

UNIVERSIDAD AUTÓNOMA METROPOLITANA

UNIDAD IZTAPALAPA

DIVISION CBI



AGLOMERACIÓN DE SÓLIDOS FINOS FLUIDIZADOS

**TESIS PARA OBTENER EL GRADO
DE DOCTOR EN CIENCIAS EN INGENIERIA QUÍMICA**

Presenta:

Dagoberto Ríos Morales

Asesor de Tesis:

Dr. Mario G. Vizcarra Mendoza

Sinodales:

Dr. Guillermo Osorio Revilla

Dra. Elizabeth Salinas Barrios

Dr. Carlos Martínez Vera

Dr. Richard S. Ruiz Martínez

Resumen

En este proyecto se analiza el efecto de algunos parámetros de operación asociados a un granulador de lecho fluidizado sobre el crecimiento de sólidos orgánicos de tamarindo (aglomerados). Se implementaron dos diseños experimentales en los cuales se eligió como variable de respuesta el diámetro promedio del aglomerado. El primer diseño experimental implementado fue un diseño factorial completamente aleatorio, considerando los parámetros (factores): tiempo de atomización de líquido con tres niveles (20, 40 y 60 minutos); temperatura de alimentación del aire con cuatro niveles (60, 70, 80, y 90°C) y recirculación con dos niveles (Con recirculación de sólidos (CR) y Sin recirculación de los sólidos (SR) elutriados respectivamente). Las observaciones obtenidas se analizaron estadísticamente mediante un análisis de varianza (ANOVA) resultando el tiempo de atomización estadísticamente significativo en el crecimiento del aglomerado. A partir de esta etapa, se realizó un método de comparación de medias conocido como (prueba de Tukey) para obtener los niveles de este factor donde se presente un efecto importante en el diámetro promedio del aglomerado obtenido, resultando que a los niveles 20 y 60 minutos se presenta la mayor variabilidad en el diámetro promedio del aglomerado. Se realizó una revisión bibliográfica de los procesos de aglomeración en lechos fluidizados con el objetivo de averiguar los niveles en los que se variaba la temperatura del aire dentro de la cámara de fluidización en estos procesos, encontrándose entre 40 y 60°C. Considerando los nuevos niveles para los factores tiempo de atomización, temperatura manteniendo los niveles para la recirculación, se implementó un diseño experimental factorial 2^3 . Se aplicó un ANOVA a este diseño experimental, determinando la significancia de los parámetros tiempo de atomización, temperatura e interacción entre la temperatura y recirculación.

Finalmente, se empleó una ecuación de balance de población discretizada (EBPD) para entender cuantitativamente el efecto de los parámetros de operación en los procesos de nucleación, crecimiento y agregación envueltos en la aglomeración de las partículas orgánicas estudiadas. Por consiguiente, el empleo de un BP en la descripción de un granulador de lecho fluidizado ha tenido como objeto entender y determinar el efecto de los distintos parámetros asociados al sistema sobre los procesos de aglomeración (Tan et al., 2005), relacionando la magnitud de las constantes cinéticas correspondientes con las observaciones utilizadas para su determinación (Kumar et al., 1997; Tan et al., 2005; Soos et al., 2006; Poon et al., 2008; Tourbin et al., 2008; Hulbert and Katz, 1964).

El análisis del valor de las constantes cinéticas concuerdan con el análisis de varianza, mostrando que variaciones en la temperatura y la operación del sistema CR y SR de elutriados no provocan un efecto apreciable en los procesos de aglomeración. Aunado al hecho que para todos los casos estudiados, el proceso de crecimiento fue despreciable con respecto a los de nucleación y aglomeración. Así, el tiempo de atomización es el parámetro del proceso que influye en mayor grado en el aglomerado de las partículas: a tiempos de atomización cortos, el proceso de nucleación es dominante; mientras que a tiempos de atomización largos lo es la agregación. Se obtuvieron imágenes fotográficas por microscopia electrónica de barrido (SEM) de los aglomerados las cuales muestran evidencia que el aglomerado está formado por la cohesión de partículas indicando que el crecimiento del aglomerado es por agregación y presentan una geometría cercanamente esférica.

Indudablemente, uno de los grandes retos de esta tecnología y que justifica con mucho los estudios de investigación realizados al respecto, es el garantizar que los sólidos aglomerados cumplan con las especificaciones que se requieren, en cuanto a forma, peso, resistencia al cizallamiento, mojabilidad, etc.

Índice general

Resumen	I
Índice general	III
Índice de figuras	VIII
Índice de tablas	XI
Nomenclatura	XIII
Capítulo 1. Introducción	
1.1. Aglomeración	1
1.1.1. Procesos de aglomeración	2
1.2. Fundamentos de aglomeración en lechos fluidizados	7
1.2.1. Fluidización	7
1.2.1.1. Velocidad mínima de fluidización	7
1.2.1.2. Velocidad terminal de partícula	8
1.2.2. Sistema de atomización	9
1.2.2.1. Atomizaciónr	10
1.2.3. Transferencia de calor y masa en un lecho fluidizado (Evaporación)	11
1.2.4. Velocidad terminal de una gota de líquido	11
1.2.4.1. Conservación de forma de las gotas	12
1.2.5. Granulador de lecho fluidizado	13
1.2.5.1. Opciones de procesamiento	15
1.2.6. Mezclado	17
1.2.7. Proceso de aglomeración	18
1.2.7.1. Humedecimiento y nucleación	18
1.2.7.2. Termodinámica de nucleación	19
1.2.7.3. Cinética de formación del núcleo	24
1.2.7.4. Dispersión del agente aglomerante	24

1.2.7.5. Comportamiento de crecimiento del gránulo	26
1.2.7.6. Cizallamiento y Rompimiento	27
1.2.8. Arrastre de sólidos en lechos fluidizados	29
1.3. Balances de población	30
1.3.1. Definición y caracterización de una dispersión	30
1.3.2. Balances de población	30
1.3.2.1. Balance de población unidimensional para lechos fluidizados por lote	33
1.3.3. Kernel de coalescencia	38
1.3.3.1. Modelo del kernel de coalescencia	40
1.3.3.2. Kernel basado en la teoría de flujo granular	40
1.3.4. Forma discretizada de la ecuación de balance de población	42
Capítulo 2. Antecedentes, estado del arte y objetivos	
2.1. Antecedentes	45
2.2. Estado del arte	48
2.3. Objetivos	57
2.3.1. Objetivo general	57
2.3.2. Objetivos particulares	57
Capítulo 3. Metodología experimental	
3.1. Materiales	58
3.1.1. Análisis de tamaño de partícula	58
3.1.2. Determinación experimental de la velocidad mínima de fluidización de las partículas de tamarindo	59
3.2. Descripción del equipo experimental	60
3.2.1. Sistema de atomización	61
3.2.2. Boquilla atomizadora de aire	62
3.2.3. Sistema de recirculación	63

3.2.4. Condiciones de operación	64
3.2.5. Equipo auxiliar empleado en el programa experimental	64
3.2.6. Descripción de una corrida experimental típica.	65
3.3. Diseños factoriales	65
3.3.1. Parámetros que influyen en el proceso de aglomeración	65
3.3.2. Niveles de los parámetros del diseño experimental	66
3.3.3. Diseño factorial completamente aleatorio	67
3.3.3.1. Parámetros operacionales de estudio para el diseño factorial completamente aleatorio	68
3.3.3.2. Selección de la variable de respuesta	68
3.3.3.3. Matriz de combinaciones	68
3.3.4. Prueba estadística de Tukey	70
3.3.5. Diseño experimental factorial 2^3	70
3.3.5.1. Parámetros operacionales de estudio para el diseño factorial 2^3	70
3.3.5.2. Selección de la variable de respuesta	71
3.3.5.3. Matriz de combinaciones	71
3.3.5.4. Factores. Constantes	72
3.3.6. Balance de población discretizado	72
3.3.6.1. Expresión cinética discretizada para la agregación	73
3.3.6.2. Expresión cinética discretizada para la nucleación	74
3.3.6.3. Expresión cinética discretizada para el crecimiento	75
Capítulo 4. Resultados	
4.1. Caracterización física e hidrodinámica de los sólidos	77
4.2. Experimentos de aglomeración del diseño experimental completamente Aleatorio (DFCA).	82
4.2.1. Diámetro promedio experimental	82
4.2.1.1. Experimentos del diseño factorial completamente aleatorio, Sin recirculación	84

4. 2.1.2. Experimentos del diseño factorial completamente aleatorio, Con recirculación	85
4.2.1.3. Análisis de varianza del diseño factorial completamente aleatorio	87
4.2.1.4. Prueba de Tukey	88
4.2.2. Caracterización del granulador de lecho fluidizado	88
4.2.2.1. Niveles de temperatura	89
4.3. Experimentos de aglomeración del diseño factorial 2^3	90
4.3.1. Diámetro promedio experimental	90
4.3.1.1. Experimentos del diseño factorial 2^3 , Sin recirculación	92
4.3.1.2. Experimentos del diseño factorial 2^3 , Con recirculación	93
4.3.1.3. Análisis de varianza para el diseño factorial 2^3	94
4.3.1.4. Interacciones	95
4.3.1.5. Modelo de diseño de experimentos	96
4.4. Análisis de las predicciones del balance de población discretizado para los parámetros del diseño experimental completamente aleatorio (DFCA)	97
4.4.1. Dinámicas del proceso de aglomeración del diseño factorial completamente aleatorio (DFCA)	99
4.5. Análisis de las predicciones del balance de población discretizado para el diseño experimental factorial 2^3	100
4.5.1. Dinámicas del proceso de aglomeración del diseño factorial 2^3	102
4.6. Observación de la morfología de los aglomerados por microscopia estereoscópico	106
4.7. Observación de la morfología de los aglomerados por microscopía SEM	109
Capítulo 5. Conclusiones	
Conclusiones	114
Referencias bibliográficas	118
Anexos	
A. Resumen del análisis de varianza del diseño completamente aleatorio y diseño factorial 2^3	125

B. Estimación de parámetros en sistemas no lineales	126
C. Publicaciones	134

Índice de figuras

Figura. 1.1	Enlaces líquidos entre partículas: (a) Pendular; (b) Funicular; (c) Capilar; (d) Gota	2
Figura. 1.2	Estructuras de los productos de partículas	2
Figura. 1.3	Clasificación de los procesos de agrandamiento de tamaño	3
Figura. 1.4	Principio de funcionamiento de un tambor rotatorio	4
Figura. 1.5	Principio de funcionamiento de granuladores húmedos para el procesamiento continuo	4
Figura. 1.6	Principio de operación del equipo de peletización	5
Figura. 1.7	Rango de capacidades de los procesos de aglomeración	6
Figura. 1.8	Influencia de la distribución de tamaño de partícula sobre el tamaño final del aglomerado	7
Figura. 1.9	Tipos de boquillas	9
Figura. 1.10	Transporte de aglomerados en un lecho fluidizado	14
Figura. 1.11	Diagrama de equipo con atomizado superior, atomizado inferior y atomización tangencial con rotor	15
Figura. 1.12	Esquema de los procesos presentes en la aglomeración	18
Figura. 1.13	Dependencia del proceso de nucleación sobre el tamaño relativo entre la gota de líquido y sólido	19
Figura. 1.14	Fuerzas atractivas en un líquido	20
Figura. 1.15	Humedecimiento y ángulo de contacto	21
Figura. 1.16	Interfaces presentes en una gota de líquido en contacto con un sólido	21
Figura. 1.17	Representación del trabajo de adhesión necesario para separar el sólido y la capa superior líquida	22
Figura. 1.18	Representación del trabajo de cohesión necesario para separar entre si moléculas de un mismo líquido	23
Figura. 1.19	Esfuerzos a los que son sometidos los agregados en un granulador de lecho fluidizado.	29

Figura. 1.20	Concepto de nacimiento y muerte por agregación y rompimiento.	32
Figura. 3.1	Diagrama del sistema experimental	61
Figura. 3.2	Diagrama del sistema de atomización	61
Figura. 3.3	Boquilla de atomización interna	62
Figura. 3.4	Sistema de recirculación	63
Figura. 4.1	Clasificación de los sólidos de tamarindo, morfología de los sólidos seleccionados.	79
Figura. 4.2	Determinación experimental del flujo mínimo de fluidización	80
Figura. 4.3	Crecimiento de gota por coalescencia de gotas pequeñas	82
Figura. 4.4	Distribución de sólidos retenidos por intervalos de tamaño, a las diferentes condiciones experimentales para el diseño factorial completamente aleatorio	83
Figura. 4.5	Distribución de sólidos retenidos por intervalos de tamaño, a las diferentes condiciones experimentales para el diseño factorial 2^3	91
Figura. 4.6	Perfiles de interacción entre los factores temperatura y recirculación de sólidos	95
Figura. 4.7	Comparación entre predicciones y observaciones del diseño factorial completamente aleatorio	100
Figura. 4.8	Comparación entre predicciones y observaciones del diseño factorial 2^3	103
Figura. 4.9	Imágenes estereoscópica de los aglomerados obtenidos a los niveles superior e inferior del factor tiempo, con recirculación y sin recirculación de sólidos y nivel inferior de temperatura: (a) sólidos iniciales; (b) 20 min, 40°C, CR; (c) 60 min, 40°C, CR; (d) 20 min, 40°C, SR; (e) 60 min, 40°C, SR.	107
Figura. 4.10	Imágenes estereoscópicas de los aglomerados obtenidos a los niveles superior e inferior del factor tiempo, con recirculación y sin recirculación de sólidos y nivel superior de temperatura: f) sólidos iniciales; g) 20 min, 60°C, CR; h) 60 min, 60°C, CR; i) 20 min, 60°C, SR; j) 60 min, 60°C, SR.	108
Figura. 4.11	Imágenes SEM de los aglomerados a diferentes combinaciones de los factores de estudio: a) sólidos iniciales; b) 20 min, 40°C, CR; c) 60 min, 40°C, CR; d) 20 min, 40°C, SR; e) 60 min, 40°C, SR	110

-
- Figura. 4.12** Imágenes SEM del corte transversal de los aglomerados a diferentes combinaciones de los factores de estudio f) 20 min, 40°C, CR; g) 20 min, 40°C, SR; h) 60 min, 40°C, CR; i) 60 min, 40°C, SR 111
- Figura.4.13** Imágenes SEM de los aglomerados a diferentes combinaciones de los factores de estudio: i) sólidos iniciales; j) 20 min, 60°C, CR; k) 60 min, 60°C, CR; l) 20 min, 60°C, SR; m) 60 min, 60°C, SR 112
- Figura. 4.14** Imágenes SEM del corte transversal de los aglomerados a diferentes combinaciones de los factores de estudio n) 20 min, 60°C, CR; ñ) 60 min, 60°C, CR; o) 20 min, 60°C, SR; p) 60 min, 60°C, SR 113

Índice de tablas

Tabla 1.1	Características de las opciones de atomización en los procesos	16
Tabla 1.2	Tipos de interacción para la agregación	44
Tabla 3.1	Propiedades de los sólidos de tamarindo	58
Tabla 3.2	Tamaños de abertura de las mallas empleadas en el proceso de tamizado	59
Tabla 3.3	Característica de diseño de la boquilla	62
Tabla 3.4	Condiciones de operación	64
Tabla 3.5	Equipo auxiliar empleado	64
Tabla 3.6	Factores operacionales asociados a un granulador de lecho fluidizado	66
Tabla 3.7	Parámetros operacionales y niveles experimentales del DFCA	68
Tabla 3.8	Combinaciones de los niveles de los factores del DFCA	69
Tabla 3.9	Parámetros operacionales y niveles experimentales del diseño factorial 2^3	71
Tabla 3.10	Combinaciones de los niveles de los parámetros operacionales del diseño factorial 2^3	71
Tabla 3.11	Parámetros operacionales constantes	72
Tabla 4.1	Diámetro promedio de los sólidos de trabajo	77
Tabla 4.2	Cálculo para obtener el diámetro promedio de los sólidos de trabajo	78
Tabla 4.3	Caracterización hidrodinámica de sólidos finos	80
Tabla 4.4	Velocidad terminal de la gota de líquido	81

Tabla 4.5	Diámetro promedio de los aglomerados del DFCA, Sin recirculación	84
Tabla 4.6	Diámetro promedio de los aglomerados del DFCA, Con recirculación	86
Tabla 4.7	Análisis de varianza para el diseño factorial completamente aleatorio	87
Tabla 4.8	Comparación de medias entre tratamientos del DFCA	88
Tabla 4.9	Diámetro promedio de los aglomerados del diseño factorial 2^3 Sin recirculación	92
Tabla 4.10	Diámetro promedio de los aglomerados del diseño factorial 2^3 Con recirculación	93
Tabla 4.11	Análisis de varianza para el diseño factorial 2^3	94
Tabla 4.12	Diámetros predichos por el modelo de experimentos	97
Tabla 4.13	Parámetros cinéticos de predicción para el balance de población discretizado del diseño factorial completamente aleatorio	98
Tabla 4.14	Parámetros cinéticos de predicción para el balance de población discretizado del diseño factorial 2^3	101

Nomenclatura

\mathcal{A}	Área interfacial [cm]
\bar{A}	Flux de sólidos a través de la zona de atomización [m^2/s]
a	Niveles del parámetro (prueba de Tukey) [adimensional]
B_i	Término de nacimiento de partículas en el intervalo i [$\#/(\text{m}^3 \text{s})$]
$C_{i,j}$	Constante de colisión [$\text{m}^{5/2} \text{s}^{-1}$]
CR	Con recirculación de sólidos [adimensional]
D_i	Término de muerte de partículas en el intervalo i [$\#/(\text{m}^3 \text{s})$]
d	Diámetro del gránulo promedio [mm]
\bar{d}_b	Diámetro promedio de la burbuja de gas [mm]
\bar{d}_p	Diámetro Promedio experimental [mm]
d_g	Diámetro de gota del líquido aglomerante [mm]
d_n	Diámetro del núcleo [mm]
d_{p0}	Diámetro promedio inicial [mm]
d_{pi}	Diámetro promedio de apertura [mm]
$d_{i,j}$	Distancia interpartícula [m]
$F_{\text{teoretica}}$	Estadístico de prueba (Tablas)
F_o	Estadístico de prueba (calculada)
f	Grados de libertad del error
$G(x,t)$	Tasa de crecimiento debido a recubrimiento [m/s]
g	Aceleración de la gravedad [m/s^2]
$g_{i,j}$	Función de distribución radial para la mezcla [-]
$h(x,r)$	Tasa neta de generación debido a la aglomeración con tamaño x

$h_a^{(+)}(x,t)$	Término de nacimiento por aglomeración [$\#/(m^3 s)$]
$h_a^{(-)}(x,t)$	Término de muerte por aglomeración [$\#/(m^3 s)$]
l	Longitud de tamaño de partícula (Diámetro) [m]
l_i	Longitud Tamaño de partícula i [m]
l_j	Longitud Tamaño de partícula j [m]
$N_{nacimiento}$	Tasa de nacimiento de partículas [$\#/(m^3 s)$]
N_{muerte}	Tasa de muerte de partículas [$\#/(m^3 s)$]
n	Número de réplicas [#]
$n(r,t)$	Función densidad numérica, [$kg^{-1} m^{-3}$]
$n(t, v-u)$	Número promedio de partículas con tamaño entre v y $v+dv$
$n(t,u)$	Número promedio de partículas con tamaño entre u y $u+du$
n_i	Fracción masa de agregados en el intervalo ith [-]
n_j	Fracción masa de agregados en el intervalo jth [-]
n_{i+1}	Fracción masa de agregados en el intervalo i-1th [-]
n_{i-1}	Fracción masa de agregados en el intervalo i-1th [-]
n_0	Número de partículas por unidad de tiempo [$\#/s$]
m_i	Masa partícula i [g]
m_j	Masa partícula j [g]
P	Nivel de significación menor que lleva a rechazar la hipótesis nula
Q_{mf}	Flujo mínimo de fluidización [cm^3/min]
q_α	Estadístico del rango estudentizado
R	Recirculación
\bar{R}	Vector velocidad de flujo de las partículas [$\#/s$]

r	Tamaño de partícula [mm]
r_g	Radio equivalente de la gota del líquido [mm]
r_i	Radio de partícula en el intervalo (i) [mm]
r_{i+1}	Radio de partícula en el intervalo subsecuente (i+1) [mm]
r_{i-1}	Radio de partícula en el intervalo previo (i-1) [mm]
r_j	Radio de partícula en el intervalo j [mm]
SR	Sin recirculación de sólidos [-]
S_w	Humedad de saturación [%]
T_α	Prueba Estadística de Tukey
t	Tiempo de operación [min]
T_s	Temperatura del sólido [°C]
T_0	Temperatura del lecho [°C]
t_a	Tiempo de atomización del agente aglomerante [min]
u	Tamaño de gránulo [m]
U_{gs}	Velocidad del gas fluidizante [cm/s]
U_b	Velocidad de ascensión de la burbuja [cm/s]
U_c	Velocidad de colisión, [m/s]
U_g	Velocidad del gas fluidizante [cm/s]
U_0	Velocidad superficial [cm/s]
U_{mf}	Velocidad mínima de fluidización [cm/s]
U_t	Velocidad terminal [cm/s]
\bar{U}	Velocidad promedio de partícula [cm/s]
V_s	Velocidad de la gota de líquido [cm/s]

\bar{V}	Velocidad volumétrica de atomización producida por la boquilla [cm^3/s]
v	Tamaño de gránulo [mm]
v	Volumen de partícula [mm^3]
$V(t)$	Velocidad del gránulo [cm/s]
$V'(t)$	Velocidad aleatoria [cm/s]
W_A	Trabajo de adhesión [J]
W_c	Trabajo de cohesión [J]
W_{CS}	Trabajo de cohesión del sólido [J]
W_{CL}	Trabajo de cohesión líquido [J]
\bar{X}	Velocidad de crecimiento de las partículas [# / s]
x_i	Fracción masa de agregado en intervalo i [-]

Letras griegas

α	Nivel de significancia [%]
ρ	Densidad del gránulo [g/cm^3]
$\rho_{\bar{a}}$	Densidad del gas o vapor [g/cm^3]
$\hat{\rho}_g$	Densidad del gas [g/cm^3]
ρ_p	Densidad de la particular [g/cm^3]
ρ_s	Densidad del sólido [g/cm^3]
ρ_a	Densidad aparente, [g/cm^3]
ρ_f	Densidad del fluido [g/cm^3]
$\beta(v, u)$	Kérel de coalescencia mostrando la dependencia de los tamaños de los gránulos v, u respectivamente [s^{-1}]
$\beta_{0(t)}$	Término de tasa de agregación constante [$\text{kg m}^{-0.5} \text{s}^{-1}$]
$\beta(t, v-u, u)$	Kérel de agregación mostrando la dependencia de los tamaños de los gránulos $v-u, u$ respectivamente [s^{-1}]
$\beta^*(r_1, r_2)$	Kérel de coalescencia dependiente de los tamaños del gránulo [s^{-1}]
β_{agreg}	Constante cinética de agregación [$\text{m}^{-1/2} \text{s}^{-1}$]
β_{crec}	Constante cinética de crecimiento [$\text{m}^{-1} \text{s}^{-1}$]
β_{nuc}	Constante cinética de nucleación [$\text{m}^{-5/3} \text{s}^{-1}$]
$\beta_{i,j}$	Kérel de coalescencia en forma discretizada [s^{-1}]
$\delta(r_i)$	Función Delta de Dirac [-]
θ	Ángulo de contacto [$^\circ$]
Ψ_a	Flux de atomización [adimensional]
τ_g	Tiempo de penetración de la gota [s]

λ	Coeficiente de extensión o esparcimiento [N/m]
λ_{ls}	Coeficiente de extensión líquido-sólido [N/m]
λ_{sl}	Coeficiente de extensión sólido-líquido [N/m]
γ_{lv}	Tensión superficial líquido-vapor [N/m]
γ	Tensión superficial [N/m]
τ_s	Tiempo de esparcimiento [s]
σ	Tensión superficial [N/m]
γ_{sl}	Tensión superficial sólido-líquido [N/m]
γ_l	Tensión superficial del líquido [N/m]
γ_{sv}	Tensión superficial sólido-vapor [N/m]
ϕ_s	Esfericidad [-]
μ	Viscosidad del aire [g/cm ³ min]
ε	Fracción vacía [-]
ε_{mf}	Fracción vacía a la condición mínima de fluidización [-]

Abreviaciones

ANOVA	Análisis de varianza
BP	Balance de población
bs	base seca
CE	Correlación estadística
CE	Correlación estadística
CR	Con recirculación de finos elutriados
DFCA	Diseño factorial completamente aleatorio

DF2 ³	Diseño factorial 2 ³
DTP	Distribución de tamaño de partícula
EBPD	Balance de población discretizado
EBP	Ecuación de balance de población
SR	Sin recirculación de finos elutriados
MSE	Cuadrado medio del error
VC	Volumen de control

Subíndices

i Intervalo ith

j Intervalo jth

Números adimensionalesRe_p Número de Reynolds de partícula

We Número de Weber

St Número de Stokes

Pr Número de Prandtl

Sc Número de Schmidt

Sh Número de Sherwood

Nu Número de Nusselt

St_v Número de Stokes viscoso**Símbolos griegos** $\nabla_r \equiv \frac{\partial}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial z}$ Operador diferencial para la coordenada externa de posición $\nabla_x \equiv \sum_{j=1}^m \frac{\partial}{\partial x_j}$ Operador diferencial para la coordenada interna (cantidad física)

Capítulo 1

Introducción

1.1. AGLOMERACIÓN

La aglomeración (también llamada aglomeración) es un proceso que promueve el incremento de tamaño del sólido (gránulo) mediante la adhesión de partículas pequeñas (sólidos finos) sobre otra partícula de mayor tamaño en la cual aún las partículas originales pueden ser identificadas. Las fuerzas físicas responsables de la formación de los aglomerados pueden deberse a diferentes causas entre las que destacan las siguientes (Sastry and Fuerstenau; 1973; Rhodes, 2008; Barbosa and López, 2005):

- Atracción entre partículas sólidas debida a las fuerzas de Van der Waals; son significativas para partículas de menos de 0.05 micras.
- Fuerzas magnéticas o cargas electrostáticas.
- Fuerzas de adhesión y cohesión entre los enlaces.
- Fuerzas interfaciales y capilares debidas a la presencia de una fase líquida.

