas seguintes condições de operação:

$$\begin{aligned} \cdot W_p &= 180 \text{ kg/m}^2\text{s}; \\ \cdot u_g &= 3 \text{ m/s}; \\ \cdot d_p &= 56 \mu\text{m}; \\ \cdot \rho_p &= 2500 \text{ kg/m}^3; \\ \cdot \text{temperatura de operação} &= 25^\circ\text{C}. \end{aligned}$$

As condições foram selecionadas com base nos experimentos de Hartge et alii (1986). Observa-se na Figura 6.3 que o diâmetro do tubo não tem qualquer efeito sobre o perfil de ϵ na parte superior do tubo, com suspensão diluída. Na parte densa, inferior, o efeito do diâmetro do tubo sobre ϵ_{ds} resulta em menor ϵ para maior D. Os efeitos do diâmetro do tubo sobre ϵ persistem até D igual a 1m. Acima deste valor, não há efeito a ser considerado. O aumento na altura do tubo resulta em aumento da altura da parte densa inferior, uma vez que o modelo estima L_{ds} em função da distância em relação à saída do tubo de escoamento. No entanto, devido à maior queda de pressão quando L é maior, as características das curvas são diferentes, isto é, é necessário uma maior pressão do gás na entrada do reator mais longo, o que resulta em diferentes propriedades para o gás. A queda de pressão calculada para todo o tubo de escoamento é de 0,43 bar e de 1,15 bar para valores de L iguais a 8 e 16m respectivamente, mantendo-se fixa uma pressão de 1,1 bar na saída do tubo.

As Figuras 6.4, 6.5 e 6.6 mostram, respectivamente, os efeitos de: diâmetro de partícula, velocidade do gás e densidade de fluxo do sólido, em um tubo de escoamento com $D = 0,4\text{m}$ e $L = 8,0\text{m}$. Obser

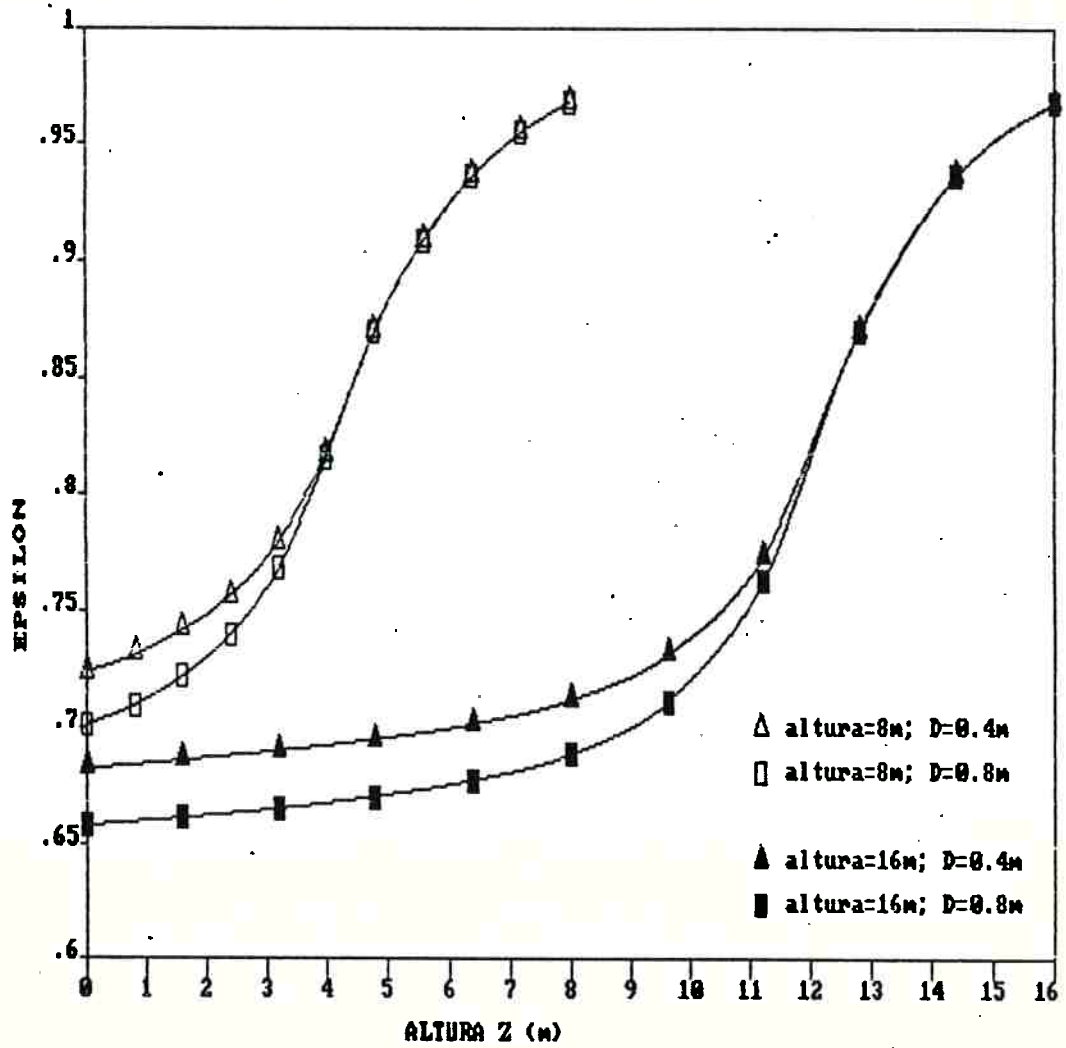


FIGURA 6.3 - Efeito da altura do tubo de escoamento sobre o perfil axial de ϵ , para dois valores de L e D , quando: $W_p = 180 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$; $u_g = 3 \text{ m/s}$; $d_p = 56 \mu\text{m}$; $\rho_p = 2500 \text{ kg/m}^3$.

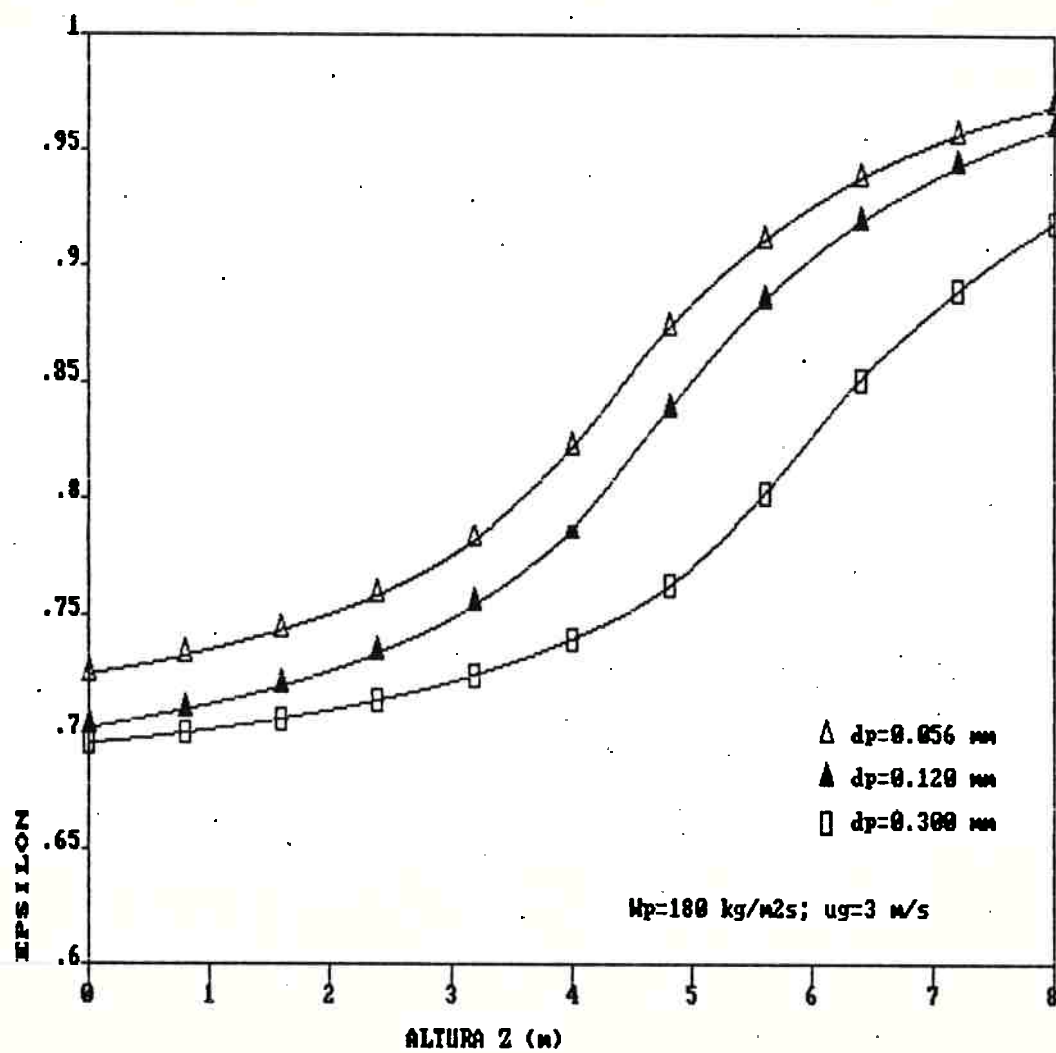


FIGURA 6.4 - Efeito do diâmetro das partículas sobre o perfil axial de ϵ , para $D = 0,4$ m, $L = 8$ m e $\rho_p = 2500$ kg/m³.