Las fuerzas intermoleculares y electrostáticas unen partículas muy finas sin la presencia de puentes materiales. Este tipo de formación de enlaces es al que se debe la tendencia de las partículas menores de una micra de diámetro, a formar espontáneamente aglomerados durante un proceso de agitación. No obstante cuando se trata de partículas de mayor tamaño, estas fuerzas de corto alcance son insuficientes para contrarrestar su peso y no produce la adhesión. En numerosos estudios (Sastry and Fuerstenau, 1973) se ha demostrado que la mayor contribución de las fuerzas físicas en presencia de un líquido que humedece completamente la superficie de las partículas sólidas, es la atracción capilar entre las partículas debida a la tensión interfacial aire-líquido. Estas fuerzas de capilaridad dependen de la distribución relativa de las fases líquida y aire en el aglomerado poroso (Rumpf, 1962). Los procesos de formación del enlace de los aglomerados se dividen en dos grupos principales: los puentes sólidos, y los enlaces de líquidos móviles. Los puentes sólidos se forman entre partículas por medio de la sinterización de minerales, la cristalización de sustancias disueltas durante el secado, como sucede en la aglomeración de los fertilizantes. El enlace de líquidos móviles genera la cohesión por medio de fuerzas interfaciales y la succión capilar. En un conjunto de partículas que se mantienen juntas por medio de un líquido móvil, se distinguen tres estados que a continuación se discuten (Sastry and Fuerstenau, 1973): el estado *pendular* se encuentran presentes pequeñas cantidades de líquido que se mantienen unidas como anillos discretos en forma de lentes en los puntos de contacto de las partículas, el espacio intersticial entre las partículas es la porosidad o espacio vacío (figura 1.1a). Conforme el

contenido de líquido aumenta, la coalescencia de los anillos también aumenta formándose una red continua de líquido entremezclado con aire, las fuerzas atractivas entre las partículas decrecen, teniéndose lo que se denomina estado *funicular* (figura 1.1b). Cuando todos los espacios de poro del aglomerado están totalmente llenos de líquido, se ha alcanzado el estado *capilar*, (figura 1.1c), cuando las partículas están totalmente dispersadas en el líquido (*gota*) la resistencia de la estructura es muy baja (figura 1.1d) (Sastry and Fuerstenau, 1973; Rhodes, 2008).

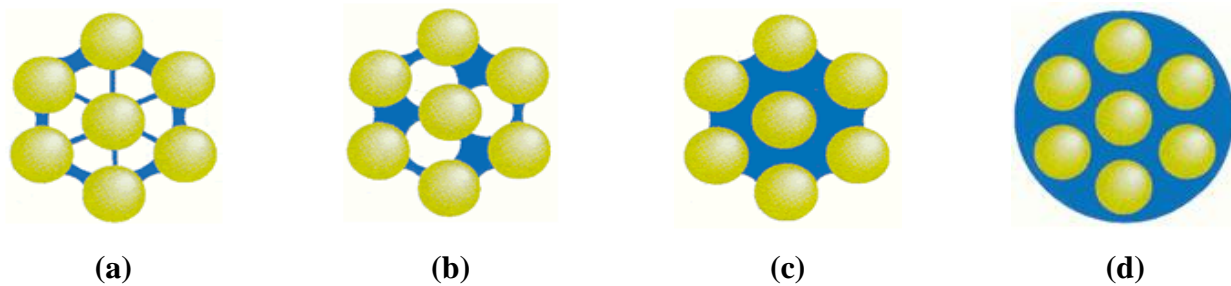


Figura 1.1. Enlaces líquidos entre partículas: (a) Pendular; (b) Funicular; (c) Capilar; (d) Gota

Las fuerzas aplicadas o mecánicas son aquellas requeridas para unir partículas húmedas y lograr que las fuerzas naturales actúen. Estas fuerzas, se traducen en movimiento de las partículas que los equipos inducen a éstas.

1.1.1. Procesos de aglomeración

Existe una relación entre la forma de la estructura interna de los productos de partículas como por ejemplo: granos, aglomerados, capsulas y tabletas (Figura 1.2) y de la tecnología empleada para obtenerlos. Por consiguiente, la selección del equipo y tecnologías es imperante para obtener productos con ciertas propiedades deseables.

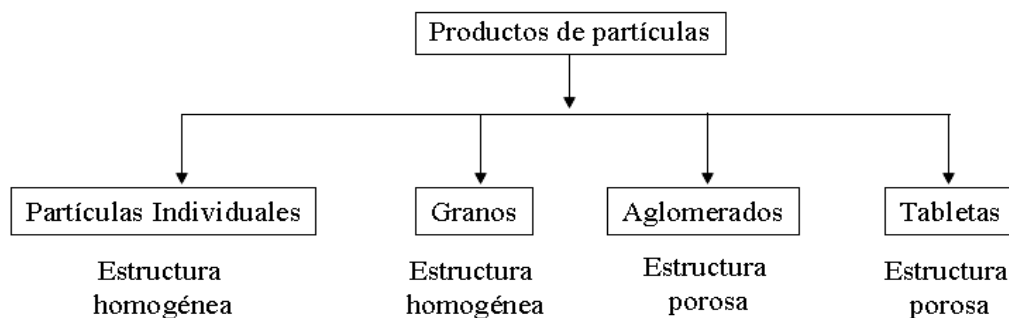


Figura 1.2. Estructuras de los productos de partículas.

Existen diversos equipos en los cuales se puede llevar a cabo la aglomeración, entre éstos tenemos: granuladores de tambor, granuladores de disco, mezcladores, extrusores, granuladores de lecho fluidizado, prensa tableteadora etc. La diversa existencia de equipos resalta el hecho de que el crecimiento del aglomerado debe estar influenciado por los parámetros operacionales asociados a cada equipo, así como de la naturaleza física del sistema partícula sólida-líquido aglomerante. Para conseguir estructuras internas deseables, las partículas individuales deben someterse a procesos individuales como: aglomeración, granulación húmeda, peletización, aglomeración por atomización, revestimiento por atomización y estratificación por capas (Glatt, 2005). La principal diferencia se encuentra en los principales procesos de crecimiento de partícula, intensidad de la agitación, el uso de las fuerzas de compactación y el tiempo de procesamiento (Figura 1.3).

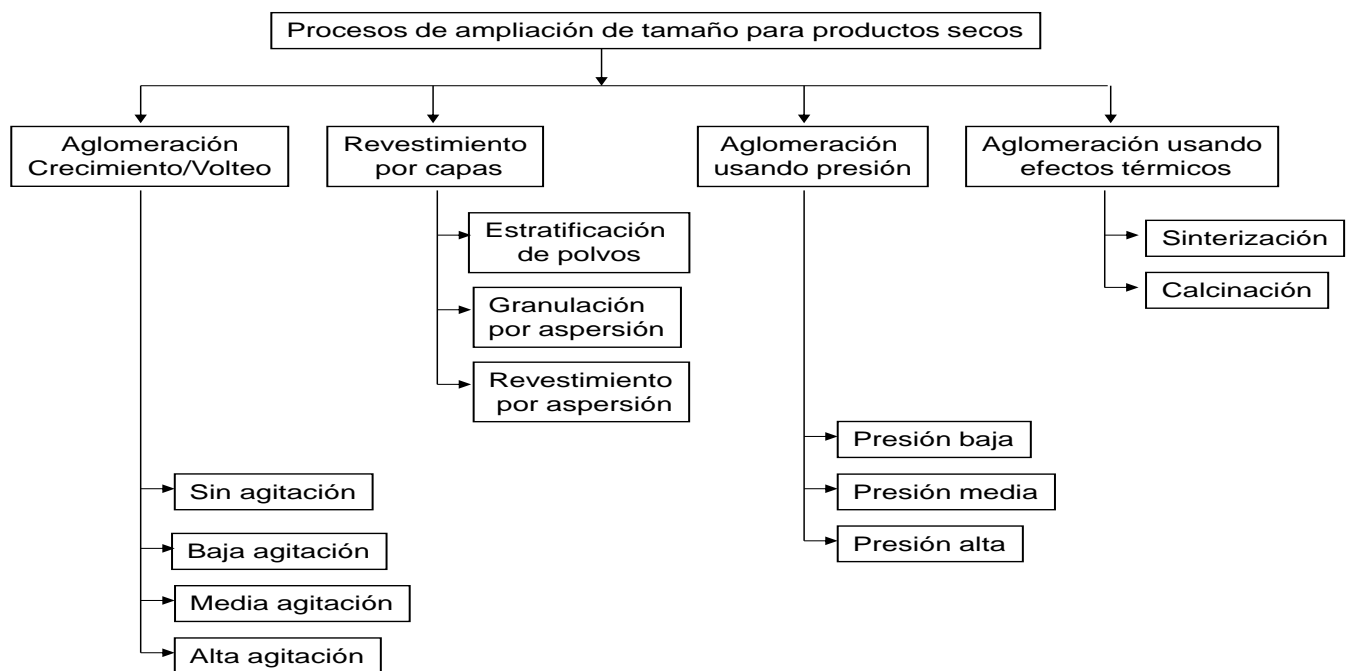


Figura 1.3. Clasificación de los procesos de agrandamiento de tamaño

Para producir aglomerados densos se emplean los *mezcladores* así como los *granuladores húmedos*. En la industria de los fertilizantes, los tambores rotatorios son frecuentemente usados para la aglomeración por atomización y procesos de recubrimiento. Dependiendo de la aplicación, los líquidos son atomizados sobre la fase sólida o la alimentación de sólidos son pre-mezclados con la fase líquida, donde los pre-aglomerados formados son alimentados al tambor donde la solidificación y secado toman lugar. Para aplicaciones de revestimiento principalmente en la industria farmacéutica y alimenticia los tambores de revestimiento son empleados frecuentemente. El principio de operación de un cubridor de

tambor discontinuo se explica a continuación (Figura 1.4). Un tambor perforado se encuentra en rotación y esta rotación da lugar al mezclado del material. Un flujo de gas (típicamente gas caliente) entra en el tambor y fluye a través del lecho de partículas. El líquido de revestimiento puede ser rociado sobre las partículas empleando un arreglo de boquillas. Posteriormente, la película de recubrimiento se seca por el gas de procesamiento el cual arrastra la humedad y sale del tambor a través de la cama y el tambor perforado.

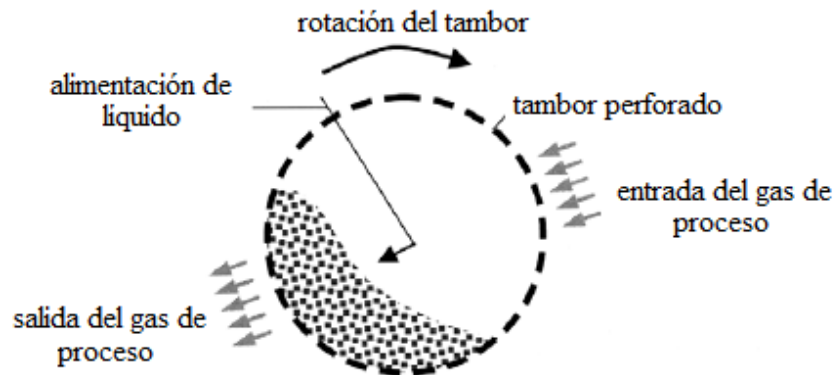


Figura 1.4. Principio de funcionamiento de un tambor rotatorio (Jacob, 2005)

Otro de los equipos frecuentemente usado es el *mezclador*. Cuando son necesarias altas capacidades y a bajo costo de producción, los mezcladores continuos son una buena opción. El principal campo de aplicación se encuentra en la industria de alimentos (productos instantáneos, salsas, sopas, té) y la industria de detergentes (Figura 1.5).

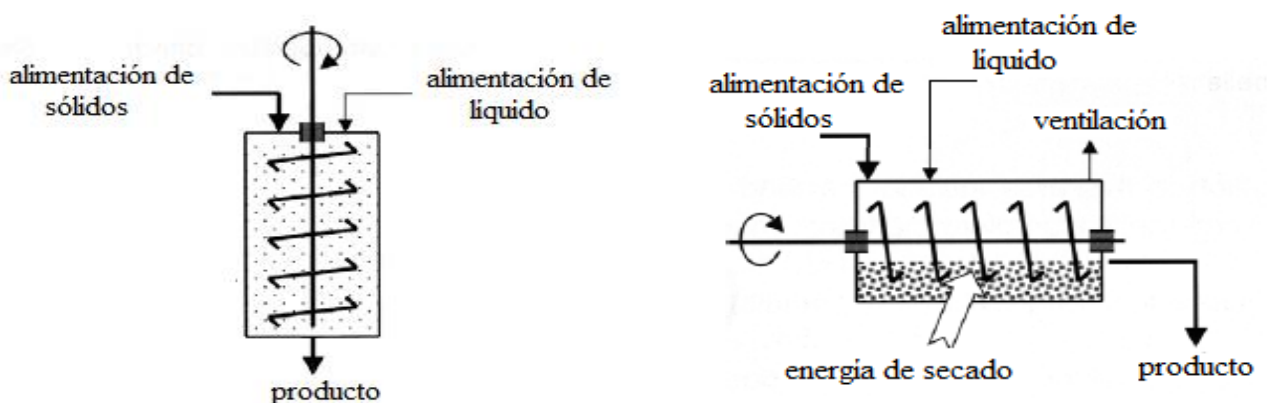


Figura 1.5. Principio de funcionamiento de granuladores húmedos para el procesamiento continuo (Jacob, 2005)

Especialmente en la industria farmacéutica, si pequeñas o medianas cantidades de productos deben ser producidas, el procesamiento por lotes es el adecuado. Los granuladores por humedad producen

típicamente partículas no muy esféricas. Por esta razón, los productos granulados húmedos son *peletizados* cuando se requiere de una estructura suave y un mejoramiento en la densidad. Los productos peletizados poseen una distribución de tamaños más estrecha y un bajo contenido de polvo. El principio de funcionamiento de la peletización se presenta en la Figura 1.6. Tal equipo es empleado para manipular sólidos pre-formados obtenidos de equipos de aglomeración húmeda y extrusión. Los sólidos se distribuyen en un flujo helicoidal rotatorio, establecido por la superposición de flujo de gas a través del hueco del anillo, de la fuerza centrífuga y gravitacional. Debido al cizallamiento entre el producto, refugio y el disco giratorio las formas de las partículas cambian. La peletización se lleva a cabo tanto en equipos por lotes así como continuos. En el procesamiento por lotes (Figura 1.6a), el peletizador es cargado con una cierta cantidad de materia prima preformada. Después de un cierto tiempo de procesamiento el equipo para y el producto es retirado. La peletización continua (Figura 1.6b) puede establecer usando una cascada de peletizadores individuales. Estos, están dispuestos en línea y un flujo continuo sólido va desde una a la otra. El tiempo de residencia por unidad puede ser definida por parámetros de proceso, tamaño y posición de orificio de descarga, que se utiliza como un rebosadero.

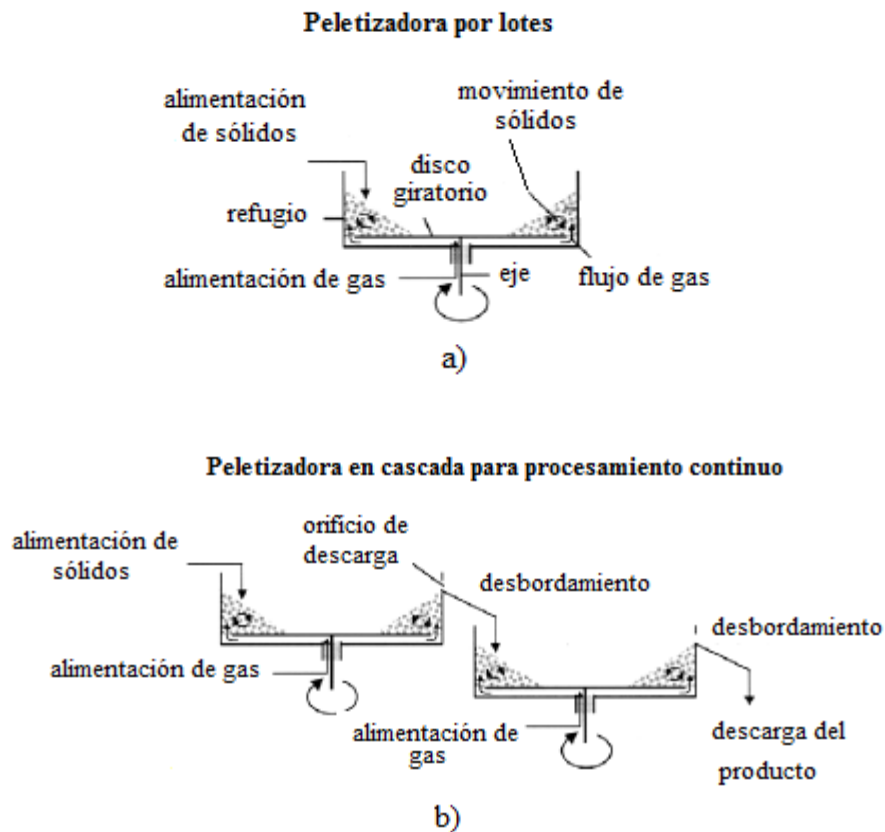


Figura 1.6. Principio de operación del equipo de peletización, a) por lotes; b) continuo

La amplia variedad de equipos resulta de los diferentes requerimientos para los diversos productos. Los procesos de producción de diferentes productos varían grandemente en capacidad y pueden ser operados en forma continua y por lotes. En la figura 1.7 se muestra el intervalo de capacidades de los diferentes procesos de aglomeración.

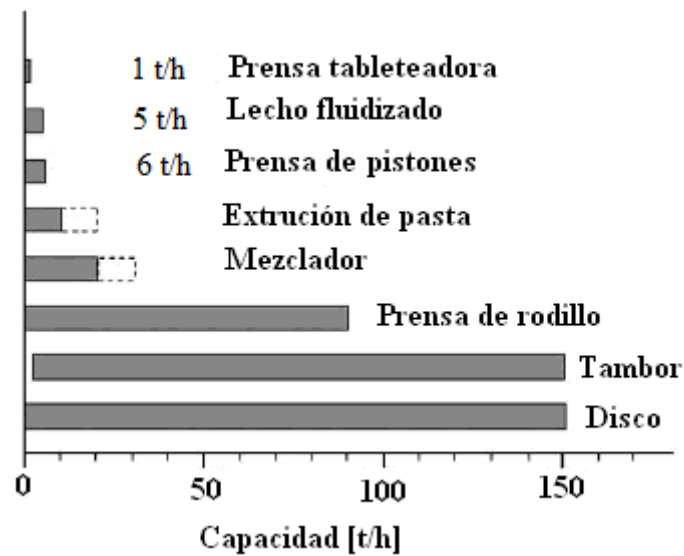


Figura 1.7. Rango de capacidades de los procesos de aglomeración (Floren et al., 2008)

Los procesos considerados en los diferentes tipos de aglomeración son similares sin embargo, las variables del proceso y el efecto de éstas sobre el proceso de aglomeración son diferentes (Cryes, 1999). El proceso de aglomeración se ve influenciado por las propiedades de la partícula, por ejemplo, polvos con una amplia distribución de tamaño de partícula contienen tanto partículas muy pequeñas como partículas grandes que favorecen la coalescencia entre ellas por el proceso de recubrimiento o adhesión de las partículas finas sobre las de mayor tamaño (Lister and Waters, 1988, 1990; Parveen et al., 2012). Por el contrario, se ha reportado que los sólidos con una distribución de tamaños de partículas estrecha teniendo tamaños similares no favorecen la coalescencia entre las partículas. Una amplia distribución de tamaños de partículas resulta en un aglomerado más grande dado que las partículas pequeñas se deslizan dentro de las separaciones formadas entre las partículas de mayor tamaño actuando estos como un puente para la fase húmeda (Figura 1.8) de tal forma que la distribución de tamaños de partículas y porosidad juegan un papel importante en el tamaño final del aglomerado (Schaafsma, et al., 1998).

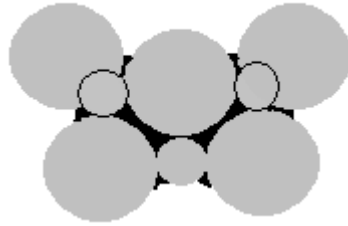


Figura 1.8. Influencia de las distribución de tamaño de partícula sobre el tamaño final del aglomerado

1.2. Fundamentos de aglomeración en lechos fluidizados

1.2.1. Fluidización

La fluidización es una operación unitaria muy empleada en el campo de la ingeniería química. El principio de un lecho fluidizado es mantener en suspensión una carga de sólidos confinada en un recipiente normalmente de sección transversal circular, por medio de una corriente de fluido, ya sea líquido o gaseoso. Así, este estado fluidizado de los sólidos, representa una zona intermedia entre los sólidos sin movimiento (lecho fijo) y los que son arrastrados fuera del recipiente (transporte neumático). Evidentemente estos tres estados dinámicos de los sólidos dependen de la velocidad superficial del fluido. Los parámetros más importantes con respecto a la velocidad del aire en un lecho fluidizado son la velocidad mínima de fluidización (U_{mf}) y la velocidad terminal U_t . La U_{mf} es la velocidad en la cual la fluidización es incipiente y este es uno de los parámetros de diseño más importantes que es empleada en los procesos de secado, recubrimiento y aglomeración. Normalmente los granuladores de lecho fluidizado son operados a velocidades mayores de U_{mf} y bajo estas circunstancias es común que se presente el transporte neumático de las partículas de menor tamaño que componen el lecho (Schaafsma et al., 2006). Aun cuando lo más recomendable es determinar experimentalmente la velocidad mínima de fluidización, existen correlaciones empíricas que permiten su cálculo, así como también en el caso de la velocidad terminal, las cuales se describen a continuación (Kunii and Levespiel, 1990).

1.2.1.1. Velocidad mínima de fluidización

En el caso de partículas finas, se puede aplicar la siguiente correlación:

$$u_{mf} = \frac{(\varphi_s d_{p_o})^2}{150} \cdot \frac{\rho_s - \hat{\rho}_g}{\mu} g \left[\frac{\varepsilon_{mf}^3}{1 - \varepsilon_{mf}} \right] \quad \text{Re}_p < 20 \quad (1)$$

1.2.1.2. Velocidad terminal de partícula

La velocidad terminal de partícula se calcula a partir de las siguientes correlaciones (Kunii and Levespield, 1990):

$$u_t = u^* \left[\frac{\mu(\rho_s - \hat{\rho}_g)g}{\hat{\rho}_g^2} \right]^{\frac{1}{3}} \quad (2)$$

donde u^* se determina mediante la ecuación 1.13 y se considera que las partículas son esféricas y por lo tanto la esfericidad se toma como la unidad ($\phi = 1$)

$$u^* = \left[\frac{18}{(d_{p_o}^*)^2} + \frac{0.591}{(d_{p_o}^*)^{0.5}} \right]^{-1} \quad (3)$$

donde dp^* se calcula con la siguiente expresión.

$$d_p^* = d_p \left[\frac{\hat{\rho}_g (\rho_s - \hat{\rho}_g) g}{\mu^2} \right]^{\frac{1}{3}} \quad (4)$$

Además de los lecho fluidizados con sección transversal circular, existen lechos fluidizados con sección cónica que son empleados en diversas industrias por poseer ventajas con respecto a éstos. Se presenta un gradiente de velocidad del fluido decreciente en la dirección del flujo lo cual tiene las siguientes ventajas (Kwauk, 1992):

- Para una distribución de tamaños de partículas polidispersa, la alta velocidad en la sección más baja del cono garantiza una adecuada fluidización de las partículas de mayor tamaño, mientras que la baja velocidad en la sección superior previene un excesivo transporte de finos.
- La alta agitación de las partículas más grandes sirve para dispersar el medio fluidizante, de esta forma realiza la función de un distribuidor de gas.

Así mismo, un eficiente contacto gas-sólido y una excelente homogeneidad de la temperatura son características bien conocidas de un lecho fluidizado (Rhodes, 2008).

1.2.2. Sistema de atomización

En la mayoría de los procesos de aglomeración en lechos fluidizados uno o más líquidos tienen que ser añadidos dependiendo del proceso. Para tener buenas condiciones de crecimiento de las partículas por coalescencia, es necesaria la presencia de un líquido atomizado. Diferentes tipos y tamaños de boquillas de atomización son empleadas para transformar una corriente continua de líquido en una dispersión (atomización) de gotas. Para la atomización de líquidos, dos tipos básicos de boquillas son empleadas: boquilla neumática binaria y boquilla hidráulica (Figura 1.9).

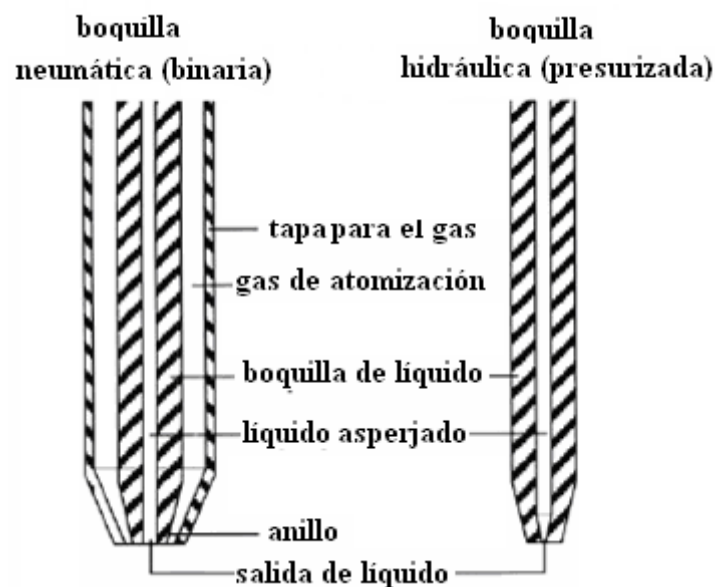


Figura 1.9. Tipos de boquillas

Las boquillas de atomización tienen que ser seleccionadas o diseñadas de acuerdo a su aplicación en lechos fluidizados, donde algunos parámetros deben de considerarse para su selección. Estos factores incluyen:

- Distribución de tamaños de gota o tamaños de gota promedio (Diámetro-Sauter, diámetro Volumen Medio).
- Patrón de atomización (cono completo, cono hueco, chorro plano)
- Ángulo de atomización
- Velocidad de alimentación del líquido (mínimo, operación y máximo)
- Velocidad de distribución de gota o velocidad promedio de gota
- Presión de alimentación del líquido
- Presión de alimentación del gas y velocidad de flujo en caso de boquilla neumática (binaria).

Los patrones de atomización tienen una influencia en la humectación de las partículas y sobre la distribución local del líquido en un lecho fluidizado. Debido a este patrón de atomización y todos los parámetros relacionados con la boquilla, la cinética de crecimiento de las partículas, el tipo de engrandecimiento de la partícula (coalescencia o capas) y propiedades del producto (porosidad, rugosidad superficial, densidad de partícula) son influenciadas.

1.2.2.1. Atomización

El proceso de generación de gotas es llamado atomización. El proceso de atomización inicia forzando a un líquido a pasar a través de una boquilla. La energía potencial del líquido (medido como presión de líquido para una boquilla hidráulica o presión de líquido y aire para una boquilla de dos fluidos) junto con la geometría de la boquilla causa que el líquido emerja como pequeños ligamentos. Estos ligamentos se desintegran en “piezas” muy pequeñas, que usualmente son llamadas gotas o partículas de líquido. Cada atomización proporciona una gama de tamaños de gota; este intervalo se refiere a una distribución de tamaños de gota. Todo el proceso está influenciado por las propiedades del líquido: tensión superficial, densidad y viscosidad, así como las del gas: velocidad y densidad. Las gotas de líquido son una parte muy importante en el granulador, debido a que están estrechamente ligadas al proceso de nucleación.

1.2.3. Transferencia de calor y masa en un lecho fluidizado (Evaporación)

En un lecho fluidizado, una gran área de superficie sólida por unidad de masa de partículas se expone al gas. Entre más pequeño sea el tamaño de las partículas, mayor es el área superficial específica de las partículas. Ésta gran área superficial facilita los procesos de transferencia de calor y masa en un sistema sólido-a-gas. [Ranz and Marshall \(1952\)](#) propusieron correlaciones empíricas para la transferencia de calor y masa para el flujo alrededor de una gota de líquido, las cuales están dadas por las ecuaciones (5) y (6) respectivamente:

$$\text{Nu} = 2.0 + 0.60 \text{Re}^{\frac{1}{2}} \text{Pr}^{\frac{1}{3}} \quad (5)$$

$$\text{Sh} = 2.0 + 0.60 \text{Re}^{\frac{1}{2}} \text{Sc}^{\frac{1}{3}} \quad (6)$$

Las ecuaciones anteriores son ejemplo de la analogía entre los procesos de transferencia de calor y masa las cuales son válidas para bajas tasas de transferencia de masa. La analogía existe debido a que la conducción y difusión en un fluido es gobernada por leyes físicas de la misma forma matemática (para una discusión del efecto de la temperatura del lecho sobre la velocidad de secado, ver [Maurstad, 2002](#)).

1.2.4. Velocidad terminal de una gota de líquido

La ley de Stokes se refiere a la fuerza de fricción experimentada por objetos esféricos moviéndose en el seno de un fluido viscoso en un régimen laminar de bajos números de Reynolds. Esta condición, implica un flujo laminar lo cual puede traducirse por una velocidad relativa entre la esfera y el medio inferior a un cierto valor crítico. En estas condiciones la resistencia que ofrece el medio es debida casi exclusivamente a las fuerzas de rozamiento que se oponen al deslizamiento de unas capas de fluido sobre otras a partir de la capa límite adherida al cuerpo.

Si se deja caer verticalmente una gota desde el equilibrio en un fluido viscoso y debido a su propio peso, ésta se acelerará hasta alcanzar una velocidad constante conocida como velocidad terminal la cual está dada por la ecuación (7):

$$V_s = \frac{2}{9} \frac{r^2 g (\rho_p - \rho_f)}{\mu} \quad (7)$$

donde V_s es la de caída de la partícula (velocidad límite); g es la aceleración de la gravedad; ρ_p de la partícula; ρ_f densidad del fluido; μ viscosidad del fluido; r es el radio equivalente de la partícula.

El movimiento de las gotas cayendo libremente a través del aire puede ser dividido en dos tipos dependiendo si la misma es lo suficientemente pequeña o demasiado grande como para comportarse como una esfera. Se ha verificado que las velocidades terminales de gotas de diámetro mayor a 1mm, son menores que la de las esferas rígidas de igual volumen. Este decaimiento se debe principalmente a la deformación que sufre la gota como consecuencia del desbalanceo de presiones entre su parte frontal y trasera, generando un incremento de la sección transversal y así aumentando la resistencia del aire. En el caso de gotas no esféricas, un tamaño característico se define en términos de un diámetro o radio equivalente. Este diámetro se define como el diámetro de gota esférica que tendría el mismo volumen en el sistema experimental de interés (Valencia, 2001).

1.2.4.1. Conservación de forma de las gotas.

Puede considerarse que las gotas líquidas conservan su forma, en particular si son esféricas, lo cual no siempre es cierto a menos que (Valencia, 2001):

- Las colisiones con otra gota o partícula ocurrirán muy rara vez.
- La velocidad relativa del gas es suficientemente baja.

Para gotas líquidas requerimos que la dispersión sea diluida, esto significa que la relación del volumen ocupado por la fase dispersa respecto al volumen ocupado por el gas es pequeña. Por otro lado, el grado de deformación y la amplitud de oscilación de una gota de líquido depende de la relación de la fuerza dinámica respecto a la tensión superficial; relación establecida mediante el número de Weber (el número de Weber, es considerado como un parámetro de suma importancia en la atomización de un líquido ya que este número da la razón que es característica en las fuerzas aerodinámicas que ejercen el gas sobre una película delgada y las fuerzas de tensión que actúan en la superficie del líquido) el cual está dado por la ecuación (8)

$$W_e = \frac{2r\rho_a|v-u|^2}{\tau} \quad (8)$$

donde ρ_a representa la densidad del gas o vapor, v representa la velocidad de la gota, u es la velocidad del gas, τ es la tensión superficial del líquido. Cuando el número de Weber, $We \ll 10$, las gotas son cercanamente esféricas, conforme el We incrementa la gota se deforma y eventualmente se rompe a $We \gg 10$. Para los sistemas que involucran gotas líquidas, la expresión anterior deberá ser aplicada únicamente a dispersiones diluidas con números de We bajos.

1.2.5. Granulador de lecho fluidizado

El proceso de aglomeración en lechos fluidizados es un proceso de aglomeración “húmeda” el cual consiste en un lecho de sólidos que se ponen en contacto con un líquido atomizado. El gas alimentado al sistema provoca la agitación de los sólidos así como también la evaporación del disolvente y calentamiento de los sólidos. El incremento tanto en el tamaño de los sólidos así como en la concentración del líquido, está asociado con cambios en la característica de la fluidización, especialmente en la propiedad del mezclado. Durante el proceso de aglomeración, una serie de procesos de formación de gotas, contacto, coalescencia y evaporación, ocurren casi simultáneamente, por consiguiente, la aglomeración en lechos fluidizados es un proceso complejo pues, además se presentan interacciones entre los diferentes parámetros operacionales del sistema (Cryer and Scherer, 2003). Tal combinación de procesos simultáneos, conlleva a situaciones indeseables durante la operación de éstos, pues si el líquido es suministrado en exceso o es mal distribuido grandes regiones del lecho pueden defluidizar y los sólidos pegarse formando grumos húmedos de gran tamaño (cake). Este fenómeno se conoce como *apagado húmedo*. Por el contrario, si los aglomerados crecen en forma excesiva, entonces la velocidad mínima de fluidización excede la velocidad de operación del lecho ocurriendo también la defluidización, a lo que se le conoce con el nombre de *apagado seco*. Así mismo, se dificulta describir el patrón de gas, causado por el *by-pass* a través de las “*burbujas*”, lo cual representa un ineficiente contacto entre el gas y el sólido en el sistema (etapa 4 figura 1.10). Aún, cuando la formación de “*burbujas*” no es deseable en equipos de contacto (reactores de lecho fluidizado), la formación de éstas en los procesos de aglomeración en lechos fluidizados favorece el fenómeno de crecimiento.

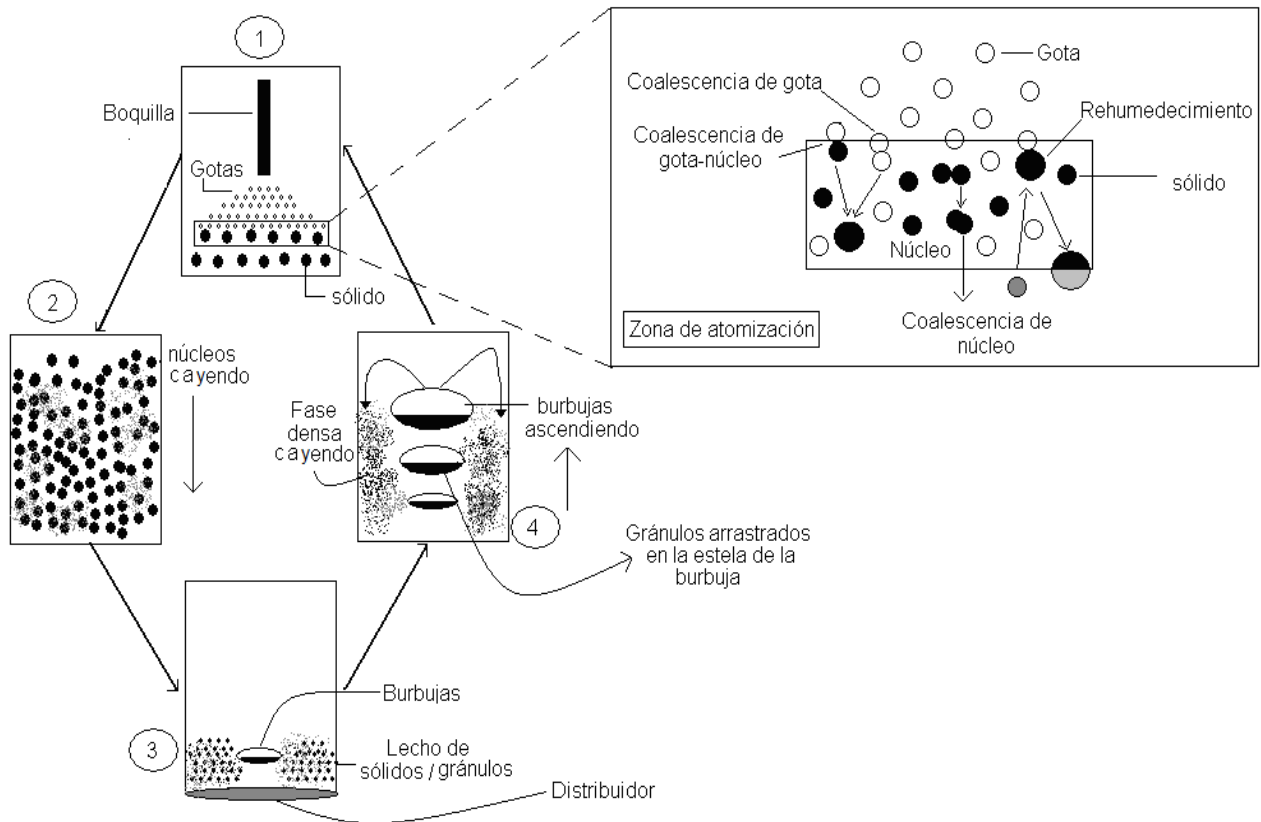


Figura 1.10. Transporte de aglomerados en un lecho fluidizado. (1) formación de granulos en la superficie del lecho; (2) segregación de granulos; (3) formación de burbujas cerca del distribuidor; (4) transporte de burbujas y estela a la superficie del lecho

El granulador de lecho fluidizado puede visualizarse como un sistema compuesto por dos zonas (Schaafsma et al., 1999, 2006): (1) el área del lecho donde el líquido aglomerante y la superficie del lecho se ponen en contacto se conoce como *zona de atomización* (etapa 1 Figura 1.10). Dos procesos son importantes en esta zona. Primeramente, hay una formación de núcleos la cual es función de variables termodinámicas (Iveson et al., 2001; Tardos et al., 1997; Kumar et al., 1997). Si el líquido aglomerante logra o no humedecer la superficie del sólido es determinado por la termodinámica de humectación. Dos aspectos tienen importancia sobre este hecho (Sección 1.2.7.1), primeramente; el ángulo de contacto entre las partículas sólidas y el agente aglomerante y segundo; el coeficiente de extensión o esparcimiento de la fase líquida sobre la fase sólida (Iveson et al., 2001). El líquido aglomerante debe humedecer suficientemente la superficie y extenderse para que la formación del núcleo no sea afectada (Tardos et al., 1997) y (2) la zona de mezclado de los sólidos y el agente aglomerante, referido como la *zona de dispersión* (sección 1.2.7.4), la cual es función de las variables del proceso mientras que la formación del núcleo es función de las propiedades del sólido inicial y propiedades del líquido (etapa 3 figura 1.10). En esta zona es donde se llevan a cabo los procesos de coalescencia, cizallamiento y rompimiento (Iveson et al., 2001).

1.2.5.1. Opciones de procesamiento.

En general, la opción del proceso principal puede ser caracterizada por la orientación de boquilla y por el principio de diseño de la distribución del gas de fluidización en la cámara de procesamiento. Cuando una unidad de lecho fluidizado es empleada para aglomeración y revestimiento, uno o más líquidos tiene que ser atomizados dentro de la cámara de proceso. Para formar productos con diferentes propiedades, diferentes opciones de procesamiento se han desarrollado (Jacob, 2005). Estas opciones son: procesamiento con “*atomización superior*”, el líquido es atomizado en la parte superior de lecho de partículas fluidizadas (Figura 1.11a). En el proceso con “*atomización inferior*” el líquido es atomizado ascendentemente (Figura 1.11b). En el proceso de “*atomización tangencial*” el líquido se atomiza en forma lateral (Figura 1.11c).

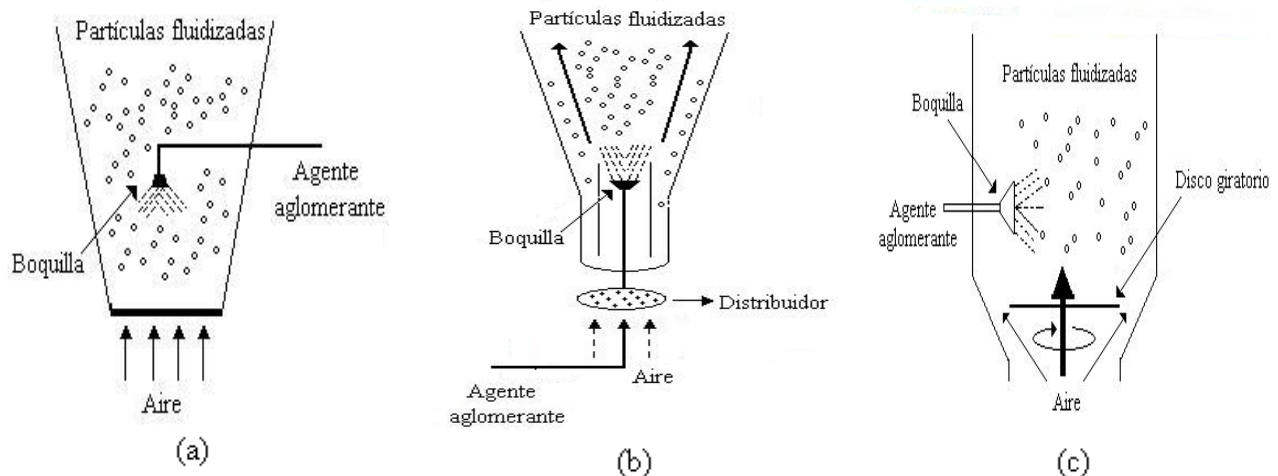


Figura 1.11. Diagrama de equipo con atomizado superior, (a) atomizado inferior (b) atomizado superior, y atomización tangencial con rotor, (c)

Dependiendo de las opciones de procesamiento, la funcionalidad y estabilidad de la boquilla puede variar. En la Tabla 1.1 se describen las aplicaciones de las opciones de atomización antes mencionadas.

Tabla 1.1. Características de las opciones de atomización en los procesos

Procesamiento con atomización superior	Procesamiento con atomización inferior	Procesamiento con atomización tangencial
<ul style="list-style-type: none"> • Velocidad uniforme del gas de entrada. • Mezclado y dispersión de sólidos por la ascensión de las burbujas de gas. • Tendencia al secado y cristalización por atomización. • Aumento del riesgo por aglutinación (torta) sobre la boquilla de atomización. 	<ul style="list-style-type: none"> • Velocidad uniforme del gas de entrada. • Mezclado y dispersión de sólidos por la ascensión de las burbujas de gas. • Reduce la tendencia al secado y cristalización por atomización. • Alto impacto a la masa de sólidos y boquilla de atomización. • Efecto de limpieza de la masa del lecho minimizando la formación de la torta. 	<ul style="list-style-type: none"> • Velocidad uniforme del gas de entrada. • Mezclado y dispersión de sólidos por la ascensión de las burbujas de gas. • Reduce la tendencia al secado y cristalización por atomización. • Bajo impacto a la masa de sólidos y boquilla de atomización. • Efecto de limpieza de la masa del lecho minimizando la formación de la torta, y la atomización es influenciada por el gas fluidizante
Aplicaciones		
<p>Aglomeración de polvos para producir granos con baja y media densidades aparentes y para recubrimiento</p>	<p>Aglomeración de polvos para producir granos con altas densidades aparentes.</p> <p>Aglomeración por atomización de líquidos, y recubrimiento</p>	<p>Aglomeración por atomización de líquidos y recubrimiento</p>

El resumen anterior está orientado para cubrir los requerimientos del proceso tales como: evitar la tendencia al secado por pulverización; riesgo de acumulación de producto en la boquilla y la influencia que tiene el soporte interno sobre el patrón de atomización.

1.2.6. Mezclado

Un eficiente mezclado de los sólidos es esencial para dispersar el agente aglomerante líquido en todos los tipos de granuladores. Altos fluxes de polvo a través de la zona de atomización permiten una distribución uniforme de los sólidos y agente aglomerante, transportando “paquetes” de éstos fuera de la zona de atomización y así mismo, renovando la población de sólidos dentro de ésta zona. Un incremento en el flux de sólidos a través de la zona de atomización reduce el tamaño final del aglomerado debido a un menor tiempo de contacto entre el sólido y el líquido y a un menor volumen de líquido aglomerante disponible para la formación de núcleos por unidad de volumen. Por consiguiente, una constante renovación de la superficie evita la sobre humectación y colapso del lecho. La principal contribución al transporte de partículas en un granulador de lecho fluidizado es el transporte ascendente de material en la estela de una burbuja, la cual asciende a la parte superior del lecho (etapas 3 y 4 Figura 1.10) explotando una vez que llega a la superficie, liberando de esta forma las sólidos y/o aglomerados arrastrados, los cuales reingresan a la zona de atomización rehumedeciéndose nuevamente (etapa 1 Figura 1.10). El volumen de la burbuja determina el volumen de la estela y por lo tanto el transporte de partículas. En su forma idealizada las burbujas son de forma esférica con una porción baja llena de partículas, el grado de llenado depende del tamaño de partícula. Como la burbuja viaja ascendentemente a una velocidad proporcional a la raíz cuadrada de su diámetro, esta lleva una estela de partículas con ella; junto con otras partículas que son transportadas (pero más lentamente) por la corriente. El material transportado en la estela como el llevado en la corriente cambia constantemente cuando éstas ascienden a través del lecho, promoviendo así el mezclado y terminan en la superficie cuando las burbujas revientan dispersando las partículas radialmente (se hacen uso de correlaciones para estimar el crecimiento de las burbujas [Kunii y Levenspiel, 1990](#)). El flujo de gas en una burbuja está relacionado a la velocidad mínima de fluidización, U_{mf} , a través de la relación conocida como la teoría de las dos fases ([Kunii y Levenspiel, 1990](#)). Durante el proceso de aglomeración, la velocidad mínima de fluidización, U_{mf} , del sólido incrementará conforme el diámetro del gránulo incrementa, provocando con esto que la velocidad de exceso disminuya al igual que el mezclado global en el lecho. De tal modo, que un incremento en la velocidad mínima de fluidización resulta en una disminución del mezclado, sobre-humectando el lecho de sólidos y provocando el colapso del sistema (apagado húmedo). Por tal motivo un control de la humedad en el lecho es necesario, dado que valores críticos puede influenciar el comportamiento del mezclado.