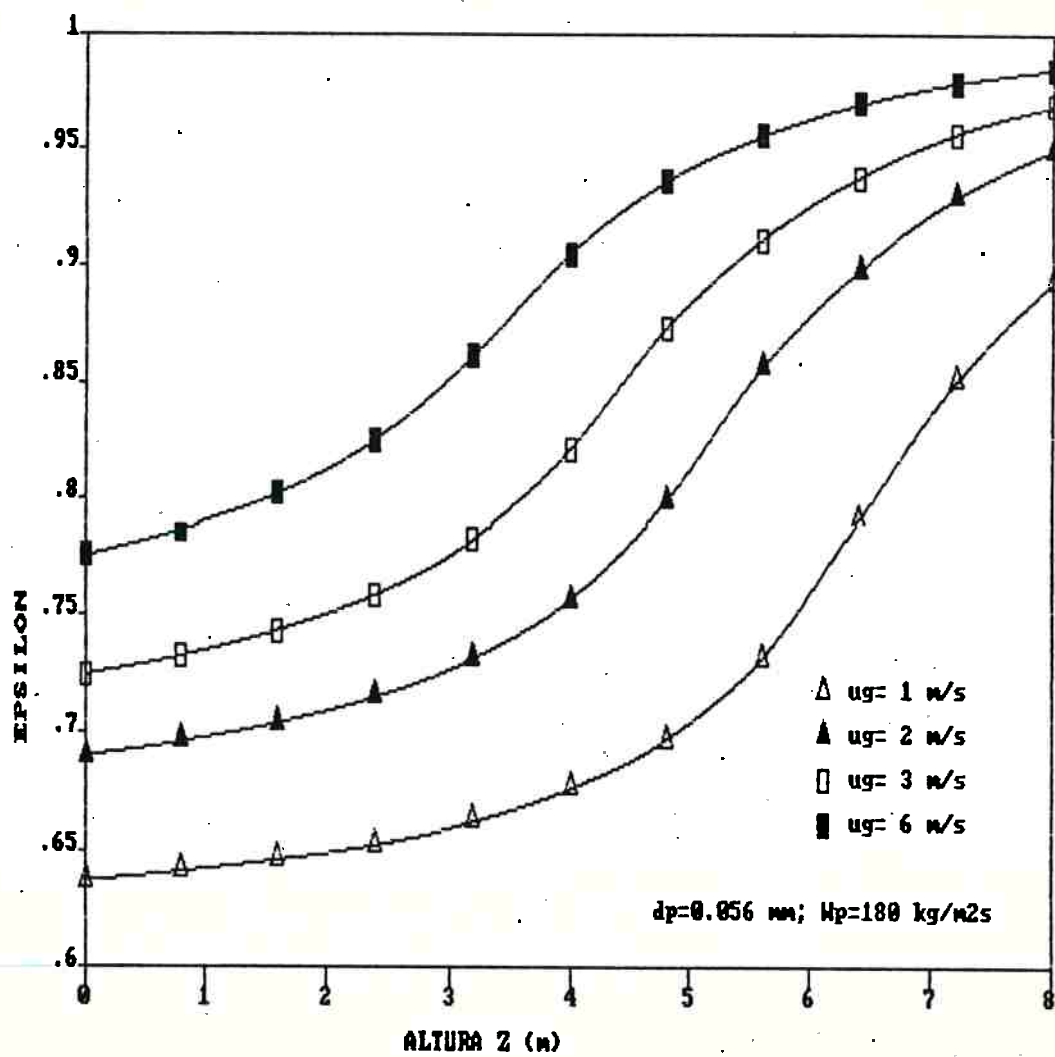


FIGURA 6.5 - Efeito da velocidade do gás sobre o perfil axial de ϵ , para $D = 0,4\text{m}$; $L = 8\text{m}$; $\rho_p = 2500 \text{ kg/m}^3$.

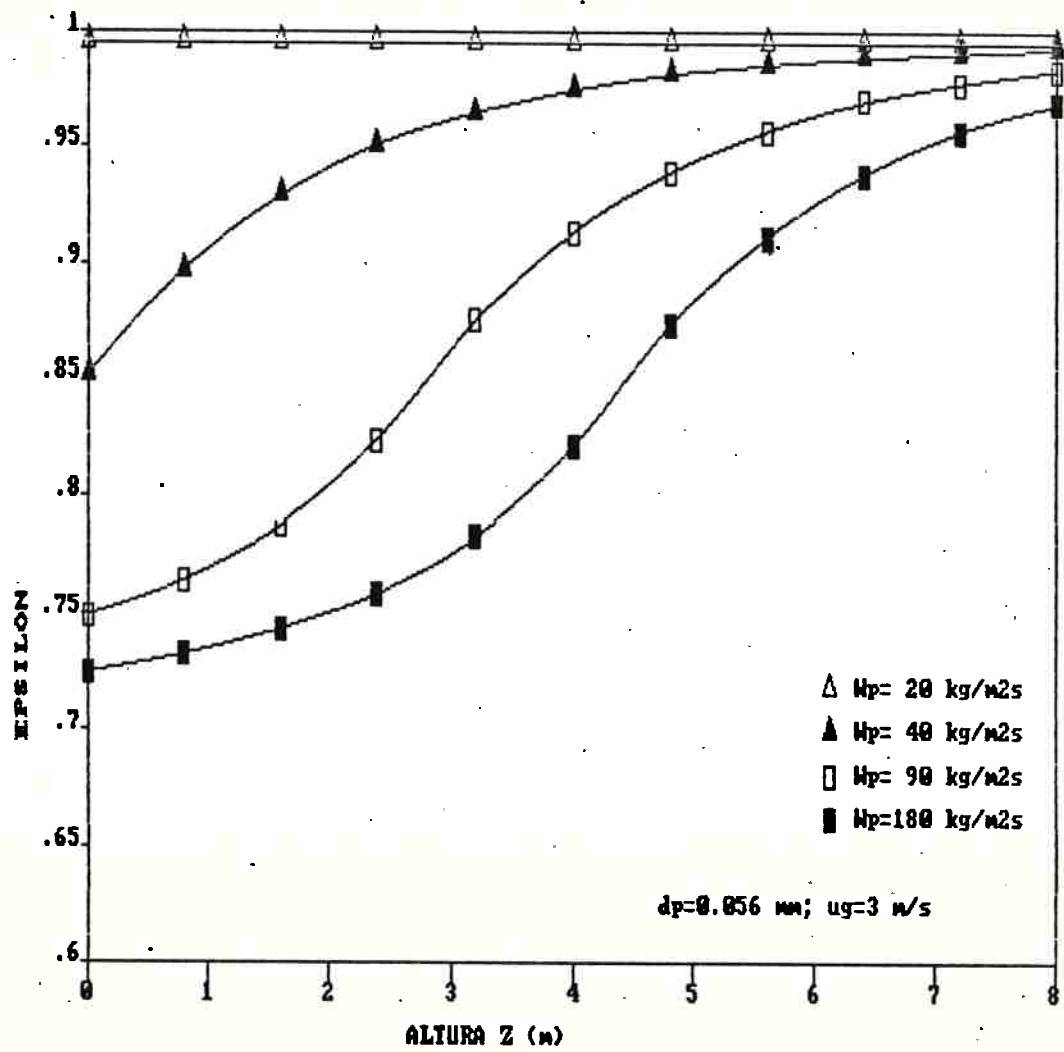


FIGURA 6.6 - Efeito de W_p sobre o perfil axial de ϵ , para $D = 0,4\text{m}$, $L = 8\text{m}$ e $\rho_p = 2500 \text{ kg/m}^3$.

va-se a grande influência de W_p e u_g sobre a concentração de sólidos no leito, enquanto o efeito de d_p é relativamente menor. A operação com partículas maiores resulta em menor expansão do leito, e menor variação axial de ϵ , conforme se observa na Figura 6.4. A diferença observada no espectro da curva para partículas maiores deve-se, aparentemente, ao fato de serem essas partículas classificadas como do tipo B para sistemas de fluidização, enquanto as demais são tipo A ou situam-se na região de transição A-B (Geldart, 1973). A Figura 6.7 mostra o efeito da densidade das partículas para diferentes valores de W_p e u_g . Observa-se que, para partículas mais densas, a diferença entre ϵ na região densa inferior e na região diluída superior é maior, enquanto que, para partículas menos densas, ϵ é mais uniforme ao longo do tubo de escoamento.

6.3.2 Resultados de simulações para o reator de leito fluidizado circulante

Uma série de simulações foi efetuada, para determinar a sensibilidade paramétrica das variáveis do modelo, de forma a se poder identificar características específicas de reatores de leito fluidizado circulante, quando utilizados em reações químicas de calcinação, como a reação modelo aqui adotada.

Inicialmente, fixou-se a temperatura da suspensão na extremidade inferior do reator, bem como as variáveis geométricas, nos seguintes valores: $T_s = 600^\circ\text{C}$; $D = 0,4\text{m}$; $L = 8,0\text{m}$; $r_e = 0,15\text{m}$. Além disso, fixou-se $d_p = 56\mu\text{m}$ e variou-se W_F , u_g , bem como, a taxa de reciclo (W_R/W_{prod}).

A Figura 6.8 apresenta resultados obtidos para $u_g = 2,4 \text{ m/s}$ e diferentes valores de W_F , quando a taxa de reciclo é zero. Obser-

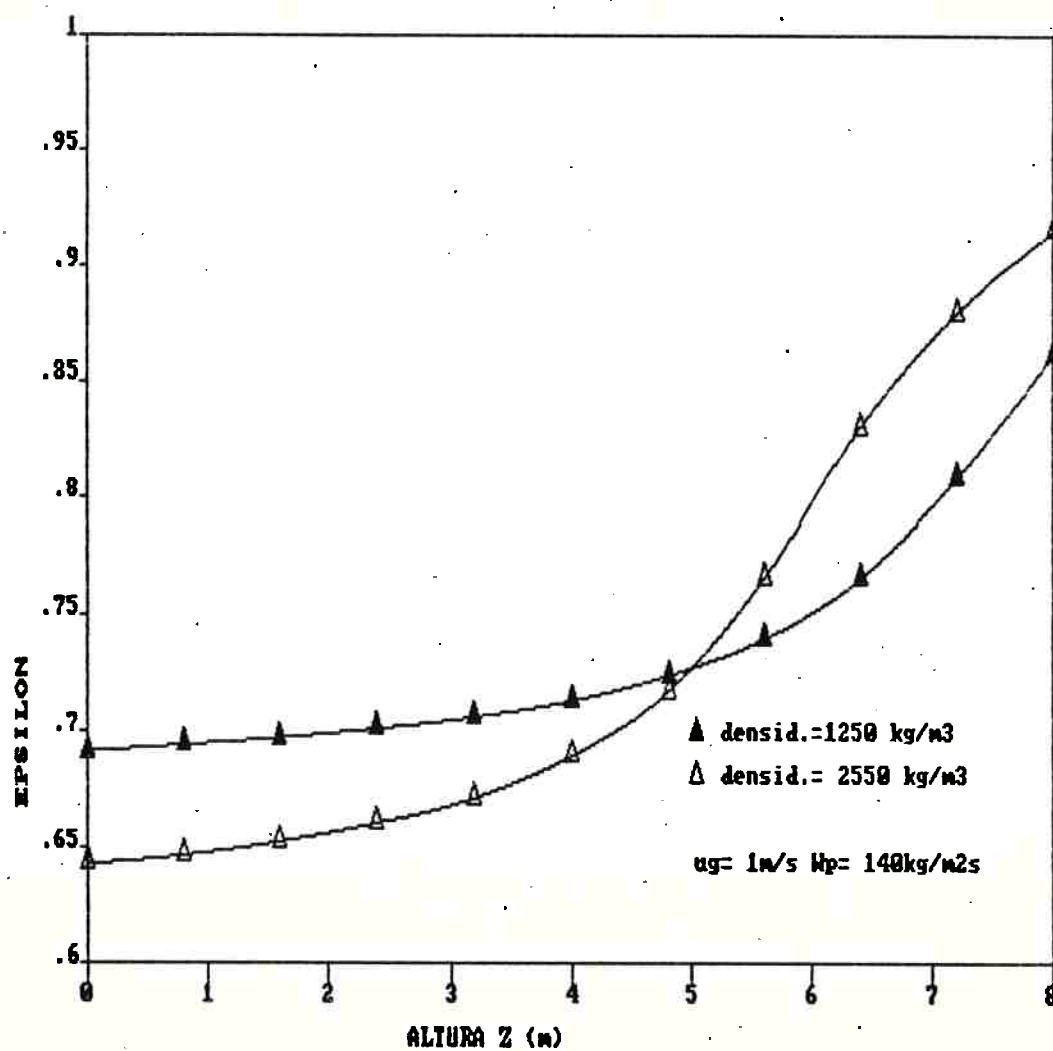


FIGURA 6.7A - Efeito de ρ_p sobre o perfil axial de ϵ , para $d_p = 56 \mu\text{m}$, $D = 0,4\text{m}$ e $L = 8\text{m}$.

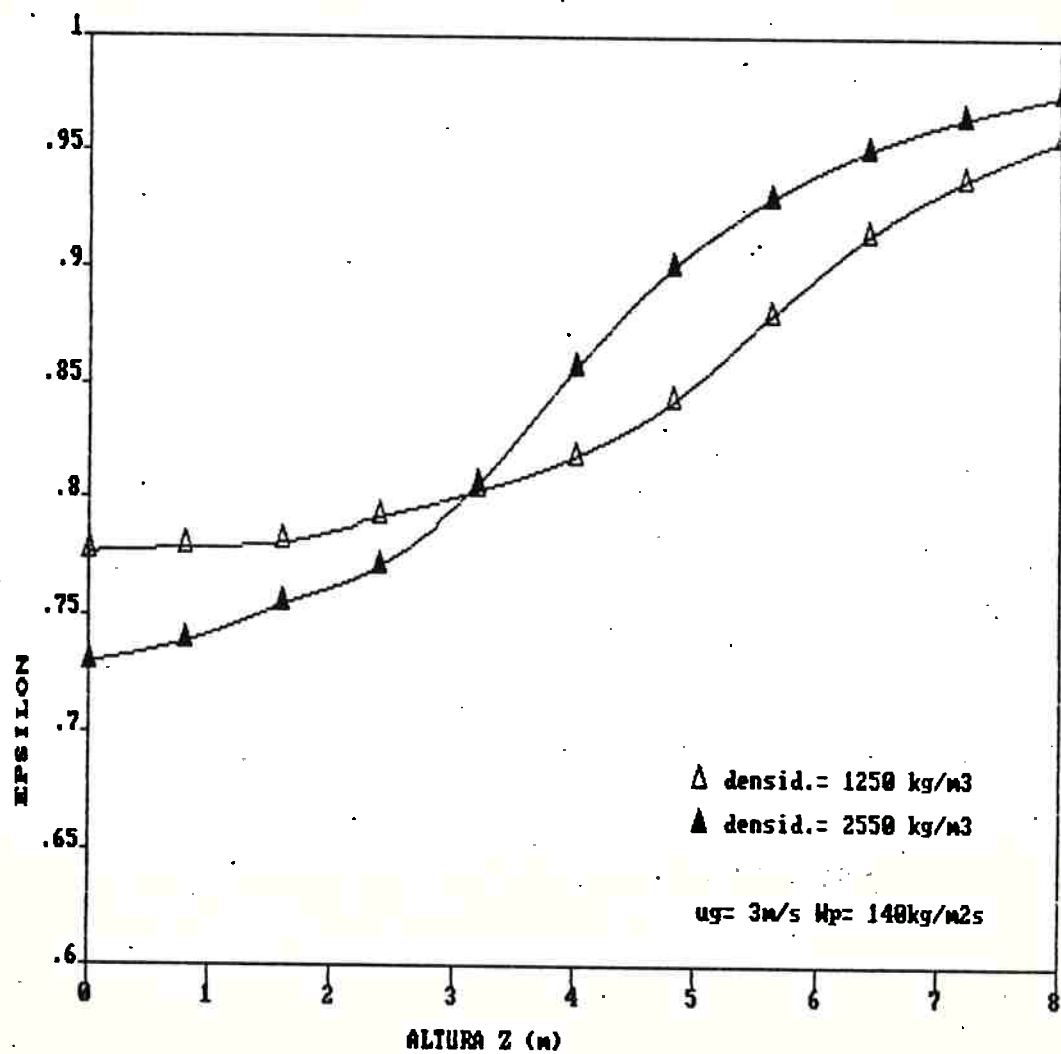


FIGURA 6.7B - Efeito de ρ_p sobre o perfil axial de ϵ , para $d_p = 56 \mu\text{m}$, $D = 0,4 \text{ m}$ e $L = 8 \text{ m}$.

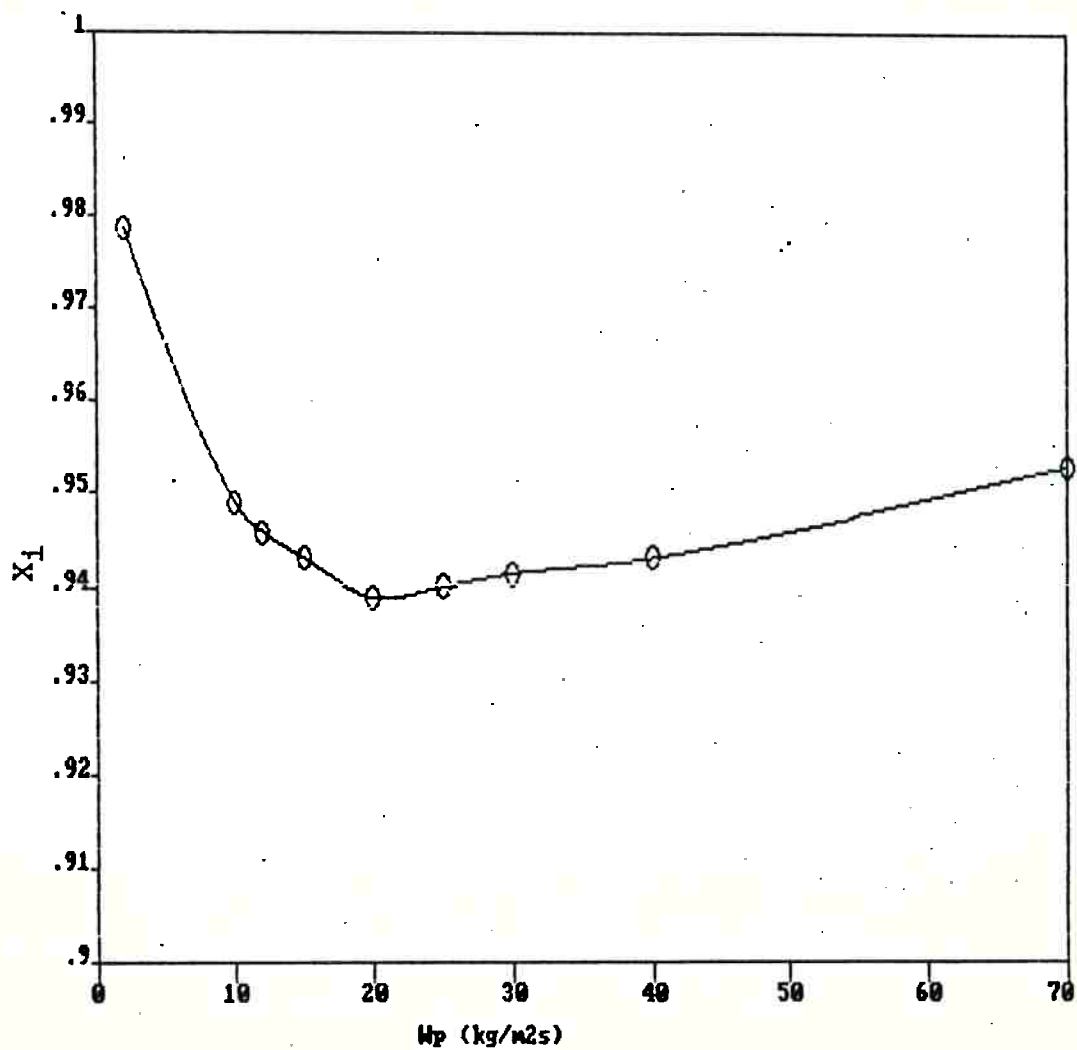


FIGURA 6.8 - Efeito de W_F sobre X_i , quando o reciclo é igual a zero, e: $u_g = 2,4$ m/s; $\rho_{PF} = 2550$ kg/m³; $D = 0,4$ m; $L = 8$ m; $d_p = 56\mu\text{m}$; $T_{SF} = 600^\circ\text{C}$; $re = 0,15$ m.

va-se aqui uma característica peculiar do sistema de leito fluidizado circulante, quando ocorre a transição entre escoamento em fase densa e acúmulo de camada densa, caracterizando o colapso ("choking") do sistema. Para $W_p = 2,0 \text{ kg/m}^2\text{s}$, obtêm-se, pelas correlações de Yang (1975, 1983), $u_{gc} = 2,3 \text{ m/s}$ o que é aproximadamente o valor de u_g adotado. Essa transição faz com que, com o aumento de W_p (e conseqüente aumento de u_{gc}) o sistema ingresse bruscamente numa região de escoamento em fase densa, com o surgimento de uma camada densa na parte inferior do tubo de escoamento. Este fato causa um aumento brusco no tempo médio de residência do sólido no reator, e um máximo na taxa de conversão da reação modelo. A Figura 6.9 apresenta curvas de ϵ em função da altura, para diferentes valores de W_p . A partir do ponto em que se configura a camada densa inferior, o aumento de W_p faz a altura dessa camada (L_{ds}) aumentar, com o conseqüente aumento na concentração média de sólidos no reator. Porém, como o aumento da concentração de sólidos é aproximadamente linearmente proporcional ao aumento de W_p , os efeitos não são tão bruscos como na transição. O valor de X_i aumenta, então, com o aumento de W_p .