1.2.7. Proceso de aglomeración

Actualmente, la aglomeración puede observarse como una combinación de tres distintos procesos los cuales son: Humectación y Nucleación, Consolidación y Coalescencia y Cizallamiento y Rompimiento. Estos procesos se ilustran en la figura 1.12 y se describen enseguida (Iveson et al., 2001).

- Humectación y Nucleación de las partículas originales por el líquido atomizado.
- Consolidación y Coalescencia para formar los gránulos
- Cizallamiento y Rompimiento de los gránulos

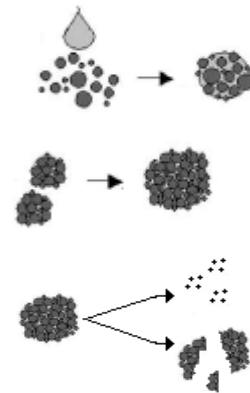


Figura 1.12. Esquema de los procesos presentes en la aglomeración

1.2.7.1. Humedecimiento y nucleación

El paso inicial en el proceso de aglomeración húmeda es la etapa en la cual el líquido aglomerante se pone en contacto con una población de sólidos secos, distribuyéndose eventualmente a través de éstos. Inicialmente, las gotas de líquido son formadas en la boquilla de atomización de donde caen e impactan la superficie del lecho. Una vez que las gotas impactan la superficie del lecho, éstas se extenderán sobre la superficie del lecho (si el líquido se adhiere al sólido) y lo penetran por la acción capilar. Debido a la intensidad de mezclado en el lecho, el líquido aglomerante así como los sólidos son mezclados para formar grumos iniciales conocidos como *núcleos* (Scherer and Mathiensen, 1996). Si las gotas penetran lentamente la superficie del lecho o si el flux de gotas sobre la superficie del lecho es alta, las gotas se superpondrán y coalescerán. Esto dará lugar a una amplia distribución de tamaños de núcleos causando una amplia distribución de tamaños de aglomerados. Una condición de nucleación ideal ocurre cuando una gota produce un solo núcleo (Lister et al., 2004). El proceso de nucleación es influenciada por los tamaños relativos entre la gota del líquido atomizado y el sólido primario. Si la gota es de un tamaño más grande que los sólidos, estos son engullidos por la gota dando lugar al proceso de nucleación por *inmersión*. En la Figura 1.13a se ilustra el principio de este tipo de nucleación.

Éste proceso produce un núcleo con los poros saturados de líquido. Cuando las gotas de líquido atomizado son relativamente pequeñas en comparación con el tamaño del sólido, el tipo de nucleación ocurre por *distribución*, siendo éste un recubrimiento de líquido sobre la superficie del sólido. Posteriormente, el sólido humedecido interactúa con los sólidos que componen el lecho provocando la coalescencia entre ellos. Este tipo de nucleación forma núcleos con aire atrapado en su interior (Iveson et al., 2001). En la Figura 1.13b se ilustra el principio de este tipo de nucleación.



Figura 1.13. Dependencia del proceso de nucleación sobre el tamaño relativo entre la gota de líquido y sólido, a) proceso por inmersión, b) proceso por distribución (Iveson et al., 2001).

1.2.7.2. Termodinámica de nucleación

Cuando se tiene un sistema en el cual se consideran los efectos de superficie, se tiene una fase que no es estrictamente homogénea. Considérese un sistema compuesto por las fases α y β (Figura 1.14a), en la cual las moléculas situadas en la región de contacto de las fases o cerca de ella, tienen un entorno molecular diferente del de las moléculas situadas en el interior de α y β . La región tridimensional de contacto entre éstas fases, en la que las moléculas interactúan con moléculas de ambas fases, se llama *capa interfacial o interfase*. La capa interfacial es una región de transición entre las fases α y β y no es homogénea; por el contrario, sus propiedades varían desde aquellas que son características de la fase α hasta aquellas que lo son de la fase β . Debido al cambio en las interacciones intermoleculares, las moléculas de la interfase tienen una energía molecular media diferente de las de aquellas que se encuentran en cualquiera de las fases. Un cambio en el área de la interfase entre α y β cambiará, por tanto, la energía interna del sistema. Por ejemplo, en el caso de un líquido en contacto con su vapor, las moléculas de la superficie del líquido experimentan menos atracciones por parte de otras moléculas de la fase líquida que las situadas en el interior de la fase líquida y tienen, por tanto, una energía media superior a la de éstas (Figura 1.14b).

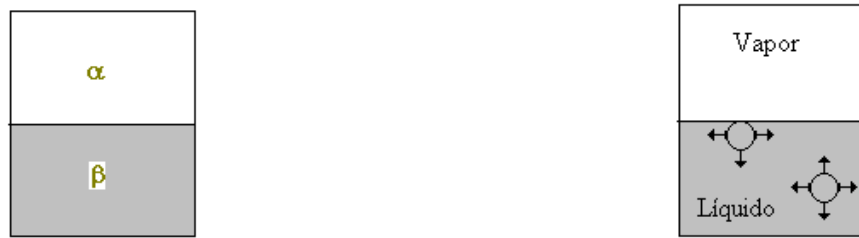


Figura 1.14. (a) Un sistema de dos fases; (b) fuerzas atractivas de las moléculas en un líquido

Un concepto importante en cualquier tipo de interface es el de energía superficial. Esta energía no es más que el exceso de energía libre que surge como consecuencia de una interface de área \mathcal{A} . Aumentar el área de la interface líquido-vapor requiere trabajo, ya que tal aumento significa que hay menos moléculas en la fase líquida y más en la capa superficial. En general, se requiere un trabajo positivo para aumentar el área de la interface entre dos fases. El número de moléculas en la región de la interface es proporcional al área de la interface \mathcal{A} entre las fases α y β . El número de moléculas en la región de la interface es proporcional a \mathcal{A} . Si se realiza un proceso mecánicamente reversible que incrementa el área en la interface \mathcal{A} . El aumento del número de moléculas en la interface es proporcional a dA y, por tanto, el trabajo necesario para incrementar el área interfacial es proporcional a dA , donde la constante de proporcionalidad es la cantidad $\gamma^{\alpha\beta}$ llamada tensión superficial (donde los superíndices indican que el valor de esta constante depende de las fases en contacto, la tensión superficial tiene las dimensiones de fuerza/longitud (lb/pulg o N/m). Sin embargo, si se multiplican la parte superior e inferior de esta relación por la longitud, se obtiene (fuerza longitud)/longitud², lo cual es equivalente a energía/área. Así, se puede concluir que la tensión superficial está conectada con la energía superficial por unidad de área. El trabajo reversible que se necesita para aumentar el área interfacial es entonces $\gamma^{\alpha\beta} dA$. Si se considera un sistema con una sola interface, $\gamma^{\alpha\beta}$, se puede representar mediante γ . La forma de la interface depende de las magnitudes relativas de las fuerzas de adhesión entre líquido y sólidos y cohesión en el líquido. Un efecto importante atribuible a la tensión superficial es la elevación capilar de líquidos en tubos pequeños.

Como se mencionó anteriormente, las fuerzas superficiales están presentes en cualquier sistema en el que esté presente una interface entre dos fases, por ejemplo: sólido-líquido, sólido-gas, líquido-gas o líquido-líquido. En un sistema sólido-líquido dos aspectos tienen la mayor importancia. Estudios en termodinámica de humectación, se han enfocado en dos aspectos: *el ángulo de contacto* entre el sólido y el líquido y *el coeficiente de extensión* λ de la fase líquida (Iveson et al., 2001).

Para el caso de un líquido que humedece bien una superficie sólida (Figura 1.15) el ángulo θ que se muestra es el ángulo que se forma entre el borde de la superficie del líquido y la superficie del sólido, medido dentro del líquido. Este ángulo se denomina *ángulo de contacto* y es una medida de la calidad del humedecimiento. Así mismo, el ángulo de contacto depende de la composición del líquido y propiedades físicas del sólido, especialmente rugosidad, porosidad y afinidad por líquido. Cuando las fuerzas adhesivas superan a las cohesivas, θ se encuentra en la zona $0 \leq \theta < 90^\circ$; cuando las fuerzas cohesivas superan las adhesivas, se cumple $90^\circ < \theta \leq 180^\circ$. Para un humedecimiento perfecto, en el cual el líquido se difunde como una película delgada sobre la superficie del sólido, θ es cero.

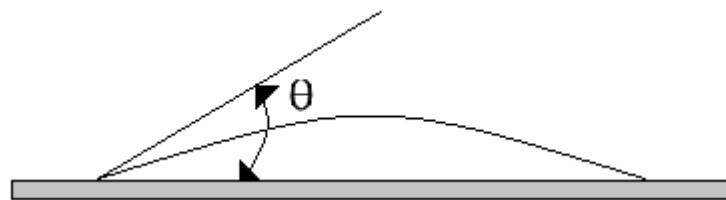


Figura 1.15. Humedecimiento y ángulo de contacto

Cuando una gota de líquido se expone al aire y humedece parcialmente un sólido se tiene un sistema el cual comprende tres interfaces, esto es: una interface sólido-líquido con una tensión superficial γ_{sl} ; una interface sólido-vapor con una tensión superficial γ_{sv} , y una interface líquido-vapor con una tensión superficial γ_{lv} (los subíndices “l”, “s” y “v” denotan la fase líquido, sólido y vapor respectivamente) tal y como se muestra en la Figura 1.16.

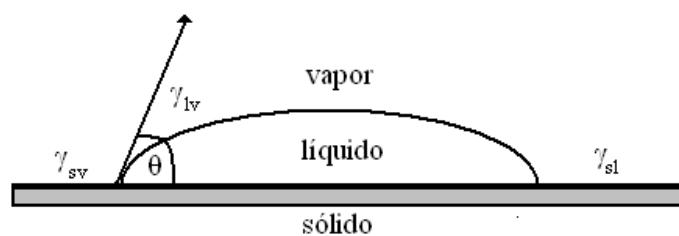


Figura 1.16. Tres interfaces presentes cuando una gota de líquido se pone en contacto con un sólido

Cuando un líquido se adhiere a la superficie de un sólido, la energía necesaria para romper la adhesión es el trabajo de adhesión W_A , el cual es el trabajo requerido para separar una interface en dos superficies. El trabajo de adhesión se puede obtener considerando un cilindro de líquido hipotético con una sección transversal de 1 cm^2 , unido a un cilindro sólido de sección idéntica a la del líquido (Figura 1.17).

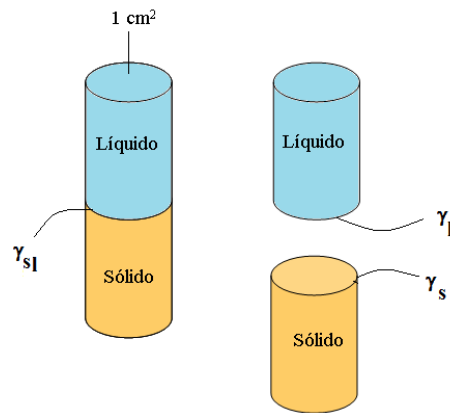


Figura 1.17. Representación del trabajo de adhesión necesario para separar el sólido y la capa superior líquida

Se tiene por tanto, que el trabajo necesario para separar las dos secciones con un área transversal de 1 cm^2 lo cual se expresa como:

$$\text{Trabajo} = \text{Tensión superficial} \times \text{unidad de variación de área} \quad (9)$$

Según esto, el trabajo realizado es igual a las tensiones superficiales creadas para el líquido y el sólido, γ_l y γ_s , menos la tensión interfacial γ_{sl} por el área, que ha sido destruida en el proceso. En consecuencia, el trabajo de adhesión para la interface sólido-líquido está dado por:

$$W_A = (\gamma_{ls} + \gamma_{sv} - \gamma_{sl})A \quad (10)$$

donde $A=1 \text{ cm}^2$.

Para una gota que humedece parcialmente un sólido, la energía interfacial es mínima cuando la componente horizontal de la tensión interfacial está en equilibrio. Esta situación es descrita por la ecuación de Young (Kontogeorgis, 2004), donde θ es el ángulo de contacto:

$$\gamma_{sv} = \gamma_{sl} + \gamma_{lv} \cos \theta \Leftrightarrow \gamma_{sv} - \gamma_{sl} = \gamma_{lv} \cos \theta \quad (11)$$

Por lo tanto, la relación entre el trabajo de adhesión y el ángulo de contacto se obtiene sustituyendo la ecuación (11) en ecuación (10) obtenemos:

$$W_A = \gamma_{lv}(1 + \cos \theta) \quad (12)$$

donde las unidades de trabajo son de Joules (J).

Si el ángulo de contacto es grande (un ángulo grande indica poco humedecimiento) el trabajo de adhesión es pequeño. Con un valor bajo de W_A se espera que el núcleo sea pequeño y frágil resultando en un gránulo final débil y frágil. El trabajo de cohesión necesario para separar las moléculas del líquido que se extiende, de modo que ésta pueda fluir sobre el sólido, se obtiene considerando un cilindro líquido hipotético con un área transversal de 1 cm^2 (Figura 1.18).

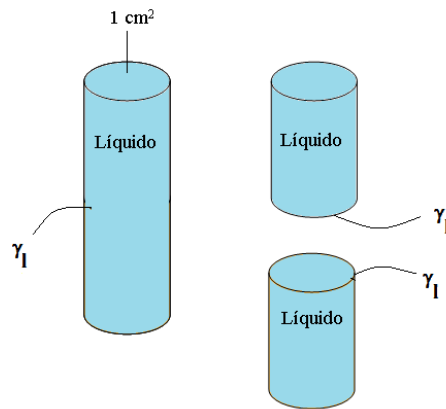


Figura 1.18. Representación del trabajo de cohesión necesario para separar entre sí moléculas de un mismo líquido

Como es sabido, no existe tensión interfacial alguna entre las moléculas en el interior de un mismo líquido, pero cuando en éste se divide (cilindro hipotético de 1 cm^2 de sección) se crean dos nuevas superficies, cada una de ellas con una tensión superficial del líquido γ_l , por tanto, el trabajo de cohesión es:

$$W_C = 2\gamma_l \quad (13)$$

Por consiguiente, se producirá extensión del líquido si el trabajo de adhesión (que representa la medida de la fuerza de atracción entre el sólido y el líquido) es mayor que el trabajo de cohesión, o de un modo matemático, cuando $W_A - W_C > 0$, el líquido se extenderá sobre la superficie del sólido. La diferencia entre estos dos trabajos es conocida por *coeficiente de extensión o esparcimiento* (λ_s) que puede expresarse como:

$$\lambda_s = W_A - W_C = \gamma_{ls} + \gamma_{sv} - \gamma_{sl} - 2\gamma_{ls} \quad (14)$$

simplificando se obtiene:

$$\lambda_{ls} = W_A - W_C = \gamma_{sv} - \gamma_{sl} - \gamma_{ls} = \gamma_{sv} - (\gamma_{sl} + \gamma_{ls}) \quad (15)$$

Existen tres posibilidades en la extensión de un líquido y un sólido. Primeramente, el líquido puede extenderse sobre el sólido y crear una película superficial (λ_{ls}); segundo, el sólido puede extenderse o adherirse al líquido sin la formación de la película (λ_{sl}) y tercero, tanto el líquido como el sólido tiene un alto trabajo de cohesión. Solo las dos primeras posibilidades son de interés en la nucleación. Como se describió anteriormente, la extensión ocurrirá espontáneamente cuando el coeficiente de extensión sea positivo. Cuando λ_{ls} es positivo, el agente aglomerante se esparcirá y formara una película en la superficie del sólido formando puentes líquidos en la mayoría de los puntos de contacto entre los sólidos, formando núcleos fuertes (Iveson et al., 2001; Zajic and Buckton, 1990; Rowe, 1989).

1.2.7.3. Cinética de formación del núcleo

En la práctica la interface líquido-sólido-vapor no tienen el tiempo suficiente para alcanzar el estado de equilibrio debido a la interferencia de la fuerza de agitación y secado ocurriendo simultáneamente en el granulador de lecho fluidizado. Además de la termodinámica y la humectación, la formación del núcleo es función también de la cinética. Cuando el líquido penetra dentro de los poros entre las partículas sólidas éste es impulsado por la acción de la tensión superficial, ángulo de contacto y radio del poro. El líquido avanza dentro del lecho de sólidos descendiendo por los poros cada vez más pequeños y antes del agotamiento del líquido, las gotas se extienden sobre la superficie del lecho (Hapgood et al., 2002). Por consiguiente el tiempo de esparcimiento τ_s es mucho menor que el tiempo de penetración de la gota τ_g indicando con esto que la gota de líquido contacta la superficie del lecho y se extiende inmediatamente, seguido por un lento proceso de agotamiento. Cada uno de estos tiempo es dependiente de la viscosidad pero la relación τ_s/τ_g es independiente de esta (Denesuk et al., 1994; Iveson et al., 2001).

1.2.7.4. Dispersión del agente aglomerante

El grado de dispersión del agente aglomerante, indica la calidad de mezclado entre los sólidos y el agente líquido, y es fuertemente afectada por la forma de entrega. Por lo tanto la dispersión del agente

aglomerante es una función de las propiedades del proceso y especialmente de cuatro variables de operación las cuales son: distribución de tamaño de gota, velocidad de atomización, tamaño y posición de la zona de atomización y flux de sólidos (Iveson et al., 2001).

Una estrecha y bien definida distribución de tamaños de gotas atomizadas, resulta en una distribución controlada de tamaño final del aglomerado, así mismo, el tamaño y distribución de las gotas de agente aglomerante determina la distribución de tamaño del núcleo (Tardos et al., 1997). Especialmente en granuladores de lecho fluidizado existe una fuerte correlación entre el tamaño de gota y la distribución del tamaño del núcleo y se ha encontrado una relación entre el diámetro del núcleo d_n y el diámetro de gota del líquido aglomerante, d_g (Waldie, 1991).

Schaafsma et al. (1998, 2000) encontraron una aproximación lineal entre la masa final de aglomerados y la masa de agente aglomerante atomizado la cual depende de propiedades tales como: distribución de tamaños de los sólidos y la humectación de la interface líquido-sólido. El mejor agente aglomerante líquido que una a las partículas reflejará una alta proporción de nucleación.

La localización y forma de la zona de atomización es gobernada por la posición de la boquilla y el ángulo de atomización. Grandes ángulos de atomización y elevadas posiciones de la boquilla con respecto al lecho, incrementan el área del lecho expuesto al líquido atomizado, incrementando con esto el secado prematuro de las gotas del agente aglomerante. Esto reduce la probabilidad de que las gotas del agente aglomerante coalescan, reduciendo el tamaño del núcleo inicial.

Litster et al. (2001) combinaron la velocidad volumétrica de atomización del agente aglomerante con el flux de sólidos en un parámetro llamado “flux adimensional de atomización” Ψ_a , el cual está dado por la ecuación (16):

$$\Psi_a = \frac{3\dot{V}}{2\dot{A}d_g} \quad (16)$$

donde \dot{A} es el flux de sólidos a través de zona de atomización (aproximado por la velocidad con la que pasan los sólidos en la zona de atomización y el ancho de los sólidos húmedos (Lister et al., 2001), \dot{V} es la velocidad volumétrica de atomización de gotas esféricas producidas por la boquilla y d_g es el

diámetro de la gota líquida. Este flux adimensional es una medida de la superficie de sólidos cubierta por el líquido aglomerante (Iveson et al., 2001). Un valor alto de este flux indica que el líquido aglomerante es alimentado muy rápido con respecto a la velocidad del flux de sólidos, las gotas se superponen una con otra sobre la superficie del sólido causando la coalescencia de las gotas y por ende una amplia distribución de tamaño de los núcleos. Un valor bajo de Ψ_a indica que la razón del flux de sólidos a velocidad de atomización es suficientemente alta para que cada gota de líquido se pose separadamente y los núcleos sean barridos de la zona de atomización antes de que sean rehumedecidos por otra gota. Ψ_a es un parámetro de control para el tamaño y forma del núcleo.

1.2.7.5. Comportamiento de crecimiento del gránulo

Si la humectación y nucleación son bien controladas, entonces el grado de consolidación del núcleo y coalescencia del gránulo afectarán las propiedades finales. Cuando un gránulo y núcleo colisionan con otros gránulos/núcleos y superficie del equipo se compactan gradualmente. Esto reduce su tamaño y porosidad comprimiendo al agente aglomerante desde el interior hacia la superficie del gránulo. Este fenómeno se le conoce como *consolidación* (Iveson et al., 2001). Las bajas fuerzas de agitación en un lecho fluidizado compactan el gránulo a un nivel limitado y el grado de importancia de consolidación es limitado. El comportamiento de crecimiento del gránulo depende en general de la disponibilidad de líquido en la superficie del gránulo y su deformabilidad durante su colisión. Los gránulos coalescen por disipación viscosa en la superficie líquida antes que las superficies de los gránulos hagan contacto (Liu et al. 2000), es decir, cuando dos partículas se aproximan una a otra, el primer contacto se realiza en la capa del agente aglomerante. Posterior a esta etapa, el líquido es comprimido fuera del espacio dejado entre las partículas originando con esto el movimiento de éstas. Este movimiento permite que el líquido sea drenado hacia el espacio inter-partícula hasta el punto donde se establezca un puente líquido. Este puente formado puede romperse debido al movimiento del lecho o bien puede solidificarse para transformarse en un puente sólido permanente (coalescencia). Por consiguiente, un gránulo coalescerá solo si está presente una capa de líquido disponible en la superficie del gránulo. Este principio de crecimiento continúa hasta que el líquido aglomerante en la superficie es insuficiente para enlazar nuevas partículas (Schaafsma et al., 1998). La cantidad relativa de líquido presente en esta etapa se le denomina humedad de saturación S_w y depende del ángulo de contacto del líquido aglomerante y la estructura porosa del gránulo (Tardos et al., 1997). La humedad de saturación refleja la mojabilidad de las partículas y es frecuentemente aproximado por el volumen de gota de agente aglomerante dividido

por el volumen de poro de una partícula, bajo la suposición de que no se presenta una evaporación (Schaafsma et al., 2000).

Ennis et al. (1991) modeló el proceso de coalescencia en un lecho fluidizado considerando el impacto de dos esferas sólidas no deformables donde cada una es cubierta por una delgada capa de agente aglomerante viscosa. El modelo asume una coalescencia exitosa cuando la energía cinética de impacto es enteramente disipada por la acción viscosa de la capa de líquido, lo cual viene expresado por el número de Stokes el cual se expresa de la siguiente forma:

$$S_t = \frac{4\rho U_c d}{9\mu} \quad (17)$$

donde ρ es la densidad del gránulo, U_c es la velocidad relativa de colisión, d es el diámetro del gránulo promedio, y μ es la viscosidad de la fase líquida. La velocidad de colisión se expresa como:

$$U_c \approx \frac{12U_b a}{\bar{d}_b} \quad (18)$$

donde U_b es la velocidad de ascensión de la burbuja, a es el radio del gránulo y \bar{d}_b es el diámetro promedio de la burbuja de gas. Como puede apreciarse, la velocidad de colisión es una función del tipo de granulador y por ende de las variables de operación que afectan la agitación del lecho. Existen correlaciones (Kunii and Levenspiel, 1990) que describen la hidrodinámica en los modelos de lechos fluidizados (velocidad mínima de fluidización, tamaño de la burbuja de gas, velocidad de ascensión, sec. 1.2.1.2). Se puede observar que cuando $S_t \gg 1$, la energía cinética de las partículas colisionantes domina así que los gránulos no tienden a coalescer. Para $S_t \ll 1$, la fuerza de disipación viscosa del agente aglomerante que rodea al gránulo es suficiente para disipar la energía cinética y se presenta la coalescencia (Cryer, 1999).