A Figura 6.10 apresenta o efeito da variação na taxa de reciclo sobre a concentração de reagente no produto, para duas vazões de alimentação: 2,0 e 10,0 $\text{kg/m}^2\text{s}$. Aqui, novamente, observa-se o efeito da transição de colapso sobre a conversão obtida, isto é, há um ponto de cruzamento das curvas no gráfico apresentado. Assim, para vazões de sólido pequenas, o aumento de W_p causa aumento na conversão. Quando se opera em condições mais próximas da prática, isto é, com altas taxas de reciclo externo, a conversão assume um valor mais próximo do obtido considerando o reator como de mistura, para o sólido.

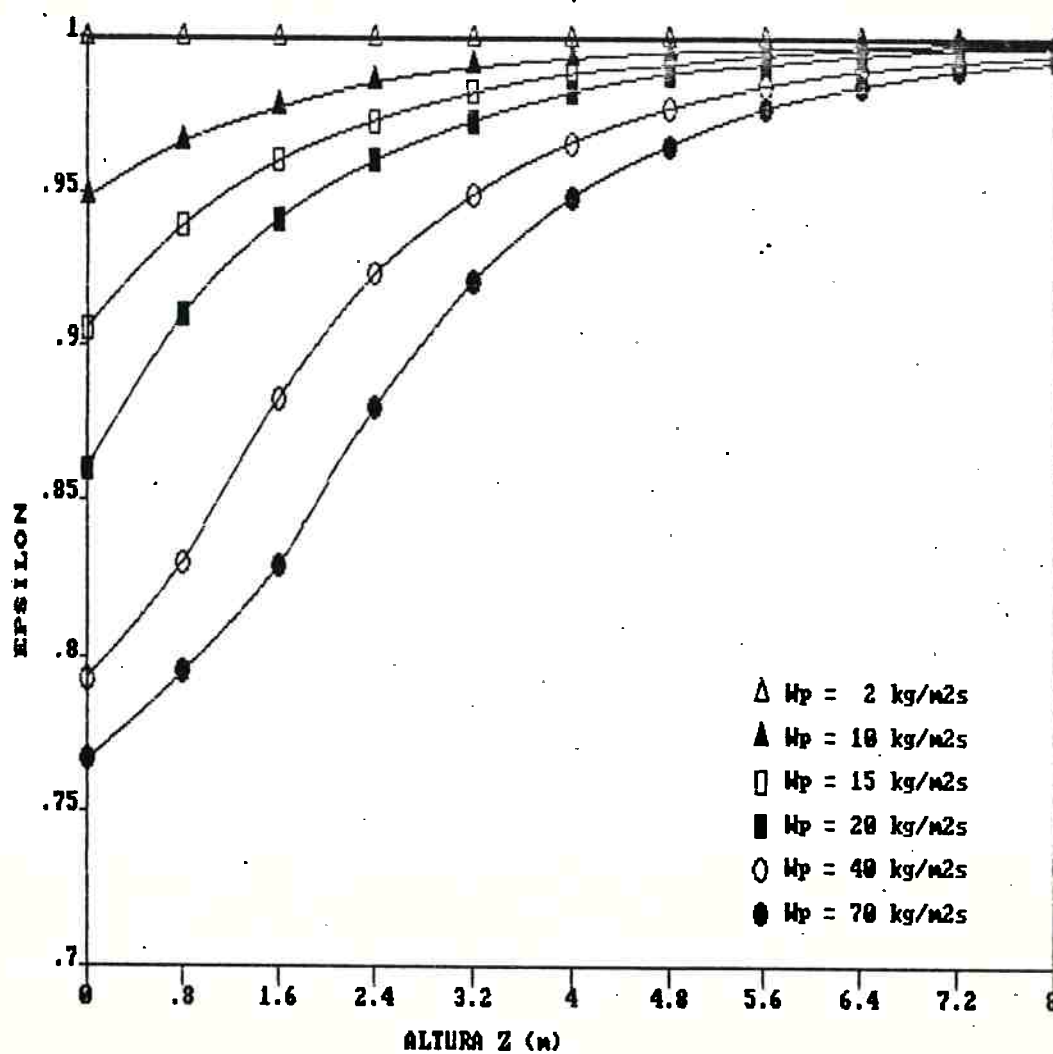


FIGURA 6.9 - Curvas de distribuição axial de ϵ , para diferentes valores de W_p , e: $u_g = 2,4 \text{ m/s}$; $\rho_{PF} = 2550 \text{ kg/m}^3$; $d_p = 56\mu\text{m}$; $D = 0,4\text{m}$, $L = 8\text{m}$; $r_e = 0,15\text{m}$ e $T_{SF} = 600^\circ\text{C}$.

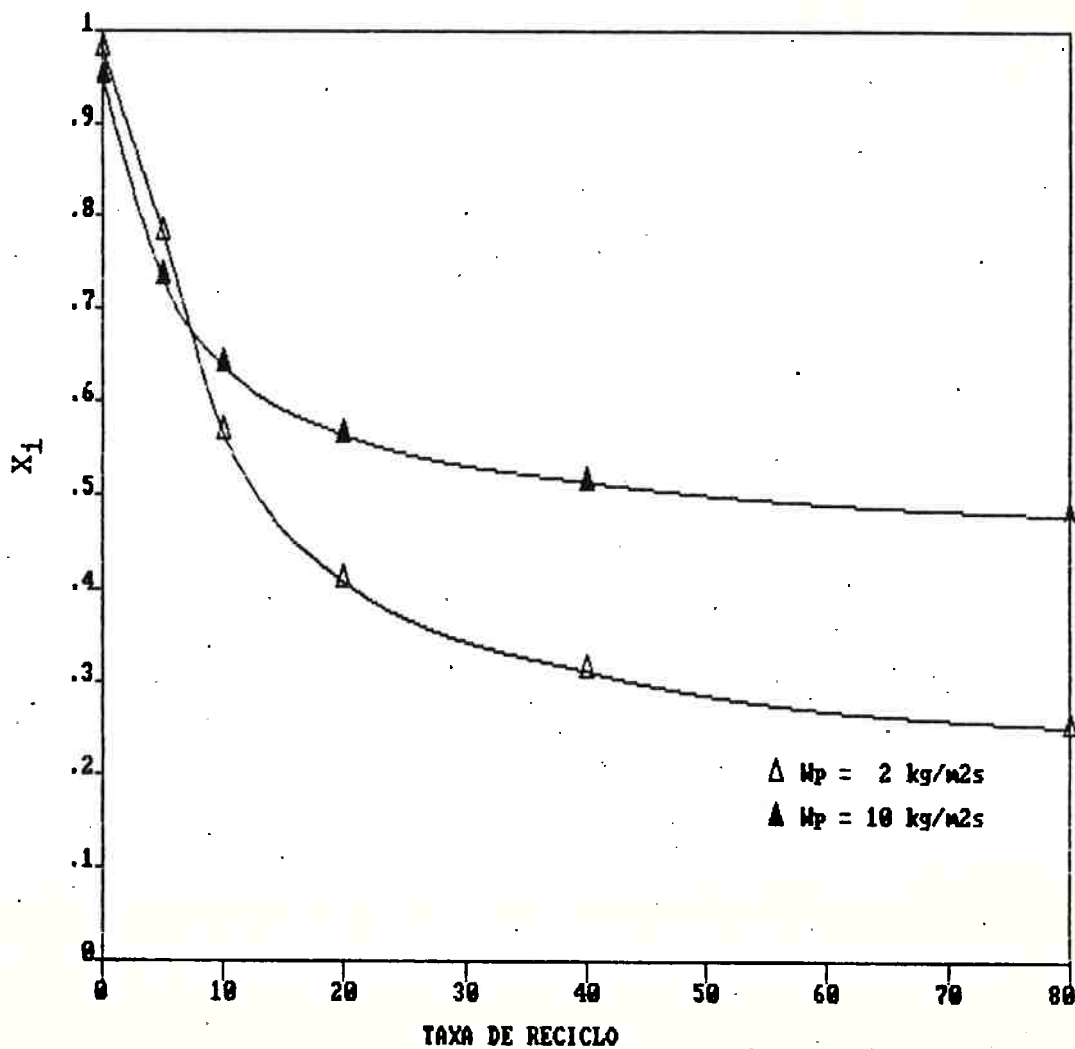


FIGURA 6.10 - Efeito da taxa de reciclo sobre X_1 , para dois valores de W_F , e: $u_g = 2,4 \text{ m/s}$; $d_p = 56 \mu\text{m}$, $\rho_p = 2550 \text{ kg/m}^3$; $T_{SF} = 600^\circ\text{C}$; $D = 0,4\text{m}$; $L = 8\text{m}$ e $re = 0,15\text{m}$.

A Figura 6.11 mostra o efeito da variação do comprimento do reator em X_i , para dois valores do diâmetro: 0,4 e 0,8m, com os valores indicados para as demais variáveis. Mesmo considerando-se a influência do diâmetro sobre ϵ_{ds} , o que ocorre para D menor que 1m, observa-se que não há efeito apreciável desta variável sobre X_i . O efeito da temperatura na entrada do reator sobre X_i pode ser visto na Figura 6.12, a qual indica também que a influência da camada de isolante é muito pequena, para as condições de processamento adotadas. O efeito pronunciado da temperatura é consequência do fato de que, para as condições em que ocorre a reação modelo, a cinética da reação química é o estágio controlador do processo.

A diminuição na camada de isolante de 0,15m para 0,01m resultou em aumento das perdas para o ambiente em cerca de 10 vezes. Porém, devido à grande circulação interna de sólidos, não foi observada variação no perfil axial de temperatura. Esta diminuiu em cerca de 7°C (para uma temperatura de entrada de 500°C) ao longo de todo o reator, resultando na diminuição observada em X_i . A diferença de temperatura entre a entrada e o topo do reator, para $L = 8,0m$, é de 22°C para uma temperatura de entrada igual a 500°C.

O efeito da velocidade do gás sobre X_i pode ser visto na Figura 6.13, para dois diâmetros de partícula.

Conforme se observa, o aumento de u_g causa diminuição na taxa de conversão, como consequência do aumento no valor médio de ϵ . A velocidade mínima do gás é limitada, no entanto, pela velocidade terminal das partículas, u_t , bem como pela capacidade do gás em transportar sólidos à taxa de entrada, W_p . Para valores de u_g menores, o leito passa ao estado turbulento, isto é, intermediário entre leito fluidizado convencional e leito circulante. As correlações utilizadas no presente modelo deixam de ser válidas nessas condições.

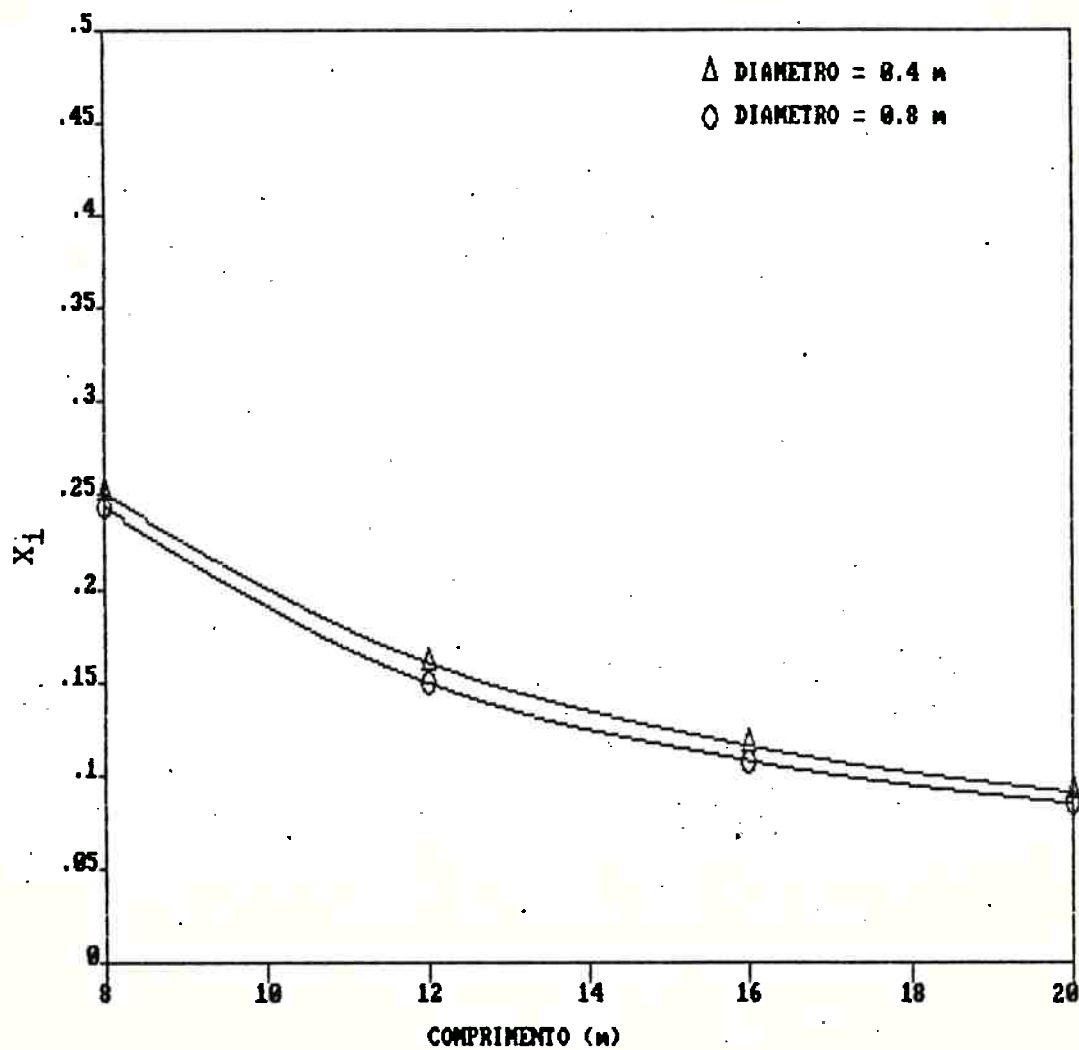


FIGURA 6.11 - Efeito do comprimento do reator sobre X_i , para dois valores de D , e: $W_F = 2,0 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$, $W_R/W_{\text{prod}} = 80$, $u_g = 2,4 \text{ m/s}$; $T_{sF} = 600^\circ\text{C}$; $\rho_{pF} = 2550 \text{ kg/m}^3$; $d_p = 56 \mu\text{m}$ e $re = 0,15\text{m}$.

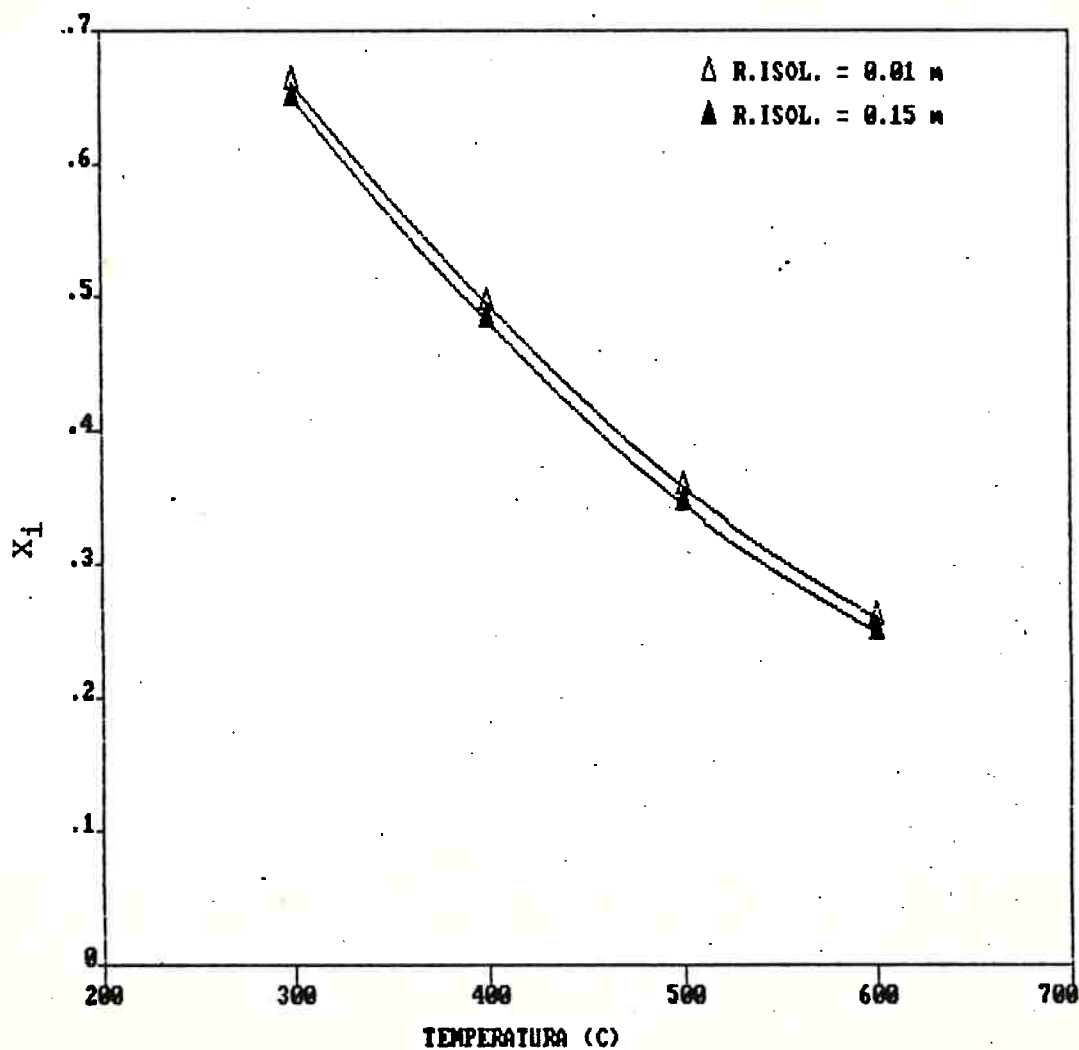


FIGURA 6.12 - Efeito da temperatura na entrada do reator, T_{SF} , sobre X_i , para dois valores de re , a espessura do isolante ($r. isol.$, na figura), e: $W_F = 2,0 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$; $W_R/W_{prod} = 80$; $u_g = 2,4 \text{ m/s}$, $d_p = 56 \mu\text{m}$; $\rho_{PF} = 2550 \text{ kg/m}^3$; $D = 0,4 \text{ m}$ e $L = 8 \text{ m}$.