1.2.7.6. Cizallamiento y rompimiento

El cizallamiento es la fuerza que provoca la reducción de tamaño de las partículas que componen un lecho fluidizado. Dado que la reducción de tamaño genera una masa correspondiente de material muy

fino, la tasa de cizallamiento puede ser dado por la generación de finos. Es particularmente conveniente que si esta masa de finos abandona el lecho, éstos sean recolectados, pues puede resultar en pérdidas de material valioso (Pell, 1990). Cuando una partícula experimenta un impacto, las fracturas pueden propagarse y provocar una hendidura en las partículas y la consecuente pérdida de material debido a la colisiones ínter partícula y a los impactos entre los sólidos del lecho y paredes del sistema. El modo de cizallamiento puede variar desde abrasión pura a una total fragmentación de la partícula. Abrasión implica que las asperezas exclusivamente sean removidas de la superficie de la partícula. En contraste a esto, la fragmentación es un proceso de rompimiento de la partícula. El proceso de cizallamiento en los lechos fluidizados se debe principalmente a los esfuerzos hidrodinámicos a los que se ven sometidos los sólidos. Las fuentes de estos esfuerzos son muchos donde los más importantes pueden ser divididos en tres categorías (Ayazi et al., 1990):

1. Esfuerzos químicos, los cuales por un periodo de tiempo, causan el debilitamiento estructural y el rompimiento de los agregados.
2. Esfuerzos térmicos, causados por diferencia de temperatura en los agregados en el lecho y/o ciclos de calentamiento y enfriamiento del material del lecho. A este respecto, Kunii and Levespiel, (1991) establecen que el efecto de la temperatura solo es considerable a temperaturas arriba de 500°C.
3. Esfuerzos inducidos por la dinámica del fluido (esfuerzos cinéticos); los cuales se subdividen en los siguientes esfuerzos:
 - a. Esfuerzos de contacto causados por el resultado de los impactos entre las partículas que conforman el lecho e impactos con baffles, ciclones y paredes de la columna.
 - b. Esfuerzos debido a la energía del fluido, causados por el movimiento del gas en forma de burbujas en el bulto de la columna y los chorros de gas cerca del distribuidor (Figura 1.19)

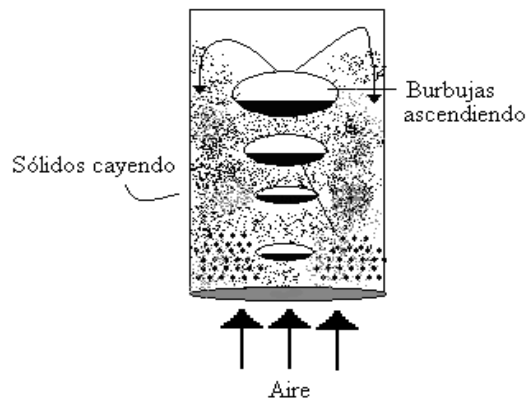


Figura 1.19. Esfuerzos a los que son sometidos los agregados en un granulador de lecho fluidizado

La comprensión del comportamiento de los diferentes esfuerzos a los que pueden estar sometidos los aglomerados dentro del sistema es complicada, debido a la interacción y competencia entre ellos. De tal forma, las tasas de cizallamiento deben ser calculadas separadamente mediante modelos que tomen en cuenta el diseño del sistema, las condiciones de operación y las propiedades del material (Ayazi and Liu., 1990).

1.2.8. Arrastre de sólidos en lechos fluidizados

Normalmente, los lechos fluidizados son operados a velocidades mayores que U_{mf} y bajo estas circunstancias es común que las partículas sean lanzadas del lecho a un espacio encima de éste conocido como *espacio-libre*. Este fenómeno es conocido como “arrastre” y este llega a ser más severo cuando la velocidad del gas fluidizante, U_{gs} , incrementa. Si U_{gs} llega a ser tan alta que ésta iguale a la velocidad de caída terminal de las partículas del lecho, U_t , entonces estas serán “elutriadas” es decir, transportadas fuera del sistema (Kunii and Levespiel, 1991). La presencia de partículas finas puede causar la aglomeración de los polvos libres. Se ha encontrado experimentalmente que las partículas más pequeñas no son siempre las más fáciles de ser arrastradas en los lechos fluidizados (debido a que las partículas más finas tienen una gran relación superficie a volumen) y por lo tanto tienden a aglomerarse con otras partículas del lecho (aglomeración espontánea), de tal modo, en el lecho están presentes tanto los aglomerados como una pequeña fracción de sólidos finos que permanecen libres de otros (Baron et al., 1992).

1.3. Balance de población

1.3.1. Definición y caracterización de una dispersión.

Un sistema disperso, es aquel que está constituido por un gran número de “partículas” líquidas, sólidas o gaseosas de diferentes tamaños, inmersas en un fluido. En estos sistemas, una fase se dispersa en otra, de tal forma que pueden ocurrir diversos procesos de transporte de masa, moméntum y energía entre ellas. Algunos de estos procesos, llamados de agregación, producen un cambio en el número de partículas o gotas de una cierta clase en función del tiempo (Valencia, 2001; Salinas-Rodríguez y Rodríguez, 1995). Cualquier evento que tenga como consecuencia la creación espontánea de gotas o partículas, así como la aniquilación de las gotas o partículas existentes, es estrictamente hablando un evento probabilístico, de donde es posible formular los sistemas de agregación en términos estadísticos. Sin embargo una descripción estadística no implica necesariamente un modelo estocástico (fluctuaciones internas y externas). La diferencia fundamental entre ambas descripciones radicará en la importancia de las fluctuaciones de las variables de estado más relevantes (Salinas-Rodríguez y Rodríguez, 1995). En esta descripción se consideran fluctuaciones alrededor del valor promedio, el cual se define en términos de una función de distribución de tamaño de partículas, la cuál puede ser en principio función del radio, de la posición y del tiempo, no se considerarán fluctuaciones internas (origen térmico) ni ruido externo. Aquí puede verse que estas fluctuaciones tienen origen físico distinto a las fluctuaciones en la turbulencia y a las desviaciones en promedio volumétrico.

1.3.2. Balance de población

En muchos tipos de procesos químicos, las partículas son partes vitales de sistemas en donde éstas se encuentran de manera natural o diseñada dentro del sistema. Tales sistemas conteniendo partículas son frecuentemente referidos como un sistema de fase dispersa (Ramkrishna, 2000). La ecuación de balance de población (EBP) es la herramienta de modelado frecuentemente empleada para cuantificar la dinámica de los procesos de partícula en diferentes disciplinas, como son: procesos biotecnológicos, procesos de aerosoles, cristalización, aglomeración y polimerización. Estos procesos son caracterizados por la presencia de una fase continua y una fase dispersa compuestos por entidades con una distribución de propiedades, tales como tamaño y composición.

En un proceso dado, las entidades interactúan unas con otras así como con la fase continua. El contenido fenomenológico de los balances de población radica en estas interacciones. Tales interacciones pueden variar de entidad a entidad dependiendo de sus propiedades. La polidispersidad de los procesos de partícula afecta significativamente el comportamiento de tales sistemas. Como dos partículas no pueden ser exactamente del mismo tamaño, los sistemas de partículas deben ser caracterizados por una distribución de tamaños de partículas (DTP) y ésta distribución es frecuentemente considerada como un parámetro para caracterizar tales sistemas en una manera sencilla (Randolph and Larson, 1988). El primer modelo de balance de población describiendo la coagulación en una solución coloidal debido al movimiento Browniano, fue publicado hace más de 80 años (Smoluchowski, 1916), mientras que la aplicación y desarrollo de los balances de población en investigaciones sobre aglomeración así como, en otras áreas de ingeniería inició a finales de 1960. La EBP describe la evolución de la distribución de una o más propiedades en el curso del tiempo. La distribución inicial de tamaños es muy importante porque es un factor clave de control para la aglomeración y para procesos posteriores, así como, la calidad de los productos, por ejemplo: uniformidad de masa y tiempo de disolución de tabletas.

La evolución de la DTP debido a la coalescencia es modelada por la incorporación de un kernel de coalescencia dentro de la EBP. El kernel de coalescencia es el instrumento fenomenológico principal en la EBP, ya que da la dependencia funcional de la tasa de agregación con los tamaños y otras propiedades de las partículas y condiciones del proceso. Un kernel está idealmente basado en un modelo físico a partir del conocimiento de todas las variables, o en una aproximación semi-empírica, la cual se basa en un proceso mecánico de un proceso de aglomeración, o puede ser un modelo puramente empírico y fijado a través de un ajuste de datos experimentales.

Un sistema de aglomeración de lecho fluidizado por lote es un sistema típico de fase dispersa en el que las propiedades de las partículas juegan un papel significativo en el comportamiento del sistema. Esto es debido a la formación (nacimiento) continua como también al rompimiento (muerte) de aglomerados y la influencia resultante de las características de la fluidización y transferencia de calor.

Cualquier análisis de sistemas de aglomeración busca sintetizar el comportamiento de una población de partículas y su medio ambiente a partir del comportamiento individual de una partícula y su ambiente local. Así, la población es descrita por la densidad de una variable extensiva siendo usualmente el

número de partículas, pero algunas veces se emplean otras variables tales como: longitud (diámetro), la masa o el volumen de las partículas.

Una ecuación de balance de población es por lo tanto, una ecuación de densidad numérica y puede ser considerada para representar un balance numérico de partículas en un estado particular (Ramkrishna, 2000; Iveson, 2002). La ecuación de balance de población mantiene el rastreo de la distribución de tamaños de partículas en cualquier tiempo durante el proceso, además describe todos los cambios en la distribución de tamaños debido a los varios procesos que las partículas pueden experimentar durante la aglomeración. El principal problema de la EBP es que la solución puede ser matemáticamente un reto cuando los términos de nacimiento y muerte son incluidos (ver Figura 1.20).

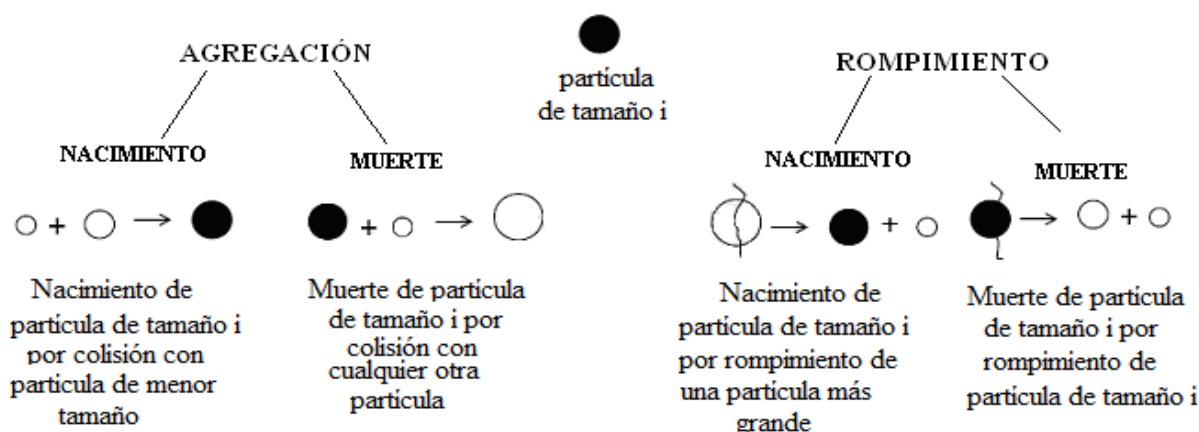


Figura 1.20. Concepto de nacimiento y muerte por agregación y rompimiento

La forma general más conocida de la ecuación de balance de población (EBP) para resolver problemas específicos en ingeniería química fue hecha por Randolph and Larson (1971) en la forma siguiente:

$$\frac{\partial n(\bar{X}, \bar{R})}{\partial t} = -\nabla_{\bar{R}} \cdot [\dot{R} n(\bar{X}, \bar{R})] - \sum \nabla_{\bar{X}} \cdot [\dot{X} n(\bar{X}, \bar{R})] + h(\bar{X}, \bar{R}) \quad (19)$$

donde $n(\bar{X}, \bar{R})$ es la función densidad numérica de partículas/volumen del estado espacial (\bar{X}, \bar{R}) representa el vector de estado de una partícula al tiempo t. Las partículas se encuentran distribuidas de acuerdo a algún parámetro intrínseco \mathbf{x} (coordenadas internas) correspondiente a la propiedad de interés, usualmente el tamaño de la partícula, el parámetro \mathbf{r} (coordenadas externas) corresponde a la localización física dentro del sistema. El término de la izquierda representa la evolución en el tiempo

del número de partículas de un intervalo de tamaño en un volumen del espacio, mientras que los términos del lado derecho representan las diferentes formas por medio de las cuales cambia el número de partículas en el sistema. El primer término de la divergencia incluye las coordenadas externas, éste expresa el cambio en la población en un volumen particular debido a que las partículas pasan a través de dicho volumen con una velocidad \dot{R} , o sea, el flujo de las partículas. El segundo término de la divergencia representa el cambio en la población debido al crecimiento o decrecimiento de la partícula \dot{X} . La sumatoria reconoce el hecho de que puede haber más de una propiedad de interés aparte del tamaño de partícula. El término h representa la tasa neta de generación de partículas por procesos de agregación y rompimiento.

1.3.2.1. Balance de población unidimensional para lechos fluidizados por lote.

Considerando una población de partículas distribuidas acorde a su tamaño x , el cual es frecuentemente ser la masa (o el volumen) de la partícula. El parámetro x se permite variar entre 0 y ∞ . Así mismo, se asume que las partículas están uniformemente distribuidas en el espacio así que la función densidad numérica $n(\bar{X}, \bar{R}, t)$ es independiente de las coordenadas externas, y si se considera una sola coordenada interna, la función densidad numérica promedio en el caso unidimensional se reduce $n(x,t)$. La tasa de crecimiento de partículas debido a recubrimiento de tamaño x es representado por $G(x,t)$ y se asume que las partículas solo cambian su tamaño debido al crecimiento por recubrimiento. Las partículas |cuerda deformándose con una velocidad $G(x,t)$. Se elige una región de tamaño arbitrario $[a,b]$ sobre la coordenada de tamaño estacionaria x con respecto al cual la cuerda con las partículas embebidas está deformándose. Como la cuerda se deforma las partículas conmutan a través del intervalo $[a,b]$ a través del intervalo de los puntos finales a y b , cambiando así el número de partículas en el intervalo. La tasa de cambio en el número de partículas en $[a,b]$ causado por este transporte en a y b es dado por la ecuación (20):

$$G(a,t) \cdot n(a,t) - G(b,t) \cdot n(b,t) \tag{20}$$

donde el primer término representa el flux de partículas dentro de a y el segundo término representa el flux que sale en b (se puede asumir que esta es la única manera en la cual el número de partículas en el intervalo $[a,b]$ puede cambiar). Por tanto, el balance numérico en el intervalo $[a,b]$ puede ser indicado como en la ecuación (21):

$$\frac{d}{dt} \int_a^b n(x,t) dx = G(a,t)n(a,t) - G(b,t)n(b,t) \quad (21)$$

la cual puede ser reescrita como en la ecuación (22):

$$\int_a^b \left[\frac{\partial n(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (G(x,t) \cdot n(x,t)) \right] dx = 0 \quad (22)$$

Dado que, la densidad numérica promedio $n(x,t)$ se considera ser suficientemente suave para permitir la diferenciación con respecto a cualquiera de sus argumentos tantas veces sea necesario. Se asume que se mantiene para $G(x,t)$, y dado que el intervalo $[a,b]$ se elige arbitrariamente, la suavidad del integrando implica que la integral desaparece completamente, por lo tanto el balance de población unidimensional puede encontrarse como:

$$\frac{\partial n(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (G(x,t) \cdot n(x,t)) = 0 \quad (23)$$

La ecuación de balance de población derivada debe ser complementada con una condición inicial así como una condición a la frontera. Si se considera que inicialmente no hay partículas de un tamaño x , la condición inicial es

$$n(x, 0) = 0 \quad (24)$$

Para la condición a la frontera se deja que la tasa de nucleación sea \dot{n}_0 partículas por unidad de tiempo y se asume que las partículas recién formadas tienen un tamaño y masa cero. Esta tasa debe ser igual al flujo de partículas al principio de la cadena en $x=0$. Esto significa que la condición a la frontera puede formularse como:

$$G(0,t) \cdot n(0,t) = \dot{n}_0 \quad (25)$$

Si la ecuación (23) se integra sobre todas las masas de partículas diferentes, se obtiene:

$$\frac{d}{dt} \int_0^{\infty} n(x,t) dx = G(0,t)n(0,t) - G(\infty,t)n(\infty,t) = \dot{n}_0 \quad (26)$$

La igualdad del extremo derecho resulta del hecho que las partículas pueden incrementar en número en este caso simplificado solamente por nucleación.

Comparando la ecuación (25) con ecuación (26) se indica que la densidad numérica se anula a masa infinita si la tasa de crecimiento desaparece para partículas grandes, sino más bien que la densidad numérica debe anularse para tamaños arbitrariamente grandes si la tasa de crecimiento no se anula para partículas grandes.

$$G(\infty,t)n(\infty,t) = 0 \quad (27)$$

La ecuación (23) solo debe aplicarse a procesos donde se lleva a cabo solo crecimiento. Esta ecuación tiene pocas posibilidades de describir con éxito la distribución de tamaños de partículas durante la aglomeración en lechos fluidizados, ya que no se consideró la influencia del nacimiento y muerte de partículas en su derivación. Por consiguiente, debe considerarse una tasa neta de generación de partículas debido a la aglomeración en el rango de tamaño x a $x+dx$, la cual se describe por $h(x,t)dx$, conocida como tasa neta de generación de partículas. Introduciendo la tasa neta de generación en la ecuación (23) se tiene que:

$$\int_a^b \left[\frac{\partial n(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (G(x,t) \cdot n(x,t)) - h(x,t) \right] dx = 0 \quad (28)$$

La ecuación de balance de población resultante se obtiene mediante un tratamiento semejante al aplicado a la ecuación (23):

$$\frac{\partial n(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (G(x,t) \cdot n(x,t)) = h(x,t) \quad (29)$$

La cual debe ser complementada con condiciones a la frontera. La ecuación (25) funciona como condición a la frontera mientras que la ecuación (27) se mantiene para obtener un balance total (30):

$$\frac{d}{dt} \int_0^{\infty} n(x,t) dx = \dot{n}_0 + \int_0^{\infty} h(x,t) dx \quad (30)$$

El término $h(x,t)$ ha sido introducido como la tasa neta de generación de partículas con tamaño x pero este término consiste de hecho de un término de nacimiento $h_a^+(x,t)$ como también de un término muerte $h_a^-(x,t)$. Estos dos términos se desarrollan introduciendo una función densidad numérica promedio y un término llamado frecuencia de coalescencia o frecuencia de agregación. La frecuencia de agregación representa la probabilidad por unidad de tiempo de agregación de un par de partículas de un estado específico. Alternativamente, esto podría representar la fracción de pares de partículas de un estado específico agregándose por unidad de tiempo.

La práctica común es expresar la distribución como una distribución numérica del tamaño \mathbf{x} a un tiempo t , $n(\mathbf{x},t)$. Usualmente, ya sea la longitud de la partícula, \mathbf{l} , por ejemplo, diámetro, \mathbf{d} , o el volumen \mathbf{v} , son tomados como el tamaño de partícula. La decisión de tomar a \mathbf{l} o \mathbf{v} como el tamaño de partícula depende del proceso de crecimiento dominante. [Verkoeijen et al. \(2002\)](#) recomiendan el uso del volumen como el tamaño de partícula porque este tamaño es aditivo durante la agregación y, si la porosidad evoluciona, ésta puede ser omitida dado que el volumen se conserva. La elección de la longitud o volumen para representar el tamaño de la partícula se elige por el método de análisis empleado. La descripción matemática de los procesos de agregación, esto es: nacimiento y muerte, es a través de ecuaciones que involucran integrales del tipo:

$$N_{nacim} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(t, v-u, u) n(t, v-u) n(t, u) du dv \quad (31)$$

Dónde: $\beta(t, v-u, u)$ es el kernel de agregación, $n(v-u, t)$ es el número promedio de partículas con tamaño entre v y $v+dv$ por unidad de volumen, $n(u, t)$ es el número promedio de partículas con tamaño entre u y $u+du$ por unidad de volumen y t es el tiempo.

La ecuación (31) representa la formación de partículas con una fracción de volumen entre v y $v+dv$ por la colisión y unión de dos partículas cuyos volúmenes forman una partícula (nacimiento) con un volumen total dado por la coalescencia de éstas. Si una de las partículas tiene el volumen u y dado que el volumen se conserva, la otra debe tener el volumen $v-u$. El factor principal de $1/2$ se añade para evitar

la doble contabilidad. El kernel de coalescencia $\beta(v, u)$, es una función que modela la física del proceso de agregación a través de la dependencia de esta función sobre sus argumentos.

Así mismo, la ecuación (32) describe la perdida de partículas con una fracción de volumen entre v y $v+dv$ por la colisión y unión con otra partícula de cualquier tamaño.

$$N_{muerte} = n(t, v) \int_0^{\infty} \beta(t, v, u) n(t, u) du dv \quad (32)$$

La acumulación de partículas en la fracción de tamaño entre v y $v+dv$ es dado por:

$$\frac{\partial}{\partial t} [n(v, t) dv] dt = N_{nacim} - N_{muerte} \quad (33)$$

Sustituyendo las ecuaciones (31 y 32) en ecuación (33) se obtiene la expresión final

$$\frac{\partial n(v, t)}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(v-u, u) n(v-u, t) n(u, t) du - \int_0^{\infty} \beta(v, u) n(v, t) n(u, t) du \quad (34)$$

La ecuación diferencial parcial tiene asociadas una condición inicial en el dominio del tiempo y una condición a la frontera en el dominio del tamaño. La condición en el tiempo es la distribución inicial de tamaños:

$$n(v, 0) = n_0(v) \quad (35)$$

y la condición a la frontera es:

$$n(0, t) = n(\infty, t) = 0 \quad (36)$$

La cual significa que no existen partículas de tamaño cero y todas las partículas tienen un tamaño finito. Dependiendo del problema dado, las condiciones a la frontera pueden ser más complicadas. El modelo unidimensional que considera tanto el crecimiento así como el nacimiento y muerte de nuevas partículas con un volumen v debido a la aglomeración está expresado por la ecuación (37):

$$\frac{\partial n(v, t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial v} (G(v, t) n(v, t)) = \frac{1}{2} \int_0^v \beta(v-u, u) n(v-u, t) n(u, t) du - \int_0^\infty \beta(v, u) n(v, t) n(u, t) du \quad (37)$$

1.3.3. Kernel de coalescencia

El establecimiento del kernel de coalescencia para los procesos de aglomeración aún se encuentra en investigación. Un solo kernel que unifique todas las teorías y considere todos los factores gobernantes y su relación todavía no existe. La determinación del kernel adecuado sigue siendo un problema difícil en la simulación del proceso de aglomeración. Los resultados experimentales descritos en la literatura varían ampliamente, a veces los regímenes de crecimiento son contradictorios y muchos regímenes de crecimiento existen. Las observaciones experimentales son con frecuencia únicas para una determinada clase de materiales y procesos.

Una compleja relación existe entre la distribución de tamaños de partícula inicial, propiedades del gránulo, geometría del aparato, condiciones de operación, y procesos de aglomeración, lo que conduce a la propuesta de una variedad de modelos de coalescencia y regímenes de crecimiento (Adetayo and Ennis, 2000). Esto tiene dos consecuencias: el desarrollo de una variedad de diferentes kernels, y los enfoques actuales para el desarrollo del kernel tienden a recomendar diferentes kernels para los diferentes sistemas de aglomeración y/o materiales. El desarrollo del kernel inicia con la propuesta de un kernel empírico el cual considera el tamaño del gránulo como propiedad distribuida gobernando el crecimiento del gránulo. Tal kernel contiene parámetros ajustados, y su valor numérico es extraído a través del ajuste de datos. La comprensión adquirida en el marco del proceso mediante este kernel no es suficiente y el valor extraído no puede ser transferible a otro dispositivo experimental. La selección del kernel empírico que ofrece el mejor ajuste es a través del planteamiento de ensayo y error.

Además de todas sus desventajas como lo discuten Wang and Cameron (2002), estos kernels de coalescencia empíricos han tenido un papel histórico importante en el estudio de los BP y para muchos procesos de aglomeración, un kernel de coalescencia seleccionado apropiadamente puede proveer un nivel aceptable de predicción del modelo. Los modelos basados en la física son muy demandados por la industria de la aglomeración así como en la investigación y desarrollo.

Si el kernel de coalescencia está basado en un modelo de coalescencia físico, idealmente la EBP debe permitir la predicción de DTP sin necesidad de ajustar parámetros a partir de datos experimentales de aglomeración. A pesar de que varios kernels propuestos recientemente tienen una base teórica, la necesidad de incluir constantes empíricas y ajustables puede permanecer en tales kernels. Esto puede ser atribuido al limitado conocimiento de la influencia de los parámetros del proceso y propiedades del material. Los kernels de coalescencia basados en modelos teóricos deben ser más fundamentales que aquellos kernels empíricos, porque las propiedades físicas del kernel, propiedades del agente ligante, así como también las velocidades de colisión de los gránulos son incluidos en los modelos teóricos (Liu and Litster, 2002).

La clave para la aplicación exitosa de estos modelos es correlacionar los parámetros del modelo a los parámetros del proceso y del material. De tal forma, existe aún dificultad en la aplicación de los modelos de coalescencia teóricos. La limitada aplicación de los modelos de coalescencia teóricos puede ser atribuida a dos factores (Liu and Litster, 2002): primeramente, la mayor parte de los modelos están basados en los procesos de colisión de dos gránulos aislados. En los modelos de coalescencia, el par de partículas deben actuar independientemente del resto de la fase dispersa. Esto es una limitación de tales modelos (Wright and Ramkrishna, 1992). En un granulador en el cual muchos gránulos interactúan unos con otros, los modelos teóricos basados en colisiones co-lineales binarias puede no ser aplicable (Liu, and Litster, 2002). Por otra parte, pocos modelos consideran colisiones angulares (Iveson, 2002). En segundo lugar, existe todavía un conocimiento muy limitado sobre la distribución de velocidades gránulo-colisión y frecuencia de colisión en diferentes tipos de granuladores. En consecuencia, empleando un kernel o una combinación de kernels que provean el mejor ajuste a los datos experimentales es aún un método muy común (Liu and Litster, 2002; Wauters et al., 2003).

1.3.3.1. Modelo del kernel de coalescencia

El kernel de coalescencia es tradicionalmente dividido en dos partes (Sastry, 1975):

$$\beta(u, v, t) = \beta_0(t) \beta^*(u, v) \quad (38)$$

donde $\beta_0(t)$ es el término de la tasa de agregación y $\beta^*(u,v)$ describe la dependencia del kernel de coalescencia sobre los tamaños de los gránulos. El término de la tasa de agregación $\beta_0(t)$ es independiente del tamaño e incluye varios parámetros del sistema tales como: geometría del granulador, condiciones de operación, y propiedades de la formulación: viscosidad del agente aglomerante, humectabilidad y contenido de humedad (Kapur, et al., 1969). Se asume que ésta tasa de agregación permanece constante durante el transcurso del experimento (Iveson, 2002). El segundo término, $\beta^*(u,v)$ expresa la influencia del tamaño del gránulo sobre la frecuencia de colisión, donde la suposición de que cada colisión provoca la coalescencia. En algunos kernels $\beta^*(u,v)$ expresa la dependencia del tamaño de la probabilidad de coalescencia

1.3.3.2. Kernel basado en la teoría de flujo granular

Fuerstenau. (1970) dividió los procesos de agregación en dos clases básicas, “agregación libre en el espacio” y “agregación restringido en el espacio”. La propiedad de distinción entre los dos tipos de agregación es la concentración numérica (baja o alta) de partículas en una unidad de volumen. Cuando la concentración numérica es baja, cada una de las partículas puede colisionar con otra partícula en la unidad de volumen. Mientras que cuando la densidad numérica es alta, el movimiento de una partícula es restringido y esta solo puede encontrar las partículas que están a su alrededor. Para la agregación en un sistema diluido, la tasa de colisión es proporcional al producto de las concentraciones numéricas de las dos especies:

$$[colisiones]_{i,j} \propto n_i(t) n_j(t) \quad (39)$$

Kapur and Fuerstenau. (2002) postularon que la concentración de aglomerados en un lecho de aglomeración poco compactado es más o menos fija. En esta ésta situación, el movimiento de un aglomerado se encuentra restringido. Este aglomerado probablemente se encuentre y coalesca con su

más cercano vecino, el cual forma una caja alrededor de él. De esta forma, la aglomeración ocurre bajo un ambiente restringido en el espacio. Para un sistema restringido en el espacio, el número de colisiones aleatorias entre partículas pertenecientes a cualquiera de dos grupos de tamaños, i y j , bajo la restricción de mezclado perfecto es proporcional al producto del número de especies de un tipo con la fracción numérica del segundo tipo

$$[colisiones]_{i,j} \propto n_i(t) \frac{n_j(t)}{N_{tot}(t)} \quad (40)$$

En la derivación de la ecuación (40) [Kapur and Fuerstenau. \(2002\)](#) argumentaron que en un lecho mezclado al azar en el cual el rango de tamaños no es muy grande, la frecuencia de colisión será aproximadamente la misma para todos los gránulos presentes. La normalización por $N_{tot}(t)$ significa que la población es promediada sobre una región un número de partículas, esta puede ser sobre todo el granulador pero también aplica a una región separada (para más información dirigirse al capítulo 24 de Handbook Granulation, [Salman et al., 2007](#)).

Con el fin de describir la tasa de colisión en un lecho fluidizado ([Goldschmidt, 2004](#)) desarrollo un factor de proporcionalidad, una tasa constante de colisión, $C_{i,j}$ el cual se introduce en la ecuación anterior

$$C_{i,j} = \pi d_{i,j}^3 g_{i,j} \left[\frac{4}{d_{i,j}} \left(\frac{\Theta_s}{\pi} \frac{m_i + m_j}{2m_i m_j} \right)^{1/2} - \frac{2}{3} (\nabla \bar{u}) \right] \quad (41)$$

donde $d_{i,j}$ es la distancia inter-partícula entre dos partículas en la colisión, $g_{i,j}$ es una función de distribución radial para la mezcla, Θ_s es la temperatura granular de la mezcla, m_i y m_j son las masas de las partículas, y \bar{u} es la velocidad de partícula promedio (para más información dirigirse al capítulo 24 de Handbook Granulation, [Salman et al., 2007](#)).

[Tan et al. \(2004\)](#) investigaron la granulación por fusión en un lecho fluidizado. Empleando un modelado por elemento discreto pudieron mostrar como primer paso que la distribución de velocidades de partícula en un lecho fluidizado está acorde con la teoría de flujo granular. Esta teoría describe el movimiento medio y fluctuante aleatorio de las partículas dentro de un medio granular continuo. Ellos

derivaron un kernel de coalescencia basado en ésta teoría de flujo granular. Éste kernel representa la frecuencia de colisión acorde a la ecuación (40). Ellos extrajeron a partir de la frecuencia de colisión un término dependiente del tamaño dado por la Ecuación (42)

$$\beta^*(l_i, l_j) = (l_i + l_j)^2 \sqrt{\frac{1}{l_i^3} + \frac{1}{l_j^3}} \quad (42)$$

este término es incluido en un kernel propuesto por [Hounslow et al. \(1998\)](#), llamado kernel de energía de equipartición-cinética, el cual está dado por la ecuación (43):

$$\beta(l_i, l_j, t) = \beta_0(t) \cdot (l_i + l_j)^2 \sqrt{\frac{1}{l_i^3} + \frac{1}{l_j^3}} \quad (43)$$

En el desarrollo del kernel de energía de equipartición-cinética, la tasa de colisión se consideró proporcional a la sección transversal de colisión y al promedio relativo de las velocidades de los gránulos. Como resultado del estudio de turbulencia, la velocidad de un gránulo, $V(t)$, en un dispositivo se consideró como la suma de las velocidades promedio \bar{V} , y un componente aleatorio $V'(t)$ de acuerdo a la ecuación (44)

$$[colisiones]_{i,j} \propto (l_i + l_j)^2 \cdot |\bar{V}_i - \bar{V}_j| \quad (44)$$

Con el supuesto de $V'(t)$ es inversamente proporcional a un volumen de los gránulos. El kernel asume una distribución equitativa de las energías cinéticas de las partículas favoreciendo la colisión entre partículas grandes y pequeñas. La eficiencia de agregación se considera independiente del tamaño en el kernel, sin embargo, una dependencia del tamaño no debe ser despreciada (para más información dirigirse al capítulo 24 de Handbook Granulation, [Salman et al., 2007](#)).

1.3.4. Forma discretizada de la ecuación de balance de población

Debido a la presencia de las integrales de formación y desaparición de partículas (Eqs. 31 y 32) convierte a la EBP en una ecuación integro-diferencial parcial cuya solución analítica considerando

todas las contribuciones a la tasa de variación del número de partículas no es posible, por lo que deben emplearse aproximaciones numéricas, es decir, discretizar el dominio en intervalos. El resultado obtenido está referido como una ecuación de balance de población discretizado (EBPD) que se resuelve reemplazando las integrales por sumatorias (Hounslow et al., 1988; Tan et al., 2006). El modelo discretizado varía dependiendo de la forma de discretización: lineal, arbitraria, geométrica (Hounslow et al., 1988). Esta clase de modelos considera normalmente expresiones cinéticas para cada uno de los procesos de aglomeración involucrados.

La forma discreta de la ecuación (34) es:

$$\frac{dn_i}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} \beta_{(i-j,j)} n_{i-j} n_j - n_i \sum_{j=1}^{\infty} \beta_{(i,j)} n_j \quad (45)$$

Aunque una sola ecuación es dada, la ecuación de balance de población aproximada hace uso de una serie de EBPD, una para cada intervalo, en la cual la DTP es dividida. Fundamentalmente, la DTP completa es dividida en pequeños intervalos, y la EBPD sigue la evolución del crecimiento de las partículas debido a la agregación, siguiendo el cálculo del número de partículas existentes en cada intervalo de tamaño en cada momento (las ecuaciones 31 y 32 son referidas conjuntamente en la literatura como las ecuaciones de Smoluchowski). Los intervalos de tamaño, i, j , son especificados como una progresión lineal basada en el volumen, tal que $v_i = iv_1$, donde v_1 es el volumen de una partícula individual de la distribución inicial (clase de tamaño 1).

Hounslow et al. (1988) propusieron la primera ecuación de balance de población usada para la aglomeración:

$$r_a = \left(\frac{dn_i}{dt} \right) = n_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} n_j + \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} n_{i-1}^2 - n_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-1} \beta_{i,j} n_j - n_i \sum_{j=1}^{neq} \beta_{i,j} n_j \quad (46)$$

donde n_j representa el número de partículas de tamaño j , dn_i/dt es el cambio del número de partículas de tamaño i como una función del tiempo y $\beta_{i,j}$ es el kernel de coalescencia para dos intervalos de diámetro discretizados. La EBPD obtenida por Hounslow et al., (1988) considera dos expresiones separadas para el proceso de nacimiento en el intervalo de clase i -ésimo, así como, dos expresiones

separadas para el proceso de muerte (Tabla 1.2). Por lo tanto, la EBPD (46) consiste de cuatro términos para la agregación, considerando cuatro tipos de interacciones que cambian el número de partículas en el intervalo i -ésimo. Esto se logra considerando la agregación de partículas en las fracciones del rango de tamaño que cambian el número de partículas en la sección de i -ésimo

Tabla 1.2. Tipos de interacción binaria para la agregación

Términos en la ecuación (46)	Nacimiento y muerte en el intervalo i		Colisión entre partículas en el intervalo	
	1	Nacimiento	$i-1$	$1 \rightarrow i-2$
2	Nacimiento	$i-1$	$i-1$	
3	Muerte	i	$1 \rightarrow i-1$	
4	Muerte	i	$i \rightarrow \infty$	

Términos discretizados para extender la Ecuación (46) para nucleación y crecimiento han sido descritas también por [Hounslow et al. \(1988\)](#). Las expresiones para las tasas de nucleación y crecimiento son dadas por las ecuaciones (47) y (48) respectivamente:

$$r_n = \left(\frac{dn_i}{dt} \right)_{Nucleation} = \beta_{nuc} \delta(r_i) \quad (47)$$

$$r_g = \left(\frac{dn_i}{dt} \right)_{Crecimiento} = \beta_{crec} \left(\frac{n_{i-1}}{r_i - r_{i+1}} + n_i - \frac{n_i}{r_{i+1} - r_i} \right) \quad (48)$$

En una aplicación de la Ecuación 46 se tiene que resolver tantas veces como el número de intervalos hay en la división de DTP. Este se extiende desde el intervalo más pequeño de la partícula, hasta el mayor volumen esperado para un gránulo. Particularmente, para un granulador de lecho fluidizado, el BP se ha utilizado para determinar cuantitativamente la cantidad y distribución de tamaños de partículas en función del tiempo, considerando tanto la nucleación y la coalescencia. La elección del kernel de coalescencia puede afectar drásticamente la tasa de coalescencia y es una función del tiempo y del volumen de las partículas colisionantes. No existe una justificación de cual kernel es el adecuado para un sistema de aglomeración dado ya que, normalmente son relaciones empíricas o teóricas que sólo son capaces de describir el sistema en donde se evaluaron ([Fature et al., 2001](#) y [Cryer, 1999](#)).

Capítulo 2

Antecedentes, estado del arte y objetivos

2.1. Antecedentes

La aglomeración (también conocida como aglomeración) tiene aplicaciones en diversas industrias tales como: agricultura, alimenticia, farmacéutica, detergentes, química, entre otros. Éste proceso es empleado en el procesamiento de partículas sólidas (sólidos iniciales) con la intención de manipular convenientemente su tamaño (aglomerado), mejorando así, características físicas como: fluidez, segregación, solubilidad, dispersabilidad entre otros (Nienow and Rowe, 1985; Iveson et al., 2001). Entre los equipos empleados para incrementar el tamaño de sólidos iniciales se tienen: *lechos fluidizados*, prensa tableteadora, pistón, extrusión, rodillo, mezclador, tambor y disco; donde la obtención del aglomerado depende de las variables operacionales asociadas a cada equipo.

El proceso de granulación bajo el contexto de aglomeración húmeda, puede considerarse como una combinación del diseño del proceso, pues depende de: tipo de granulador y variables de operación asociadas al equipo, y del diseño de la formulación: naturaleza del polvo y las propiedades del medio aglomerante (Iveson et al., 2001; Obraniak, and Gluba, 2012). Particularmente hablando, el granulador de lecho fluidizado es un dispositivo empleado para conseguir el incremento de los sólidos iniciales. El incremento en el tamaño se consigue poniendo en contacto un lecho de sólidos fluidizados (con una distribución de tamaños inicial) que son humedecidos por un líquido que se atomiza sobre ellos. Los sólidos una vez humedecidos, chocan entre sí debido a la intensidad de mezclado inducido por la alimentación de un medio fluidizante, y éstos se mantienen unidos por la formación de puentes líquidos (agregado inicial), los cuales se establecen por la acción combinada de fenómenos de capilaridad y tensión superficial. Posteriormente, estos puentes líquidos se transforman a puentes sólidos permanentes debido al proceso de evaporación, promoviendo la consolidación y el crecimiento del aglomerado.

El comportamiento de los lechos fluidizados es afectado por la velocidad del medio fluidizante, U_g , con un incremento de ésta, se desarrollan inestabilidades en el sistema en la forma de burbujas. Normalmente, los lechos fluidizados son operados a velocidades mayores de la velocidad mínima de fluidización, U_{mf} , y bajo estas circunstancias es común que las partículas sean lanzadas del lecho a un espacio encima de éste conocido como espacio-libre (Kunii y Levenspiel, 1990). Si la velocidad del gas fluidizante incrementa y llega a ser tan alta que sobrepase la velocidad de caída-terminal de las partículas del lecho, U_t , entonces estas serán “elutriadas” es decir, transportadas fuera del sistema.

El proceso de aglomeración es complejo, ya que se llevan a cabo en el mismo sistema procesos simultáneos de mezclado, secado y humectación, por consiguiente, las diferentes variables operacionales se afectan una con otra y por lo tanto es difícil determinar su influencia independientemente sobre el proceso de aglomeración (Cryer and Scherer, 2003). De esta forma, es importante controlar dichos parámetros operacionales dado que una mala relación entre estos parámetros traería problemas en la operación del granulador, entre los cuales tenemos (Cryer and Scherer, 2003):

- La defluidización del sistema debido a una alta tasa de alimentación del medio aglomerante y una baja velocidad de fluidización.
- Arrastre excesivo tanto de sólidos como del medio aglomerante atomizado debido a una alta velocidad de fluidización, lo cual se ve reflejado en un escaso o nulo crecimiento de las partículas. Así mismo, es recomendable recuperar la fracción elutriada ya que se puede tratar de material valioso, además, el proceso de aglomeración se ve influenciado por la distribución de tamaños de sólido, ya que, una población de sólidos que contienen tanto sólidos muy pequeños como sólidos grandes, favorecen la coalescencia entre ellos (Lister and Waters, 1988, 1990).
- Una elevada temperatura provocaría una mayor evaporación del medio aglomerante, lo cual trae como consecuencia, un escaso crecimiento del aglomerado.

La planeación, realización de experimentos y el análisis estadístico de los resultados obtenidos, permite determinar cualitativamente el efecto de los parámetros operacionales del proceso sobre el crecimiento del aglomerado (Montgomery, 2007) así como del comportamiento del sistema evitando los problemas antes descritos.

El proceso de aglomeración en lechos fluidizados comprende el contacto directo de una fase dispersa (la cual está constituido por un gran número de partículas sólidas y líquidas de diferentes tamaños) inmerso en una fase fluida. En estos sistemas, los sólidos se distribuyen debido a procesos de agregación, nucleación, crecimiento, rompimiento y cizallamiento, los cuales producen cambios en el número de partículas sólidas de un tamaño en función del tiempo.

El uso de una Ecuación de Balance de Población (EBP) (Hulbert et al., 1964; Tan et al., 2005; Soos et al., 2006; Poon et al., 2008, 2009; Liu et al., 2011; Ramachandran, and Barton, 2010), permite tratar de manera fundamental procesos que involucran fenómenos de nacimiento y muerte de partículas en un determinado volumen de control (VC). El modelado de los balances de población (Ramkrishna, 2000) para lechos fluidizados puede ser acoplado con el diseño de experimento y de esta manera entender el comportamiento de la aglomeración de sólidos húmedos dentro de un lecho fluidizado.

2.2. Estado del arte

El proceso de aglomeración bajo el contexto de aglomeración húmeda, ha sido ampliamente estudiado y analizado por diversas décadas. El diseño y análisis de tales sistemas permanece enraizado en el empirismo, debido a que no hay una metodología para el diseño y operación de tales procesos. Aún, hay aspectos relacionados con la interacción existente entre los distintos parámetros operacionales y su influencia sobre el comportamiento de crecimiento de los sólidos iniciales. El control de los procesos de aglomeración es difícil, debido a la presencia de procesos de humectación, mezclado y secado; los cuales toman lugar simultáneamente en el sistema (Lister, 2003; Cryer and Scherer, 2003; Lister and Waters, 1988, 1990; Flore et al., 2008; Schubert, 1987; Ennis, 1996). Así mismo, plantas industriales han enfrentado una serie de problemas incluyendo: razones de reciclado, pobre control en la calidad del producto obtenido siendo necesario el reprocesado del producto, incrementando el costo de producción. Sin embargo, es necesario un control adecuado para obtener aglomerados con un tamaño aceptable, evitando así la necesidad de reciclar el producto aglomerado. Estos problemas tienen origen en el escaso entendimiento de la influencia de los parámetros operacionales sobre el proceso de aglomeración (Iveson et al., 2001). Es pertinente mencionar, que aunque los procesos considerados en los diferentes tipos de aglomeración son similares, las variables del proceso y la naturaleza de la formulación afectan de manera diferente al proceso.

En el aglomerador de lecho fluidizado, el crecimiento por aglomeración se da en la medida que suceden sucesivamente: el mojado y nucleación, consolidación-crecimiento y cizallamiento y rompimiento (Lister and Ennis, 2004). Estos procesos están influenciados por la relación existente entre los parámetros operacionales asociados al sistema. Entre los parámetros se encuentran: la temperatura de alimentación del gas, masa inicial de sólidos finos, tiempo de atomización del agente aglomerante, velocidad de fluidización, localización de la boquilla con respecto al lecho de sólidos, tamaño de gota así como las propiedades del agente aglomerante (Schaafsma et al., 2006) entre otros. Así mismo, es importante considerar algunas de las características inherentes de estos sistemas que en un momento dado pueden influir en el comportamiento de crecimiento del aglomerado así como en los procesos existentes en el sistema, tales como: la presencia de burbujas en el seno del lecho (Kunii and Levenspiel, 1990), elutriación de los sólidos finos por la corriente de gas (transporte neumático de las partículas de menor tamaño presentes en el lecho por la corriente de aire), población de sólidos polidispersa (Schaafsma et al., 2006), el cizallamiento en los sólidos aglomerados debido al

movimiento intenso al que son sometidos debido a los esfuerzos de contacto y esfuerzos debido a la energía del fluido (Ayazi et al., 1990) además, de considerar la posibilidad de que se acumule un exceso de agente aglomerante que conduzca a que se presente el fenómeno de apagado del lecho, es decir, que ocurra la defluidización del sistema (Nienow and Rowe, 1985; Kunii and Levenspiel, 1990).

Como puede visualizarse, existe un grupo muy amplio de parámetros operacionales que inciden en el comportamiento del proceso de aglomeración. Sin embargo, la investigación y análisis de este tipo de proceso se centra en los parámetros que se pueden controlar de manera adecuada, pues los equipos empleados para tal investigación, son de tipo escala piloto o banco, los cuales son diseñados y contruidos para manipular un número reducido de parámetros.

El aglomerador de lecho fluidizado se puede visualizar como un sistema que presenta dos zonas: (1) la zona de atomización, que es el área donde el líquido aglomerante tiene el primer contacto con las partículas fluidizadas, teniendo lugar el proceso de nucleación (Kumar et al., 1997), que depende principalmente del tamaño relativo entre la partícula sólida y la gota de líquido atomizada (Waldie, 1991); y (2) la zona de dispersión, que es el área donde se mezclan los núcleos iniciales, el líquido aglomerante y sólidos del lecho debido a la agitación provocada por la velocidad con la que entra el aire caliente al sistema, siendo en ésta zona donde se presentan los procesos de crecimiento, agregación y rompimiento (Ayazi et al., 1990; Kumar et al., 1997; Schaafsma et al., 2000; Tan et al., 2005). Como se mencionó anteriormente, la elutriación de sólidos es característica de estos sistemas. Sin embargo, es particularmente conveniente si esta población de sólidos finos abandona el lecho, estos sean recolectados, pues puede resultar en pérdidas de material valioso, así mismo, pueden influir en el crecimiento del aglomerado, así como en los procesos de aglomeración (Pell, 1990).