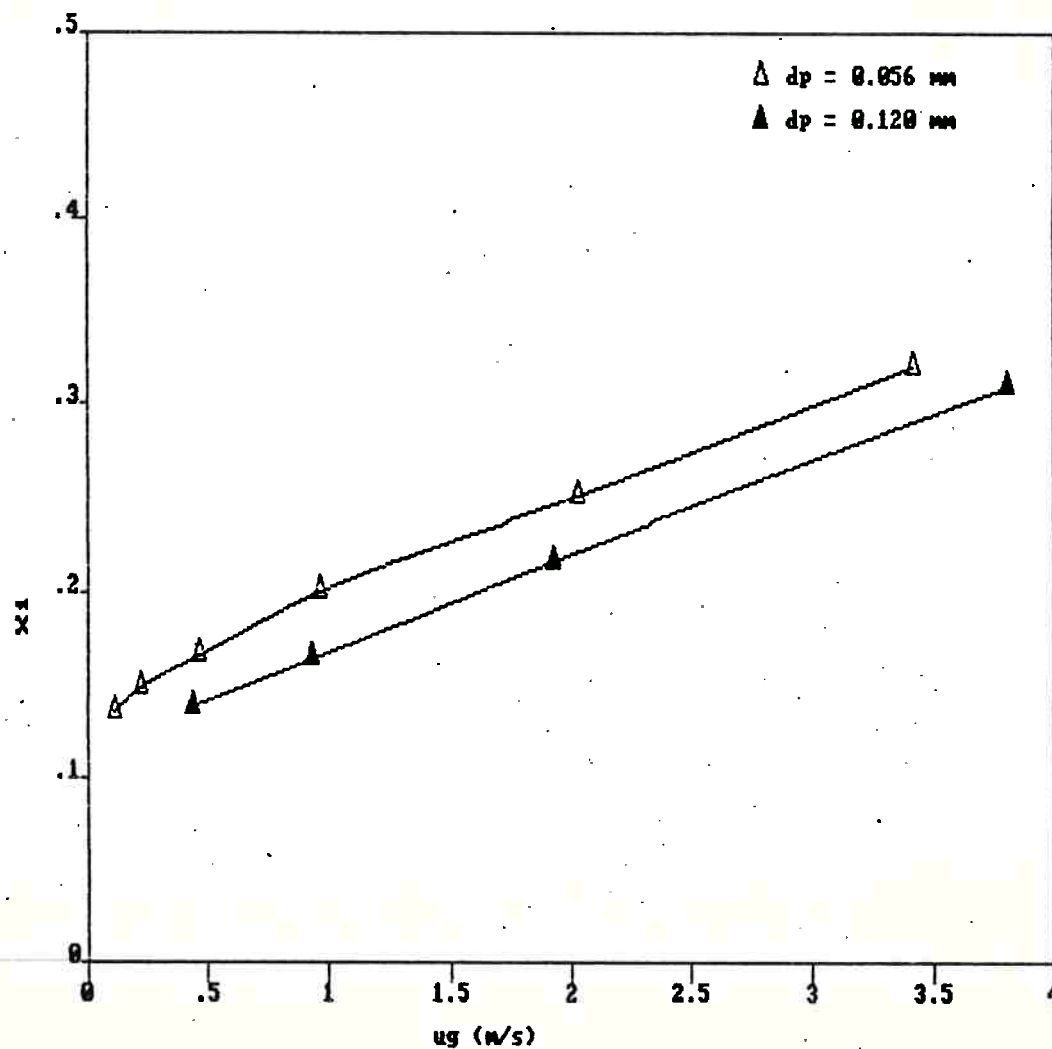


FIGURA 6.13 - Efeito da velocidade do gás sobre X_1 , para dois valores de d_p , e: $W_F = 2,0 \text{ kg/m}^2\text{s}$; $W_R/W_{\text{prod}} = 80$; $T_{SF} = 600^\circ\text{C}$; $\rho_{pF} = 2550 \text{ kg/m}^3$; $D = 0,4\text{m}$; $L = 8\text{m}$ e $re = 0,15\text{m}$.

As Figuras 6.14, 6.15 e 6.16 apresentam, respectivamente, os perfis axiais de ϵ , X_i e Y_j para dois valores da taxa de reciclo e $W_F = 2,0 \text{ kg/m}^2\text{s}$.

Observa-se que, quando a taxa de reciclo é baixa, ϵ tem valores altos e a variação axial de X_i é maior. Quando a taxa de reciclo é alta, o perfil axial de X_i apresenta pequena variação; a diminuição de ϵ causa a maior conversão observada. O perfil axial de Y_j corresponde sempre ao escoamento do gás sem mistura axial. O maior reciclo do sólido resulta em menor ϵ médio, correspondendo a uma maior taxa de geração do componente j no gás (no caso, H_2O).

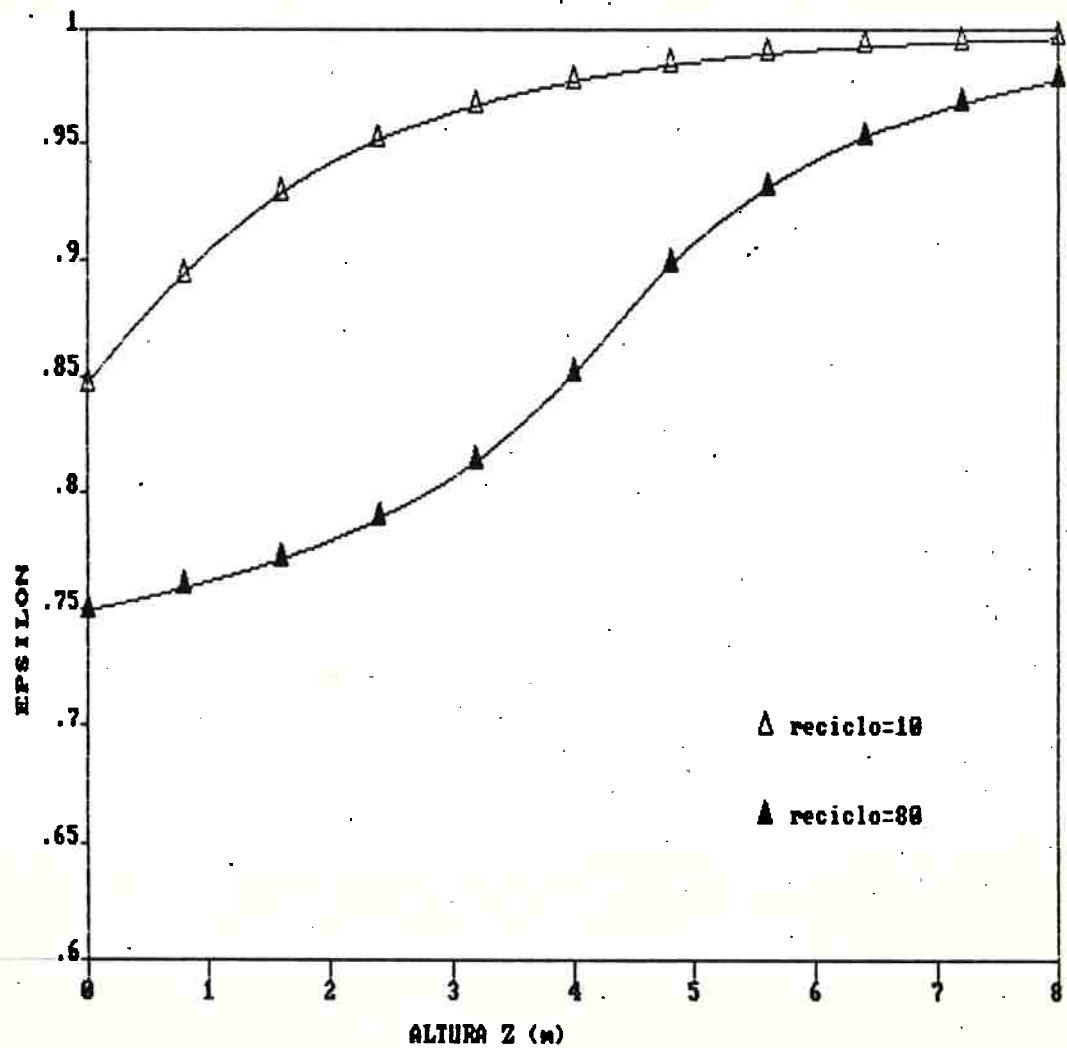


FIGURA 6.14 - Perfil axial de ϵ , para duas taxas de reciclo externo e: $W_F = 2,0 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$; $u_g = 2,4 \text{ m/s}$; $T_{SF} = 600^\circ \text{C}$; $d_p = 56 \mu\text{m}$; $\rho_{PF} = 2550 \text{ kg/m}^3$; $D = 0,4 \text{ m}$; $L = 8 \text{ m}$ e $re = 0,15 \text{ m}$.