Diversos autores han empleado la humedad en el lecho, velocidad y temperatura del medio fluidizante como parámetros de control del proceso (Watano et al., 1995; Schaafsma and Kossen, 1998, 2006). Éstos parámetros se relacionan con la concentración del líquido en el lecho de sólidos, donde ésta determina la adhesión entre las partículas (núcleo inicial), mientras que la velocidad y temperatura del fluido determinan la renovación de la superficie y dispersión del líquido en el lecho, así como la consolidación del agregado debido al calentamiento de las partículas y a la evaporación de la fase líquida respectivamente; siendo estos parámetros influyentes en el comportamiento de crecimiento del aglomerado. Así mismo, en la aglomeración de sólidos, frecuentemente es deseable una distribución de tamaños estrecha (Lister and Waters, 1988,1990; Schaafsma et al., 2006, Štěpánek et al.2009) dado

que una distribución amplia de tamaños de partícula causa segregación en la población de sólidos, guiando a inhomogeneidades, por ejemplo: en la composición química o concentración de ingredientes activos.

Si bien, diversos sistemas de aglomeración en lecho fluidizado han sido estudiados ampliamente, actualmente no se ha evidenciado satisfactoriamente el efecto e interrelación de los distintos parámetros de operación que influyen en el comportamiento de crecimiento de los aglomerados de una determinada población de partículas, por ejemplo:

[Cryer and Scherer. \(2003\)](#) implementaron un diseño factorial fraccional a $\frac{1}{2}$ en un aglomerador cónico, para evidenciar la influencia de ciertos parámetros importantes relacionados con la aglomeración de un producto agroquímico (Flumetsulam) cuya distribución inicial comprendía tamaños entre 0.1 a 100 micrones y cuyo diámetro promedio inicial era de 20 micrones. El agente aglomerante empleado fue agua destilada.

Los parámetros operacionales analizados fueron: flujo de aire ($0.106-0.153 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), temperatura de alimentación del aire ($40-60^\circ\text{C}$), tasa de atomización del agente aglomerante ($3.70 \times 10^{-3}-5.42 \times 10^{-3} \text{ kg s}^{-1}$), carga de sólidos inicial (25-35kg) y altura de la boquilla de atomización (posiciones 1 y 3). A partir del análisis estadístico (el cual se realizó con un nivel de significancia de 99%) se evidenció la significancia de los factores bajo estudio, siendo la tasa de atomización y carga de sólidos los de mayor efecto, mientras que la temperatura y flujo de aire resultaron marginalmente significativos en el crecimiento del aglomerado, mientras que la altura de la boquilla no influye en el crecimiento del aglomerado. Así mismo, cinco interacciones resultaron significativas (temperatura*tasa de atomización, temperatura*altura de la boquilla, temperatura*carga de sólidos, tasa de atomización*carga de sólidos, tasa de atomización *altura de la boquilla) siendo las interacciones de temperatura*tasa de atomización y tasa de atomización*altura de la boquilla las de mayor efecto.

[Decanal and Menegalli. \(2008\)](#) implementaron un diseño factorial fraccional 2^{4-1} en un aglomerador con geometría cónica, el cual contaba con un ciclón para limpiar el aire de los finos arrastrados, con el objetivo de evidenciar la significancia de ciertos parámetros operacionales que influyen en el proceso de crecimiento de aglomerados de sólidos de Acerola (Cerezo de las Antillas). La población inicial de los sólidos contaba con un diámetro promedio inicial de 95.4 micrones. El agente aglomerante empleado fue agua.

Los parámetros bajo estudio fueron: temperatura del aire fluidizante (75-90°C), velocidad del aire fluidizante (0.25-0.45 m·s⁻¹), flujo de aire de atomización (0.50-0.70 l·h⁻¹) y altura de la boquilla con respecto al lecho (0.50-0.70 m). El análisis estadístico (realizado con un nivel de significancia del 95%) evidenció la influencia de solo la velocidad del aire sobre el crecimiento del aglomerado. Sin embargo, los autores expresan que la temperatura del aire debe afectar el crecimiento del aglomerado pero los niveles ensayados no fueron los adecuados. Cabe resaltar que la altura de la boquilla y flujo de aire en la boquilla no resultaron significativos, es decir, no influyeron en el crecimiento del aglomerado.

Ríos. (2005) implementó un diseño factorial 2³ en un aglomerador de lecho fluidizado cónico para aglomerar sólidos de Tamarindo con un diámetro promedio de 78.4 micrones. Los factores controlables fueron: temperatura del aire fluidizante (80-100°C), tiempo de atomización (3-5 min) y masa de sólidos cargados al sistema (200-300g). El agente aglomerante empleado fue agua destilada. El análisis estadístico (realizado con un nivel de significancia del 95%) determinó que el tiempo de atomización del agente aglomerante fue el principal parámetro que afecta el crecimiento del aglomerado, mientras que la temperatura y carga de sólidos no afectan el crecimiento del aglomerado. Cabe resaltar, que se probaron los niveles de significancia de 90% y 75% con el objetivo de probar los posibles efectos de los parámetros que no resultaran significativos a un nivel del 95%. El resultado obtenido a un nivel de significancia del 90% determinó que el tiempo de atomización, así como la temperatura del aire resultaron significativos, es decir afectan en el crecimiento del aglomerado. Así mismo, se determinó que a un nivel de significancia del 75% los parámetros: tiempo de atomización, temperatura, carga de sólidos así como la interacción entre la temperatura y carga de sólidos afectan el crecimiento del aglomerado. El análisis realizado a estos niveles de significancia (75% y 90%) se evaluaron para futuros trabajos relacionados con la aglomeración de sólidos de Tamarindo.

Tan et al. (2006) estudiaron la influencia de algunos parámetros operacionales responsables del crecimiento del aglomerado empleando como sólido de trabajo Glass Ballotini cuya distribución de tamaños estaba comprendida entre 73-375 micrómetros. El agente aglomerante empleado fue Polyentilen Glycol. Los parámetros operacionales analizados fueron: tasa de atomización del agente aglomerante (2.88 m³·s⁻¹), temperatura en el lecho de sólidos (28, 32, 36 y 40°C), presión de atomización (1.5 bar) y velocidad del aire fluidizante (0.97 m·s⁻¹). Los resultados indicaron que el crecimiento del aglomerado depende directamente de la cantidad relativa del agente aglomerante atomizado sobre el lecho, el cual determina la velocidad del proceso de agregación. Así mismo, el crecimiento del aglomerado se ve favorecido con el incremento en los niveles de temperatura. Con

referencia al tamaño de gota del agente aglomerante atomizado, concluyeron que una gota de mayor tamaño incrementa el crecimiento global del aglomerado, mientras que una gota de menor tamaño induce a un crecimiento inicial más rápido. Finalmente, el crecimiento global del aglomerado se reduce al incrementar la velocidad del aire.

Como puede observarse, las conclusiones obtenidas en este estudio no decretan de manera efectiva la influencia de algunos parámetros, por ejemplo: considero que los niveles ensayados de temperatura son bajos y el intervalo es cerrado (4 unidades), lo adecuado es que los intervalos sean más amplios. Por este motivo no pueden concluir de manera efectiva.

[Schaafsma and Kossen. \(1999\)](#) estudiaron la influencia de alimentar el líquido aglomerante atomizado por pulsos y temperatura del medio fluidizante (40 y 60°C) sobre el crecimiento del aglomerado. El aglomerador empleado tenía una geometría cónica y contaba con un ciclón para limpiar el aire de los finos arrastrados por éste. Se emplearon sólidos de α -lactosa monohidratada malla No. 110 y como líquido aglomerante polyvinylpirrolidona al 8%. Los resultados obtenidos indicaron que el crecimiento del aglomerado se ve influenciado por la humedad presente en el lecho, mientras que encontraron diferentes efectos de la temperatura del medio fluidizante sobre el crecimiento del aglomerado: a baja temperatura 40°C, el gránulo crece a su tamaño final más rápido que a 60°C.

En este trabajo de aglomeración se empleó una masa de sólidos monodispersa, lo cual no favorece la aglomeración de sólidos. Investigadores como: [Lister and Waters, 1988, 1990](#); [Parveen et al. 2012](#), han establecido que el proceso de aglomeración se ve influenciado por la distribución de tamaños de los sólidos, pues la polidispersidad de la población de sólidos induce al recubrimiento o adhesión de las partículas pequeñas sobre las de mayor tamaño. Así mismo, existe una posible influencia combinada entre el parámetro temperatura (cuyos niveles de estudio son adecuados para averiguar la influencia de éste parámetro sobre el comportamiento de crecimiento del aglomerado) y la polidispersidad de los sólidos.

[Schaafsma et al. \(1998\)](#) propusieron en su trabajo de investigación relacionado con la aglomeración de sólidos, un proceso de crecimiento de un aglomerado originado a partir de una gota de líquido. En su propuesta, describen el crecimiento del aglomerado a partir de dos etapas. Inicialmente, se presenta un rápido crecimiento que toma lugar por el mojado de las partículas, lo cual resulta en la formación de un aglomerado inicial. La segunda etapa de crecimiento es iniciado por el transporte de líquido del

aglomerado hacia las partículas que lo rodea. El crecimiento del aglomerado toma lugar por la unión de partículas. Si un poro en la superficie de un aglomerado está saturado con líquido, entonces partículas libres pueden alcanzar la fase líquida en el poro y un puente líquido puede ser formado. Acorde a este proceso, se puede concluir que la distribución de tamaños de partículas y porosidad juega un papel importante en el tamaño final del aglomerado. Una amplia distribución de tamaños de partículas iniciales resulta en un aglomerado de mayor tamaño dado que las partículas pequeñas se fijan dentro de los espacios formados entre las partículas y actúan como un puente para mojar la fase sólida. Este modelo de crecimiento de aglomerado considerando la polidispersidad de la población de sólidos inicial se consideró como modelo de crecimiento para aplicarlo en un granulador de lecho fluidizado.

Actualmente, no se ha analizado el efecto de la polidispersidad de la población inicial de sólidos sobre el crecimiento del aglomerado en lechos fluidizados. Así mismo, en investigaciones relacionadas con la aglomeración en lechos fluidizados trabajan con poblaciones de sólidos iniciales monodispersas. Una población de sólidos con una distribución de tamaños inicial polidispersa contiene tanto sólidos pequeños y grandes que favorecen la coalescencia entre ellas por el proceso de capas o adhesión de las partículas finas sobre las partículas de mayor tamaño como es sugerido por [Lister and Waters. \(1988, 1990\)](#); [Tardos et al. \(1997\)](#). Sin embargo, el efecto de la polidispersidad de tamaños inicial sobre el proceso de aglomeración húmeda no se ha estudiado lo suficiente como para extenderla a la comprensión del efecto de esta sobre la aglomeración de sólidos ([Realpe and Velásquez, 2008](#); [Štěpánek et al. 2009](#)).

Cabe mencionar, que durante la revisión de la literatura especializada, se detectó, que en los procesos de aglomeración realizados por diferentes investigadores se emplearon partículas finas de un solo tamaño; [Schaafsma and Kossen. \(1999\)](#), emplearon partículas de 110 micrones, [Tan et al. \(2006\)](#), una amplia distribución de tamaño 75-375 μm . Una amplia distribución de tamaño de partícula promueve un mayor crecimiento del gránulo.

Por tales motivos, en este trabajo de investigación se estudiará el efecto que tiene el trabajar con una distribución de tamaños de partículas estrechas y probar que con una distribución de tamaños de partículas estrecha puede promover el crecimiento del aglomerado así como, obtener distribuciones de tamaños de aglomerados más uniformes. Así mismo, verificar la influencia del parámetro de la temperatura del aire sobre el comportamiento de crecimiento del aglomerado. Además se pretende

evidencia el efecto combinado (interacción) entre la temperatura y la polidispersidad de la población de sólidos y conseguido esto, sentar las bases para futuras investigaciones en torno a estos parámetros.

Para lograr esto, se implementó un diseño factorial completamente aleatorio (DFCA) con el objetivo de evidenciar el efecto de algunos parámetros operacionales seleccionados sobre el comportamiento de crecimiento del aglomerado, donde el diámetro promedio del aglomerado se seleccionó como variables respuesta. Los parámetros considerados así como sus respectivos niveles fueron: tiempo de atomización del líquido aglomerante (t_a) el cual varía dentro de tres niveles de estudio (20, 40 y 60 min); temperatura del aire de alimentación (T_0) con cuatro niveles de estudio (60, 70, 80 y 90°C); y recirculación de sólidos (R) con dos niveles de estudio (con recirculación, CR, y sin recirculación, SR). Con las observaciones correspondientes se aplicó un análisis de varianza (ANOVA) con un nivel de significancia, α , del 5% lo que permitió utilizando el software JMP-7 probar el efecto de los parámetros operacionales sobre el diámetro promedio del aglomerado.

Posterior al ANOVA aplicado al DFCA, en el cual resultó el tiempo de atomización el único factor significativo, se realizó una comparación de medias por medio de la prueba de Tucky (sección 4.2.1.4) para determinar en qué niveles se encuentra la mayor diferencia en cuanto al efecto provocado al variar los niveles de este factor en el diámetro promedio del aglomerado.

Realizando una revisión en revistas especializadas relacionadas con la aglomeración en lechos fluidizados se encontró que los niveles de temperatura bajo los cuales se realizan dichos procesos, se encuentran entre 40 y 60°C (ver sección 4.2.2). Por tanto, se toman como referencia estos niveles de temperatura para ensayarlos en éste trabajo de investigación.

Dado que el objetivo del presente trabajo es evidenciar el efecto de la polidispersidad de la población inicial de sólidos sobre el comportamiento de crecimiento, se mantiene los mismos niveles para éste parámetro.

Considerando que se mantienen los mismos factores de estudio pero sus niveles se redujeron a dos para el tiempo de atomización y temperatura del aire de fluidización, se puede implementar un nuevo diseño experimental (factorial 2^3) para probar los efectos de estos parámetros sobre el crecimiento del aglomerado.

Como segundo diseño experimental, se implementó un diseño factorial 2^3 en el cual, se mantuvieron los mismos parámetros operacionales empleados en el DFCA, pero éstos variaron en dos niveles para cada parámetro de estudio. Para el tiempo de atomización t_a (20 y 60 min); temperatura del medio fluidizante T_0 (40 y 60°C) y recirculación de sólidos R (con recirculación, CR, y sin recirculación, SR). Con las observaciones correspondientes se aplicó un análisis de varianza (ANOVA) con un nivel de significancia α , del 5%, utilizando el software JMP-7, para probar cualitativamente el efecto de T_0 , t_a y R en el diámetro promedio del aglomerado.

Diversos autores han propuesto y/o utilizado diferentes aproximaciones ingenieriles para entender y describir el comportamiento de un proceso de aglomeración. Un análisis estadístico de un diseño experimental permite determinar cualitativamente el efecto de un parámetro del proceso sobre el aglomerado, tomando como referencia el tamaño promedio de la población de partículas aglomeradas (Montgomery, 2007). Mientras que el uso de un balance de población (BP) (Tan et al., 2005; Soos et al., 2006; Poon et al., 2008, 2009; Liu et al., 2011), permite tratar de manera fundamental procesos que involucran fenómenos de nacimiento y muerte de partículas en un determinado volumen de control (VC) (Hulbert et al., 1964). Particularmente, para un granulador de lecho fluidizado, el BP se ha utilizado para determinar cuantitativamente la cantidad y distribución del tamaño de partículas en función del tiempo: considerando desde la nucleación hasta su coalescencia y, así, crecimiento y/o rompimiento. Esta clase de modelos considera normalmente expresiones cinéticas para cada uno de los procesos de aglomeración involucrados, siendo la elección de éstas el problema central, ya que normalmente son relaciones empíricas que sólo son capaces de describir el sistema en donde se evaluaron, de tal forma que en la actualidad no hay una justificación ni interpretación física aceptable sobre su uso (Cryer, 1999; Hounslow et al., 1988). Por consiguiente, el uso de un BP en la descripción de un granulador de lecho fluidizado ha tenido como objeto entender y determinar el efecto de los distintos parámetros asociados al granulador sobre los procesos de aglomeración (Tan et al., 2005), relacionando la magnitud de las constantes cinéticas con las observaciones utilizadas para su determinación (Kumar et al., 1997; Tan et al., 2005; Soos et al., 2006; Poon et al., 2008; Tourbin et al., 2008, Ramachandran, and Barton, 2010).

Con base a lo descrito anteriormente, se empleó una ecuación de Balance de Población discretizado (EBPD) para simular el comportamiento del sistema de aglomeración y así analizar y entender cuantitativamente el efecto de los parámetros de operación en los procesos de nucleación, crecimiento y agregación presentes en la aglomeración de las partículas orgánicas estudiadas.

2.3. Objetivos

2.3.1. Objetivo general

Analizar y evaluar el efecto de las variables de operación; temperatura del aire de alimentación, tiempo de atomización del medio aglomerante y recirculación de los sólidos arrastrados sobre el fenómeno de crecimiento de aglomerados en un sistema fluidizado sólido-gas.

2.3.2. Objetivos particulares

- Implementación de un diseño experimental que permita racionalizar el número de corridas experimentales además de analizar el efecto de las variables seleccionadas (temperatura del medio fluidizante, tiempo de alimentación del medio aglomerante, recirculación de sólidos) sobre el crecimiento de los aglomerados.
- Analizar el efecto de emplear una distribución de tamaño de partícula estrecha (mallas No. 80, 100 y 150) sobre el crecimiento del gránulo.
- Jerarquizar la importancia de los parámetros que afectan el crecimiento de los aglomerados por técnicas estadísticas
- Describir el comportamiento del sistema de aglomeración analizando los procesos de nucleación, crecimiento y agregación presentes en el sistema.

Capítulo 3

Metodología experimental

3.1. Materiales

En el programa experimental se empleó como materia prima sólidos de polvo de tamarindo obtenidos en un secador por atomización comercial; las propiedades del sólido se muestran en la Tabla 3.1 y éstas son las reportadas por el fabricante [Extractos y Aromáticos Botánicos, S.A. de C. V].

Tabla 3.1. Propiedades de los sólidos de tamarindo

Propiedad	Valor
Diámetro promedio de partícula (mm)	0.121
Densidad aparente (g/cm ³)	1.14
Humedad % (base seca)	2 – 4.5
Composición química: (promedio por 100)	Agua 4.0; proteína 3.3; grasa 1.0; azúcares 37.5; cenizas 4.5; pectina 5; celulosa 4.5; hidratos de carbono 40.0; calcio 0.007; magnesio 0.021, fósforo 0.079; cloro 0.009; azufre 0.010

El agente aglomerante utilizado en este estudio fue agua destilada cuyo flujo se ajustó para encontrar la condición que evitara la sobre humectación del lecho.

3.1.1. Análisis de tamaño de partícula

El tamaño promedio de los sólidos iniciales así como la de los aglomerados se determinó mediante un análisis de tamices. Se emplearon 6 mallas estándar cuyos tamaños de apertura se presentan en la Tabla 3.2. Éstas, se colocaron en forma descendente con respecto a la abertura de la malla. El producto aglomerado se coloca en el tamiz superior y son sacudidos por 5 minutos a una velocidad de 800 vibraciones por minuto empleando un vibrador de tamices.

Tabla 3.2. Tamaños de abertura de las mallas empleadas en el proceso de tamizado

No. de Malla	Abertura, (mm)
20	0.841
30	0.595
40	0.420
60	0.250
80	0.177
100	0.149
150	0.105
180	0.074
200	0.063

El diámetro promedio se calculó a través de la ecuación (49) donde se relaciona la fracción masa de agregados (x_i) retenida entre los tamices i e $i-1$, con el promedio aritmético de las aberturas correspondientes a ambos tamices (d_{pi}).

$$\bar{d}_p = \sum (x_i / d_{pi})^{-1} \quad (49)$$

3.1.2. Determinación experimental de la velocidad mínima de fluidización de las partículas de Tamarindo.

Se cargó a la cámara de fluidización una masa de 400 g de sólidos finos de pulpa de tamarindo con un diámetro promedio de 0.1215 mm, posteriormente se alimenta el medio fluidizante (aire) por el fondo del sistema tomando la lectura de la caída de presión en el distribuidor mediante un manómetro tipo U, esta operación se repitió hasta cubrir toda la escala del rotámetro y así obtener las caídas de presión correspondientes a cada flujo de aire. Debido a que la cámara de fluidización es de geometría cónica el área transversal al flujo se considera constante por lo cual se utilizó un diámetro promedio entre el diámetro superior (20 cm) y el diámetro inferior (10 cm) de la cámara de fluidización, y a partir de la gráfica de caída de presión contra flujo de aire se determina la velocidad mínima de fluidización.

3.2. Descripción del equipo experimental

El equipo experimental que se utilizó para obtener los aglomerados se muestra en la Figura 3.1. El granulador es una cámara cónica de acero inoxidable (6). El equipo consta de un distribuidor (14) el cual está compuesto de dos placas perforadas en medio del cual tiene una malla No. 400 para evitar que los sólidos muy finos presentes en la carga caigan a través de éste cuando el flujo de aire se interrumpa. El aire es alimentado mediante un compresor de servicio de laboratorio (1) y se hace pasar por un filtro con el fin de eliminar las impurezas que pudiera arrastrar consigo (2). Después de filtrado el aire pasa por un controlador de presión (3), y por un rotámetro de flujo alto (5). El flujo de aire principal se divide en dos corrientes al salir del rotámetro: una corriente de aire entra a la cámara de fluidización por la parte inferior del equipo (7) pero antes de entrar a la cámara, el aire pasa a través de un banco de 10 resistencias de 250 Watts (4) donde es calentado, el banco se encuentra conectado a un controlador de temperatura (16), y éste a su vez recibe la señal de un termopar (14) que se encuentra localizado debajo del distribuidor de flujo con el fin de proveer de la energía suficiente, y así satisfacer el requerimiento térmico del proceso.

La segunda corriente de aire va directamente al sistema de atomización, ésta se divide en dos partes: la primera pasa a través de una válvula solenoide (10) la cual permite el cierre y abertura de la aguja para controlar la alimentación de aire en la boquilla de atomización neumática de mezclado interno (7), la segunda presuriza el tanque de almacenamiento del líquido (8) con una capacidad de 5 litros. El flujo de líquido que sale del tanque presurizado converge junto con la corriente de aire proveniente de la válvula solenoide en la boquilla para atomizar el líquido sobre el lecho de sólidos fluidizados. Un ciclón de vidrio (9) es empleado para la captura de los sólidos. Estos se recirculan a la cámara de fluidización a través de un tubo de PVC el cual está conectado a una válvula de bola (15), ésta permanece cerrada o abierta según se permita la recirculación de los sólidos elutriados a la cámara de fluidización. Los sólidos son cargados al equipo a través del tubo (13). Así mismo, el producto es retirado a través de la compuerta (12) que se encuentra encima del distribuidor.

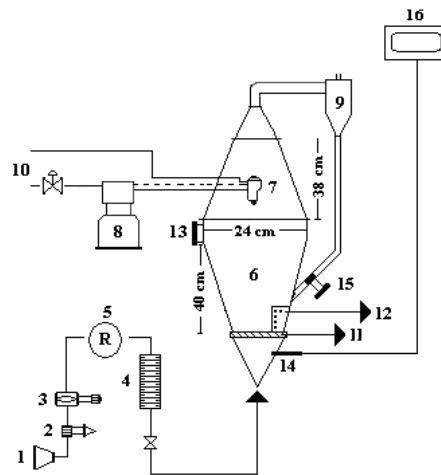


Figura 3.1. Diagrama del sistema experimental:

- (1) Compresor; (2) Filtro; (3) Regulador de presión; (4) Resistencias de calentamiento;
- (5) Rotámetros; (6) Aglomerador; (7) Boquilla neumática; (8) Tanque presurizado;
- (9) Ciclón con sistema de recirculación de sólidos; (10) Alimentación de aire;
- (11) Distribuidor metálico de placa perforada tipo sándwich; (12) Descarga de producto
- (13) Alimentación de sólidos; (14) Termopar; (15) Válvula de globo; (16) Controlador de temperatura

3.2.1. Sistema de atomización

En la Figura 3.2 se presenta el sistema completo de atomización el cual se compone de un tripie que sirve de soporte para el tanque de almacenamiento del líquido y la boquilla de mezclado interno. El tanque de almacenamiento tiene conectado una válvula solenoide que permite el cierre y abertura de la aguja de limpieza.