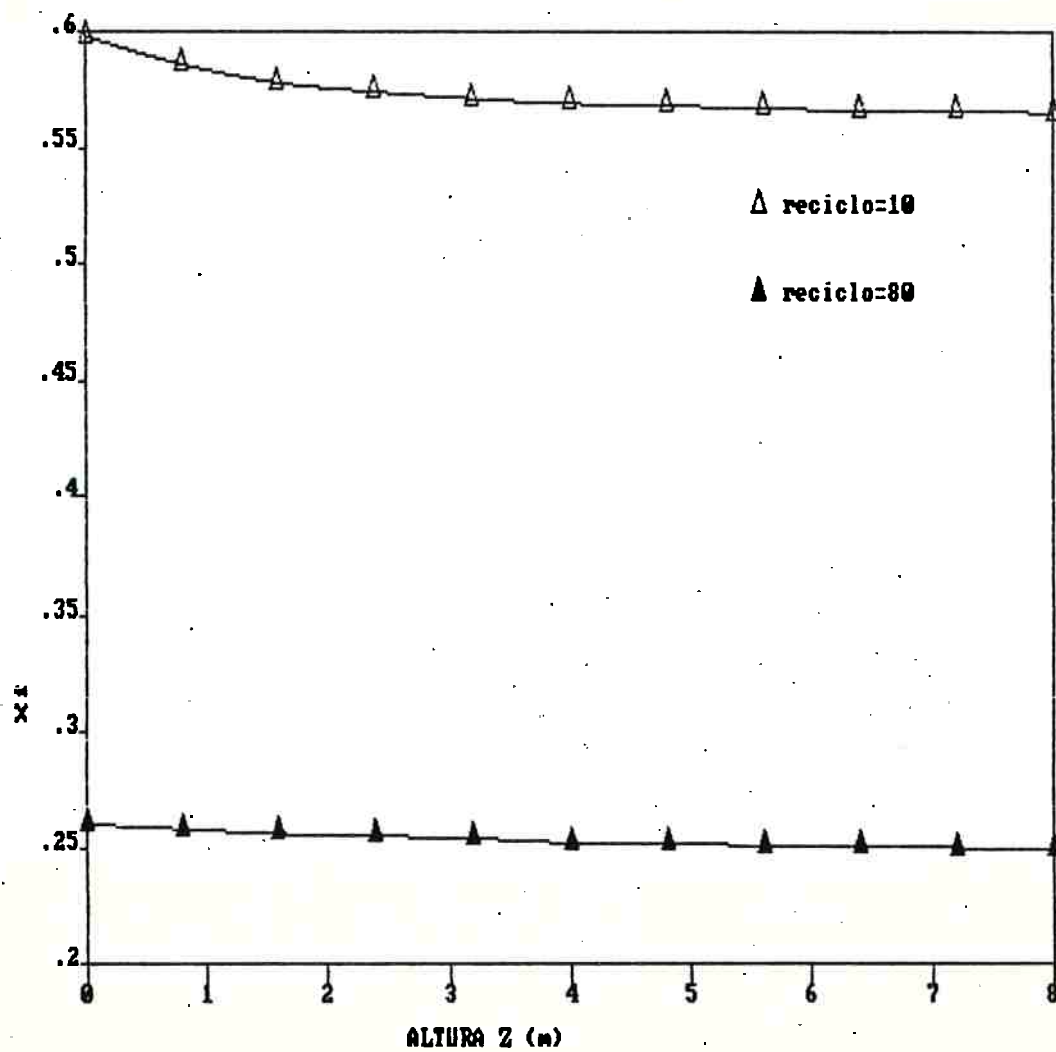


FIGURA 6.15 - Perfil axial de X_i para dois valores da taxa de reciclo externo e mesmas condições que a Figura 6.14.

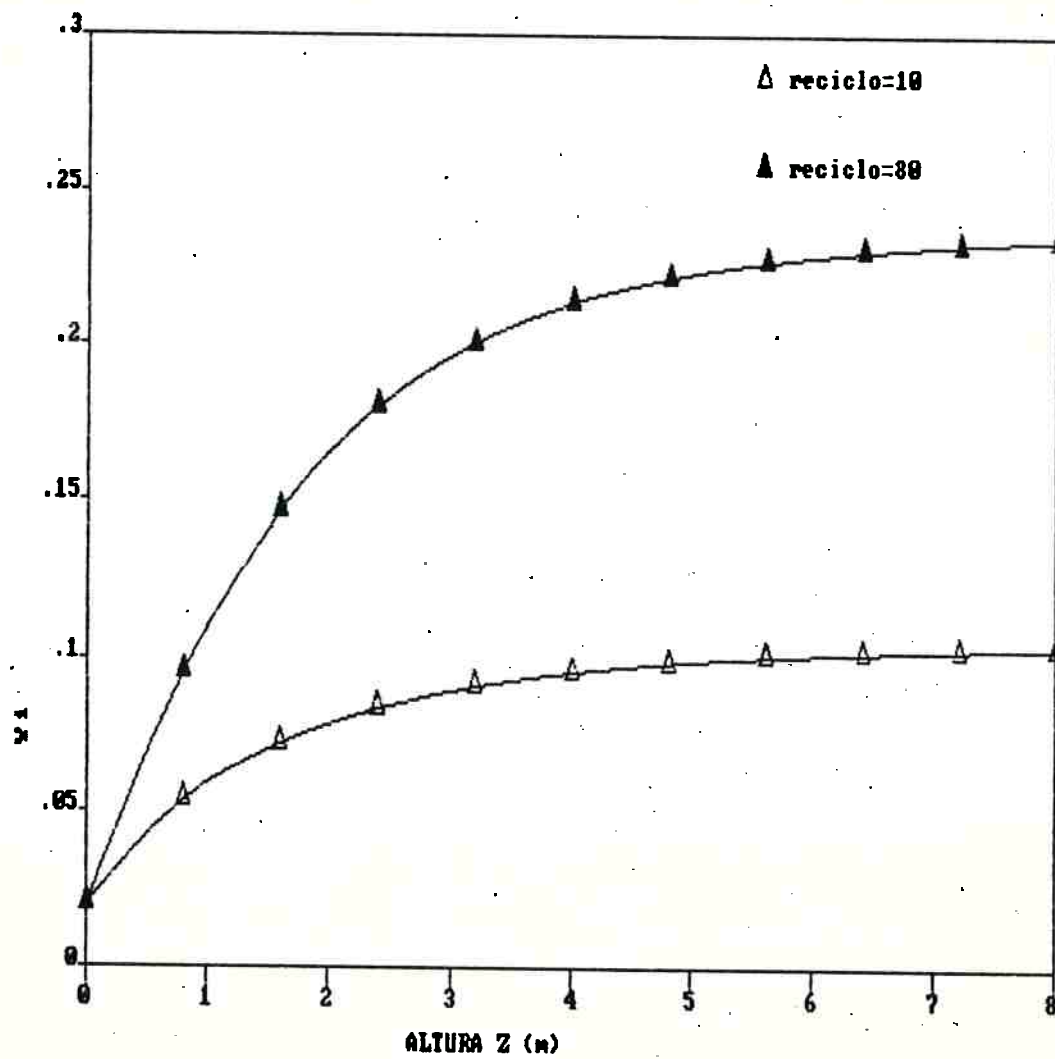


FIGURA 6.16 - Perfil axial de Y_j para dois valores da taxa de reciclo externo e mesmas condições para a Figura 6.14.

7. CONCLUSÕES

A seguir são apresentadas as conclusões gerais do presente trabalho, com base nos resultados apresentados e discutidos nos Capítulos 4 e 6.

7.1 Caracterização fluidodinâmica

- a) Os resultados experimentais confirmam a viabilidade de caracterização da transição de colapso do escoamento ("choking") através do valor máximo da pressão diferencial ao longo do tubo de escoamento. Os resultados apresentam boa concordância com correlações conhecidas para previsão do colapso do escoamento;
- b) A transição entre escoamento em fase diluída uniforme e em fase densa, com recirculação, característica de fluidização rápida, é viável de ser detectada através do sinal do coeficiente de um modelo auto-regressivo de primeira ordem, ajustado à série temporal das oscilações de pressão diferencial. Esta metodologia aparenta ser adequada para aplicação ao diagnóstico das condições de escoamento em leitos fluidizados circulantes;
- c) A análise espectral das frequências de oscilação de pressão diferencial representa um método importante de caracterização do regime de escoamento para sistemas de escoamento gás-sólidos.

7.2 Reação modelo

- a) O estudo das transformações térmicas do minério de fosfato de alumínio e sua relação com a qualidade do produto para utilização como fertilizante fosfatado, isto é, a sua solubilidade no solo, permitiu identificar as condições mais adequadas ao seu processamento;
- b) O estudo mineralógico, juntamente com análise térmica, permitiu estimar a cinética aparente da reação de decomposição do minério, bem como a variação de entalpia a ela associada e o calor específico do material;
- c) Os experimentos em reatores de leito fluidizado de bancada permitiram evidenciar as vantagens comparativas de leitos fluidizados circulantes em relação a leitos fluidizados convencionais, para a reação modelo.

7.3 Modelagem matemática

- a) O modelo fluidodinâmico proposto mostrou concordância quantitativa com dados experimentais publicados por outros autores (Hartge et alii, 1986; Rhodes e Geldart, 1987), sendo os desvios compatíveis com as necessidades normais de projeto;
- b) O modelo global proposto, apesar das hipóteses simplificadas adotadas, mostrou-se adequado, uma vez que apresentou boa concordância com dados experimentais obtidos com reator de bancada;

- c) O estudo das sensibilidades paramétricas das variáveis de processo e de projeto do modelo identificou aspectos peculiares do sistema de leito fluidizado circulante, relacionados à grande influência das condições fluidodinâmicas sobre o desempenho de reatores desse tipo;
- d) De um modo geral, o modelo foi capaz de prever as principais características de leitos fluidizados circulantes, no que se refere ao valor médio das variáveis em reatores operando em regime permanente.

A otimização do sistema estudado, através de um estudo específico e mais preciso, é tema de trabalho futuro, subsequente ao presente.

De grande interesse deverá ser a adaptação do presente modelo a outros processos, com sistemas reacionais mais complexos, de modo a possibilitar o aperfeiçoamento do modelo, bem como, visando ao projeto de sistemas de leito fluidizado circulante para diferentes sistemas industriais.

8 - REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ABRAHAMSEN, A.R. & GELDART, D. Powder Technol., 26:35, 1980.
2. AKAIKE, H. IEEE Trans., AC-19:716, 1974.
3. ARASTOPOUR, H. & GIDASPOW, D. Powder Technol., 22:77-87, 1979.
4. BAKER, R.R. Thermoch. Acta, 23:201-12, 1978.
5. BASU, P. & NAG, P.K. Int. J. Heat Mass Transfer, 30:2399-409, 1987.
6. BENDAT, J.S. & PIERSOL, A.G. Random Data: analysis and measurement procedures. New York, John Wiley, 1971. 407p.
7. BOX, G.E.P. & JENKINS, G.M. Time Series Analysis. 2ed. San Francisco, Holden Day, 1976. s.p.
8. BRAUN, W.A.G. Fertilizantes, 5(1):3-11, 1983.
9. BRIENS, C.L. & BERGOUGNOU, M.A. Can. J. Chem. Eng., 64:196-204, 1986.
10. BROEDERMANN, P. The circulating fluid bed for calcining fine-grained materials. Frankfurt a.M., Lurgi GmbH, 1981. (Lurgi Express Information, C 1384). 29p.
11. CAPES, C.E. & NAKAMURA, K. Can. J. Chem. Eng., 51:31-8, 1973.
12. COSTA, M.L. & SÁ, J.H.S. Os fosfatos lateríticos da Amazônia oriental: geologia, mineralogia, geoquímica e correlação com as bauxitas da Amazônia. In: Congresso Brasileiro de Geologia, 31. Anais... Camboriu, 1980.
13. COSTA, M.L. Brasil Mineral, 6:38, maio, 1984. (seção cartas).
14. CRUZ, E.D.S. Eficiência relativa de fosfatos naturais da Amazônia oriental. Belém, EMBRAPA/CPATU, 1981. (Pesquisa em Andamento, 6) 3p.

15. DANZIGER, W.J. Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev., 2:269, 1963.
16. DAVIDSON, J.F. & HARRISON, D. Fluidized Particles. Cambridge. Cambridge University Press., 1963. s.n.p.
17. ERGUN, S. Chem. Eng. Progr., 48(2):89-94, 1952.
18. FARBER, L. & MORLEY, M.J. Ind. Eng. Chem., 49:1143, 1957.
19. FRALEY, L.; LIN, Y.Y.; HSIAO, K.H. & SOLBAKKEN, A. Heat transfer coefficient in circulating bed reactor. Seattle, 1983. (A.S.M.E. Paper 83-HT-92). (citado por Subbarao & Basu, 1986).
20. GELDART, D. Powder Technol., 7:285-92, 1973.
21. GNIELINSKI, V. Intern. Chem. Eng., 16:359-68, 1976.
22. GOEDERT, W.J. & LOBATO, E. Rev. Bras. Ciên. Solo, 8:97-102. 1981.
23. GRACE, J.R. Heat transfer in circulating fluidized beds. In: Circulating Fluidized Bed Technology. Proc. Halifax, Canada, 1986. p.63-81.
24. HARTGE, E.U.; LI, Y. & WERTHER, J. Flow structures in fast fluidized beds. In: International Conference on Fluidization, 5. Proc. Kopenhagen, 1986. s.c.p.
25. HASHIMOTO, O.; HARUTA, T.; MORI, S.; HIRAOKA, S.; YAMADA, I.; KUWA, M. & SAITO, Y. Simulation model of turbulent fluidized-bed catalytic reactor. In: Asian Conference on Fluidized Bed and Three Phase Reactors. Proc. Tokyo, 1988. p.306-14.
26. HUGHES, R. & DEUMAGA, V. Chemical Engineering, 81(11):15-100, May, 1974.
27. I.E.E.E. - Institute of Electrical and Electronic Engineers. Programs for Digital Signal Processing. New York, John Wiley, 1979. s.n.p.

28. ISHII, H.; NAKAJIMA, T. & HORIO, M. The structure of flow fields in circulating fluidized beds. In: Asian conference on fluidized bed and three-phase reactors. Proc. Tokyo, 1988. p.139-46.
29. KIANG, K.D.; LIU, K.T.; NACK, H. & OXLEY, J.H. Heat transfer in fast fluidized beds. In: Fluidization Technology. Washington, D.C., Hemisphere, 1976. v.2, p.471-83.
30. KOBAYASHI, H.; ARAI, F. & SHIBA, T. Chem. Eng. Japan, 29:858, 1965. (citado por Wen e Fan, 1975).
31. KUNII, D. & LEVENSPIEL, O. Fluidization Engineering. New York, John Wiley & Sons, 1969. 534p.
32. LEE, C.K.; CHOI, J.H. & SON, J.E. Axial density profile in a cold mode simulating the circulating fluidized bed combustor. In: Asian Conference on Fluidized Bed and Three-Phase Reactors. Proc. Tokyo, 1988. p.179-86.
33. LEUNG, L.S. The ups and downs of gas-solid flow - a review. In: International Fluidization Conference. Proc. Henniker, N.H., 1980. p.25-68.
34. LI YOUCHOU & KWAIK, H. The dynamics of fast fluidization. In: International Engineering Foundation Conference on Fluidization, 3. Proc. New York, 1980. p.537-44.
35. LI YOUCHOU; BINGYU, C.; FENGMING, W. & YONGSHENG, W. Hydrodynamic correlations for fast fluidization. In: KwaiK, H. & KUNII, D. Fluidization, Science and Technology. Hangzhou, China, s.c.p., 1982. p.124-34.
36. MARTIN, H. Chem.-Ing.-Tech., 52:199-209, 1980.
37. MARTIN, H. Chem. Eng. Process., 18:157-223, 1984.
38. MASON, E.A. & SAXENA, S.C. Phys. Fluids, 1:361, 1958. (citado por Reid et alii, 1977).

39. MICKLEY, H.S. & TRILLING, C.A. Ind. Eng. Chem., 41:1135-47, 1949.
40. MINISTÉRIO DA AGRICULTURA. Inspeção e fiscalização da produção e do comércio de fertilizantes, corretivos, inoculantes estimulantes ou biofertilizantes, destinados à agricultura. Brasília, M.A., s.d. 88p.
41. MOROOKA, S.; KAGO, T. & KATO, Y. Flow pattern of solid particles in freeboard of fluidized bed. In: International Conference on Fluidization, 4. Proc. Kashikojima, Japão, 1983. s.n.p.
42. NAKAMURA, K. & CAPES, C.E. Can. J. Chem. Eng., 51:39-46, 1973.
43. NAKAMURA, M.; HANADA, Y.; TOYAMA, S.; FOUA, A.E. & CAPES, C.E. Can. J. Chem. Eng., 63:8-13, 1985.
44. NOWAK, W.; MINEO, H.; MATSUMURA, Y.; YAMAZAKI, R. & YOSHIDA, K. Flow behavior of large particles in a circulating fluidized bed. In: Asian Conference on fluidized bed and three-phase reactors. Proc. Tokyo, 1988. p.160-70.
45. PERRY, R.H. & GREEN, D.W. Chemical Engineers' Handbook. 6ed. Singapore, McGraw-Hill International Edition, 1984.
46. RAJAN, R.R. & WEN, C.Y. A.I.Ch.E.J., 4:642-55, 1980.
47. REH, L. Das Wirbeln von körnigem Gut im schlanken Diffusor als Grenzzustand zwischen Wirbelschicht und pneumatischer Förderung. Karlsruhe, T-H. Karlsruhe, 1961. (Dissertation).
48. REH, L. Chem.-Ing.-Tech., 56:197-202. 1984.
49. REH, L. Chem. Eng. Process., 20:117. 1986.
50. REID, R.C.; PRAUSNITZ, J.M. & SHERWOOD, T.K. The properties of gases and liquids. New York, McGraw-Hill, 1977. 688p.

51. RICHARDSON, J.F. & ZAKI, W.N. Trans. Instn. Chem. Engrs., 32: 35-53, 1954.
52. RHODES, M.J. & GELDART, D. Powder Technol., 53:155-162. 1987.
53. SANTANA, C.P. & OLIVEIRA, D.T. Transferência de calor mistura-parede em leitos fluidizados recirculantes. In: Congresso Latinoamericano de Transferência de Calor e Matéria, 2. Anais... São Paulo, 1986. p.746-57.
54. SATIJA, S.; YOUNG, J.B. & FAN, L.S. Powder Technol., 43:257-71, 1985.
55. SERGHIDES, T.K. Chemical Engineering, 91(5):63-64, Mar, 1984.
56. SOUZA, G.F. Eficiência agronômica de fosfatos naturais e artificiais nas condições edafo-climatológicas da Amazônia. Belém, EMBRAPA/CPATU, 1980. (Pesquisa em Andamento, 3). 3p.
57. SUBBARAO, D. & BASU, P. Int. J. Heat Mass Transfer, 29:487-9, 1986.
58. WASSILJEWA, A. Physik. Z., 5:737, 1904. (citado por Reid et alii, 1977).
59. WEGSTEIN, J.H. Comm. Assoc. Computing Machinery, 1:9, 1958.
60. WEINSTEIN, H. Flow characterization in high velocity fluidized beds. In: Encontro sobre escoamento em meios porosos, 15. Anais... Uberlândia, 1987. p.2-42.
61. WEISS, V. & FETT, F.N. Modeling the decomposition of sodium bicarbonate in a circulating fluidized bed reactor. In: Circulating Fluidized Bed Technology. Proc. Halifax, Canada, 1986. p.167-72.
62. WEN, C.Y. Dilute and dense phase pneumatic transport. In: Hawk, M.C. Bulk Materials Handling. Pittsburg, Univ. of Pittsburg, 1971. (citado por Wen e Chen, 1982).

63. WEN, C.Y. & CHEN, L.H. A.I.Ch.E.J., 28:117-128, 1982.
64. WEN, C.Y. & FAN, L.T. Models for flow systems and chemical reactors. New York, Marcel Dekker, 1975. 570p.
65. WEN, C.Y. & MILLER, F.N. Ind. Eng. Chem., 53:51, 1961.
66. WEN, C.Y. & O'BRIEN, W.S. Pneumatic Conveying and transporting. In: Marchello, J.M. e Gomezplata, A. Gas-solids Handling in the Process Industries. New York, Marcel Dekker, 1976. (citado por Wen e Chen, 1982).
67. WERTHER, J. A.I.Ch.E. Symp. Ser., 141(70):53-62, 1974.
68. WERTHER, J. Hydrodynamics and mass transfer between the bubble and emulsion phases in fluidized beds of sand and cracking catalyst. In: International Conference on Fluidization, 4. Kashikojima, Japão, 1983. s.n.p.
69. WILKE, C.R. J.Chem.Phys., 18:517, 1950 (citado por Reid et alii, 1977).
70. YANG, W.C. Ind. Engn. Chem. Fundam, 12:349-52, 1973.
71. YANG, W.C. A.I.Ch.E. Journal, 21:1013-15, 1975.
72. YANG, W.C. A.I.Ch.E. Journal, 24:548-52, 1978.
73. YANG, W.C. Powder Technol., 35:143-50, 1983.
74. YATES, J.G. Fundamentals of Fluidized Bed Chemical Processing. London, Butterworths, 1983. s.n.p.
75. YERUSHALMI, J. & CANKURT, N.T. Powder Technol., 24:187-205, 1979.
76. YERUSHALMI, J.; CANKURT, N.T.; GELDART, D. & LISS, B. A.I.Ch.E. Symp. Ser., 176(74):1-13, 1978.
77. YERUSHALMI, J.; TURNER, D.H. & SQUIRES, A.M. Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev., 15(1):47-53, 1976.
78. YOUSFI, Y. & GAU, G. Chem. Eng. Sci., 29:1939. 1974.