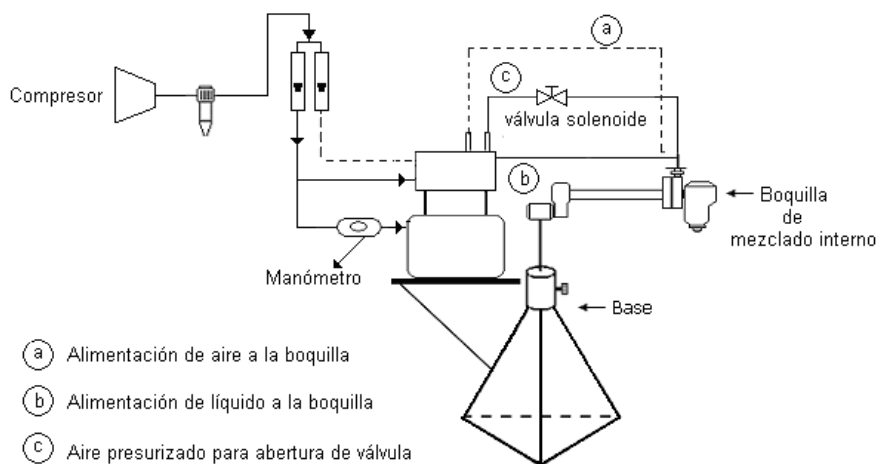


Figura 3.2. Diagrama del sistema de atomización

3.2.2. Boquilla atomizadora de aire

La boquilla de atomización neumática es del tipo 1/4J SU11 de mezcla interna. El líquido y el aire se mezclan internamente para producir una atomización (Figura 3.3c). La combinación de atomización comprende una boquilla para aire 3.3a y otra para líquido 3.3b.

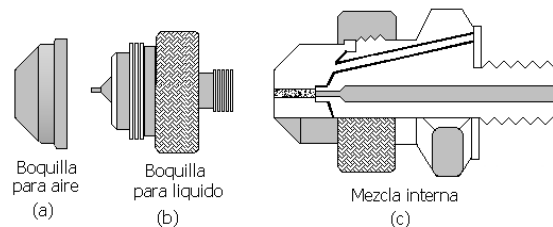


Figura 3.3. Boquilla de atomización interna

Cada combinación de atomización proporciona un modelo de atomización específico con una capacidad y cobertura de atomización específica. Cada combinación de atomización se puede ajustar por medio de cambios de presión de aire y de líquido para proporcionar una atomización de gotas finas o gotas gruesas. Básicamente, la obtención de gotas más finas se consigue por el aumento de la presión de aire y/o haciendo descender la presión del líquido dando como resultado un alto caudal de aire con respecto al caudal de líquido (catálogo 55, Productos de Atomización Industrial, Spraying Systems Co.). En la Tabla 3.3 se presentan las características de diseño de la boquilla de mezclado interno empleada.

Tabla 3.3. Característica de diseño de la boquilla

Boquilla de mezclado interno tipo 1/4J SU11		Dimensiones de atomización
Modelos de atomización;	Cono completo	
Ⓐ Ángulo de atomización (°)	15	<p>Modelo de aspersión</p> <p>Ⓐ Ángulo de aspersión Ⓑ Distancia de aspersión Ⓒ Distancia de aspersión</p>
Ⓑ Distancia de atomización (cm)	40	
Ⓒ Distancia de atomización (cm)	381	
Serie de baja capacidad (lt·hr ⁻¹)	1.012 a 272.52	
**Impacto por pulgada cuadrada (kgf/cm ²)	3.77e-6	
Tamaño de gota*, aproximado, (µm)	2.5	

**Para el modelo de atomización redonda, se mantiene el ángulo “A” en toda la distancia “B”. Más allá de “B” la atomización se vuelve turbulenta y se proyectará hasta la distancia “C”. Cabe resaltar que en cada atomización se presenta un impacto o fuerza de choque sobre la superficie objetivo. El valor de

impacto más útil con respecto al funcionamiento de atomización es el impacto por pulgada cuadrada. Básicamente este valor depende del modelo y del ángulo de atomización. Para conseguir el impacto por centímetro cuadrado de una boquilla dada, se determina primero el impacto total teórico, usando la fórmula:

$$\text{impacto total teórico con aspersión de agua (libras - fuerza)} = 0.0526 * (\text{gpm a la presión de aspersión}) * \sqrt{\text{la presión de aspersión, psi}} \quad (50)$$

Posteriormente, se obtiene un valor tabulado del porcentaje de impacto total teórico por pies cuadrado (catálogo 55, Productos de Atomización Industrial, Spraying Systems Co.) el cual está en función del ángulo de atomización y modelo de atomización (para el caso bajo estudio: 14° y cono lleno respectivamente) y se multiplica por el valor obtenido por medio de la ecuación (50); el resultado es el impacto de atomización a una distancia de 30 cm desde la boquilla.

3.2.3. Sistema de recirculación

El sistema está compuesto por un ciclón de vidrio, un tubo de PVC hidráulico de 1/2" (conexión) y una válvula de bola. Este sistema se conecta a la cámara de fluidización del granuladora 11 cm sobre el distribuidor, para así asegurar que la descarga siempre estará dentro del lecho fluidizado. Este sistema es empleado para retornar los sólidos arrastrados por la corriente de aire a la cámara de fluidización para ser nuevamente procesados. En la Figura 3.4 se presenta el sistema de recirculación empleado.

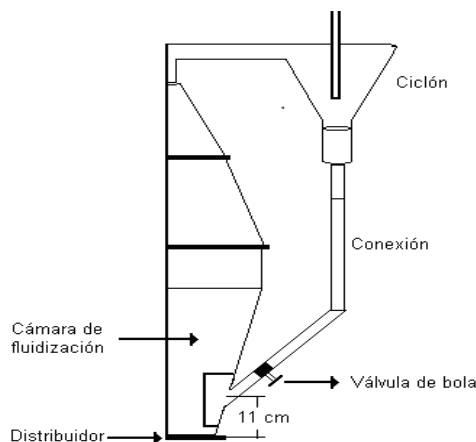


Figura 3.4. Sistema de recirculación

3.2.4. Condiciones de operación

En la Tabla 3.4 se hace un recuento de las variables involucradas en el funcionamiento del aglomerador, así como las condiciones de operación del mismo.

Tabla 3.4. Condiciones de operación

Variable	Valor
Presión de operación, (kg_f/cm^2)	2.1
Presión de aire en boquilla (kg_f/cm^2)	2.1
Presión de líquido (kg_f/cm^2)	0.21
Flujo de líquido (cm^3/min)	0.7084
Temperatura de operación, ($^{\circ}\text{C}$)	60-90
Masa de sólido, (g)	300g, DFCA; 400g DF2 ³
Velocidad del aire, (cm/min)	0.3413

3.2.5. Equipo auxiliar empleado en el programa experimental

El equipo auxiliar usado en el desarrollo experimental se muestra en la Tabla 3.5.

Tabla 3.5. Equipo auxiliar empleado

Equipo	Características
Balanza analítica (sensibilidad 0.01g)	Marca OHAUS, Modelo MB200
Rotámetro (flujo alto; 475 L min^{-1})	Marca Cole-Parmer
Serie de Mallas Estandarizadas (20, 30, 40, 60, 80, 100, 150, 180 y 200; ver Tabla 3.2 para escalas)	Marca Mont-Inox
Cronómetro	Marca Camero II
Vibrador	Tipo Rotap, Modelo Rx-29

3.2.6. Descripción de una corrida experimental típica.

La corrida inicia con la estabilización térmica del equipo vacío al flujo de aire necesario para fluidizar los sólidos en la cámara de fluidización (caracterización hidrodinámica del sólido de trabajo). Una vez estabilizado el equipo a la temperatura de trabajo, se interrumpe el flujo de aire momentáneamente mediante el cierre de la válvula de alimentación de aire proveniente del compresor y se cargan los sólidos a la cámara de fluidización, posteriormente, se abre nuevamente la válvula y se inicia el proceso de atomización del medio aglomerante. Finalizado el tiempo de atomización se inicia el proceso de secado. El producto aglomerado es retirado del equipo para obtener su distribución de tamaño por medio de un análisis de tamizado.

3.3. Diseños factoriales

Cuando son varios los factores potencialmente importantes, el enfoque correcto para trabajar con varios factores es conducir un experimento *factorial*. A continuación se enlistan las variables asociadas al sistema de aglomeración empleado (Montgomery, 2007, Hunter y Box, 1988). Cuando son varios los factores potencialmente importantes, el enfoque correcto para trabajar con varios factores es conducir un experimento factorial. Un experimento factorial es aquel en que los niveles de los factores se hacen variar en *conjunto*, en lugar de uno a la vez y se investigan todas las combinaciones posibles de éstos

3.3.1. Parámetros que influyen en el proceso de aglomeración

En la Tabla 3.6 se exponen algunos de los factores asociados al granulador de lecho fluidizado que afectan el comportamiento de crecimiento del aglomerado

Tabla 3.6. Factores operacionales asociados al granulador de lecho fluidizado

<ul style="list-style-type: none"> • Parámetros de formulación 	<ul style="list-style-type: none"> • Lote de sólidos iniciales • Distribución de tamaños de partículas empleadas • Concentración del medio aglomerante líquido
<ul style="list-style-type: none"> • Parámetros del proceso 	<ul style="list-style-type: none"> • Temperatura de alimentación del gas • Temperatura en el lecho de sólidos • Tasa de alimentación del medio aglomerante • Velocidad de fluidización <ul style="list-style-type: none"> • Tipo de boquilla • Presión de operación en la boquilla (tamaño de gota) <ul style="list-style-type: none"> • Localización de la boquilla

Cabe mencionar que en el presente trabajo se implementaron dos diseños experimentales. El primer caso corresponde a la implementación de un diseño factorial completamente aleatorio y en el segundo caso se implementa un diseño factorial 2^3 . Las observaciones experimentales obtenidas se analizan mediante el paquete estadístico JMP-7 (Software estadístico para análisis de datos). A continuación se describen los factores seleccionados a sus diferentes niveles así como la forma de realizar los ensayos experimentales.

3.3.2. Niveles de los parámetros del diseño experimental.

Con el fin de estimar la magnitud y dirección del efecto de la temperatura sobre el crecimiento del aglomerado, los niveles de temperatura a los que se ensaya el fenómeno de aglomeración se encuentran entre 60 a 90°C. Estos niveles seleccionados para éste factor, se eligen en base a la experiencia obtenida trabajando en un sistema similar (Rios, 2005) y a lo reportado en la literatura (Decanal y Menegalli, 2008) además, a estos niveles de temperatura no se modifican las propiedades del sólido a aglomerar. En cuanto al factor tiempo de atomización del líquido aglomerante, que en este caso es agua destilada. Se observó que el proceso de atomización se puede llevar hasta un tiempo de 60 minutos sin que se presente el colapso del sistema debido a un exceso de humedad en el lecho (apagado húmedo). Esto se consiguió estableciendo la combinación adecuada de atomización, es decir, se ajustó la presión tanto en el tanque de almacenamiento de líquido como la presión del aire que se conecta a la boquilla (alto caudal de aire con respecto al caudal de líquido) que permitiera proporcionar una atomización de gotas

finas con el menor ángulo de atomización. Con el menor ángulo de atomización se consiguió que la cobertura de atomización se localizara prácticamente en la cámara de fluidización, evitando la excesiva proyección de líquido atomizado a la pared del aglomerador. A pesar que la alimentación de líquido a la boquilla fue el mínimo permisible a las condiciones de atomización, ésta fue continua. Un flujo de líquido más pequeño provocaba la interrupción de la atomización.

En cuanto a la recirculación de sólidos se decidió evaluar la magnitud y dirección de este factor sobre el crecimiento de la partícula, lo cual se sustenta a continuación: el proceso de aglomeración se ve influenciado por las propiedades de la partícula, de tal forma que al emplear una amplia distribución de tamaño de partícula, ésta estará compuesta tanto de partículas muy pequeñas como partículas grandes que favorecerían la coalescencia entre éstas por el proceso de recubrimiento o adhesión de las partículas finas sobre las de mayor tamaño (Lister and Waters, 1988,1990). Por el contrario, una distribución de tamaños de partículas estrecha la cual está conformada por sólidos de tamaños similares no favorecería la coalescencia preferencial entre partículas pequeñas y grandes. De tal forma, al emplear una mezcla de sólidos que comprenda tamaños diferentes se espera que incidan en el fenómeno de crecimiento. Por tanto, cuando el experimento contemple la recirculación de sólidos se abrirá la válvula que conecta el ciclón con la cámara principal de fluidización (Figura 3.4) para permitir la entrada de los sólidos recuperados nuevamente al equipo para ser reprocesados. Cuando el experimento no contemple la recirculación, la válvula se mantiene cerrada y los sólidos elutriados son colectados por medio de un filtro.

3.3.3. Diseño factorial completamente aleatorio

La realización de un diseño factorial completamente aleatorio (DFCA) es con el objetivo de determinar los factores que afectan a la variable respuesta. Éste diseño permite estimar la magnitud y la dirección de los efectos de los factores. En ocasiones a éste experimento se le llama *experimento de exploración*. La información obtenida de este experimento se usa para identificar los factores críticos del proceso y determinar la dirección del ajuste de los factores. El experimento puede proporcionar información acerca de los factores que deben controlarse con mayor atención. En este tipo de diseño, se analizan los datos experimentales utilizando procedimientos de prueba de hipótesis e intervalos de confianza para comparar las medias de los tratamientos, los datos se consideran como si fueran una muestra aleatoria de una distribución normal (Montgomery, 2007).

3.3.3.1. Parámetros operacionales de estudio para el diseño factorial completamente aleatorio.

En la Tabla 3.7 se enlistan los parámetros operacionales seleccionados así como sus niveles en los cuales se varían para el Diseño Factorial Completamente Aleatorio (DFCA)

Tabla 3.7. Parámetros operacionales y niveles experimentales del DFCA

Factores	Niveles
Tiempo de alimentación del medio aglomerante, (t_a)	20, 40 y 60 (min)
temperatura del aire de alimentación, (T_0)	60, 70, 80 y 90 (°C)
Recirculación de finos, (R)	Con recirculación (CR) Sin recirculación (SR)

3.3.3.2. Selección de la variable de respuesta

El diámetro promedio del aglomerado (\bar{d}_p) ha sido seleccionado como la variable de respuesta del experimento y puede ser medido por medio de un análisis de tamices.

3.3.3.3. Matriz de combinaciones

El experimento consta de 24 ensayos experimentales. En la Tabla 3.8 se presentan las combinaciones de los niveles de cada factor de estudio. Cabe mencionar, que no se realizó una réplica para éste diseño experimental.

Tabla 3.8. Combinaciones de los niveles de los factores del DFCA

Tiempo de atomización, t_a (min)	Temperatura, T_0 (°C)	Recirculación, R
20	60	CR y SR*
	70	CR y SR
	80	CR y SR
	90	CR y SR
40	60	CR y SR
	70	CR y SR
	80	CR y SR
	90	CR y SR
60	60	CR y SR
	70	CR y SR
	80	CR y SR
	90	CR y SR

* CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación

La matriz de combinaciones del diseño factorial completamente aleatorio proyecta un total de 24 eventos experimentales, cuyo desglose corresponde a tres parámetros operacionales con sus diferentes niveles: tiempo de atomización de líquido con tres niveles; 20, 40 y 60 minutos, temperatura del aire de alimentación: 60, 70, 80 y 90°C y recirculación de sólidos elutriados con dos niveles; Con recirculación (CR) y Sin recirculación (SR). De lo anterior, se desprende el objetivo de evidenciar la influencia de los parámetros operacionales que afectan el crecimiento del aglomerado mediante un análisis de varianza. Una vez determinada la influencia de los parámetros sobre el comportamiento de crecimiento del aglomerado, se procede a probar la diferencia que existe entre todos los pares de medias de los ensayos experimentales mediante la prueba estadística de Tukey. Ésta prueba, determina en que niveles de los parámetros se encuentra la mayor diferencia entre los pares de medias, lo que servirá para fijar los niveles en los que hay un mayor efecto sobre la variable de respuesta. Este procedimiento permite reducir el número de niveles de los parámetros. Esta reducción en los niveles de los parámetros sustenta la implementación de un nuevo diseño experimental que contemple los mismos parámetros operacionales pero con un menor número de niveles, reduciendo con ello el número de ensayos experimentales, permitiendo evidenciar la influencia de los parámetros.

3.3.4. Prueba estadística de Tukey

Un método diseñado para la comparación por pares entre todas las medias poblacionales es la prueba de Tukey (Montgomery 2007). La prueba de Tukey se basa en probar hipótesis para las que el nivel de significancia global es exactamente α cuando los tamaños de la muestra son iguales. La prueba de Tukey declara que dos medias son significativamente diferentes si el valor absoluto de sus diferencias muestrales excede el valor del estadístico del rango studentizado, q_α . La prueba estadística de Tukey se obtiene mediante la ecuación (51)

$$T_\alpha = q_\alpha(a, f) \sqrt{\frac{MS_E}{n}} \quad (51)$$

Dónde: n número de réplicas, a niveles del parámetro, α nivel de significancia, q_α estadístico del rango estudentizado (valor tabulado en Tabla VIII del apéndice del libro Montgomery, 2007), MS_E cuadrado medio del error, f grados de libertad del error.

3.3.5. Diseño experimental factorial 2^3

La planificación factorial 2^n el exponente n representa el número de variables involucradas y el 2 indica que cada variable debe tener dos valores o niveles (Montgomery, 2007). Es un método experimental poderoso que permite, mediante un número limitado de experimentos previamente definidos, observar sobre un parámetro de respuesta característico, tanto los efectos como las interacciones de los diferentes factores, en un dominio bien definido de condiciones experimentales. En este diseño experimental cada ensayo se investiga todas las combinaciones posibles de los niveles de los factores

3.3.5.1. Parámetros operacionales de estudio para el diseño factorial 2^3

En la Tabla 3.9 se enlistan los parámetros operacionales seleccionados así como sus niveles en los cuales se varían para el diseño factorial 2^3 .

Tabla 3.9. Parámetros operacionales y niveles experimentales del diseño factorial 2^3

Factores	Niveles
Tiempo de alimentación del medio aglomerante, (t_a)	20 y 60 (min)
Temperatura del medio fluidizante en la cámara de fluidización, (T_0)	40 y 60 (°C)
Recirculación de finos, (R)	Con recirculación (CR) Sin recirculación (SR)

3.3.5.2. Selección de la variable de respuesta

La variable de respuesta seleccionada para el Diseño Factorial 2^3 es el diámetro promedio del aglomerado (\bar{d}_p) el cual puede ser determinado por medio de un análisis de tamices.

3.3.5.3. Matriz de combinaciones

Para determinar el número de ensayos experimentales para el Diseño Factorial 2^3 se consideran que para cada parámetro operacional seleccionado los cuales son: tiempo de atomización, temperatura del medio fluidizante y recirculación de sólidos, le corresponde un nivel superior y uno inferior para cada parámetro, de tal forma que el diseño experimental consta de 8 ensayos. En la Tabla 3.10 se presentan las combinaciones de los niveles de cada factor de estudio.

Tabla 3.10. Combinación de los niveles de los factores del diseño factorial 2^3

Tiempo de atomización, t_a (min)	Temperatura del aire en el lecho, T_0 (°C)	Recirculación, R
20	40	CR y SR*
	60	CR y SR
60	40	CR y SR
	60	CR y SR

* CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación

3.3.5.4. Factores constantes

En la Tabla 3.11 se enlistan otros factores que pueden influenciar la variable de respuesta, que sin embargo, se mantuvieron constantes durante los ensayos experimentales para los casos bajo estudio.

Tabla 3.11. Parámetros operacionales constantes

Masa de sólidos cargados al sistema, (para el DFCA 300 g; para el DF2³ 400 g)
Altura de la boquilla con respecto al lecho de sólidos, (50 cm aprox. del lecho de sólidos)
Tipo de boquilla, (boquilla neumática de mezclado interno tipo 1/4J SU11, cono completo)
Flujo de líquido en la boquilla, (0.7084 cm³/min)
Flujo mínimo de fluidización, Q_{mf} , (para el DFCA 6.1cm³/min; para el DF2³ 6.7 cm³/min)
Presión de operación del equipo ambos diseños experimentales (2.1 kg/cm²)
Tamaño de gota** aproximado, (2.5 μm)

**Spray Technology Reference Guide: Understanding Drop Size

3.3.6. Balance de población discretizado

En general, una ecuación de balance de población (BP) para un sistema por lotes espacialmente homogéneo que describe la tasa de cambio de la densidad del número de partículas en un intervalo de tamaños dado (en términos de una longitud característica como lo es el tamaño de partícula) se relaciona con la tasa en la cual las partículas entran y salen del intervalo de tamaños dado (Tan et al., 2006) por los diferentes procesos ocurriendo dentro del sistema tales como: nucleación, crecimiento y agregación. La forma discretizada de la ecuación unidimensional de balance de población es dada por la ecuación (52)

$$\frac{d}{dt} n_i = - \frac{\partial}{\partial r} (G n_i) + B_i - D_i \quad (52)$$

Por lo anterior, el BPD contempla tasas para describir los procesos simultáneos de crecimiento, agregación y nucleación, los cuales se describen a continuación.

3.3.6.1. Expresión cinética discretizada para la agregación

Hounslow et al. (1988) desarrollaron un modelo de agregación para partículas que se puedan agregar dentro de un intervalo de tamaño dado sólo si una de las partículas antes de que se forme el agregado, se encontraba en un intervalo inmediato inferior que el intervalo de interés. El agregado debe estar formado tanto por partículas del mismo tamaño a él tal que, éste gránulo debe ser contado en el intervalo siguiente. La representación matemática discretizada que describe el proceso de coalescencia considera las contribuciones del nacimiento y muerte por agregación, las cuales están dadas por las ecuaciones (53) y (54) respectivamente.

$$\text{Nacimiento por agregación} = n_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} n_j + \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} n_{i-1}^2 \quad (53)$$

$$\text{Muerte por agregación} = n_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-1} \beta_{i,j} n_j - n_i \sum_{j=1}^{N_{eq}} \beta_{i,j} n_j \quad (54)$$

Combinando las ecuaciones (53) y (54) tenemos:

$$r_a = \left(\frac{dn_i}{dt} \right) = n_{i-1} \sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1} \beta_{i-1,j} n_j + \frac{1}{2} \beta_{i-1,i-1} n_{i-1}^2 - n_i \sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-1} \beta_{i,j} n_j - n_i \sum_{j=1}^{neq} \beta_{i,j} n_j \quad (55)$$

Esta expresión, considera un kernel de coalescencia $\beta_{i,j}$ (Sastry, 1975) que está compuesto por una tasa constante de agregación β_{agreg} , que depende de las condiciones de operación, patrones de flujo de las partículas y configuración el granulador, y de un kernel que expresa la dependencia con los tamaños de los gránulos colisionantes $\beta^*(r_1, r_2)$, siendo este, el que determina la forma de la distribución de tamaños de sólidos resultante. El kernel de coalescencia empleado en este trabajo corresponde al kernel de energía cinética de equipartición descrito por Hounslow. (1988) el cual está basado en la teoría cinética de gases, el cual está representado por la ecuación (56)

$$\beta_{i,j} = \beta_{agreg} (r_i + r_j)^2 \sqrt{\frac{1}{r_i^3} + \frac{1}{r_j^3}} \quad (56)$$

Así mismo, la elección del kernel afecta la tasa de coalescencia y por lo tanto la forma de la distribución de tamaños del gránulo (Cryer, 1999). El método empleado por Hounslow, (1988) está basado en una discretización geométrica en el cual cada clase es dos veces el volumen de la clase precedente

$$\frac{L_{i+1}}{L_i} = \sqrt[3]{2} \quad (57)$$

En la cual L denota la longitud característica de las partículas y los subíndices i+1 e i denotan las dos clases de tamaños. La discretización geométrica puede describirse como: el modelo de agregación para partículas que se pueden agregar dentro de un intervalo de tamaño dado sólo si una de las partículas, antes de que se forme el agregado, se encontraba en un intervalo inmediato inferior que el intervalo de interés. El agregado debe estar formado tanto por partículas del mismo tamaño a él tal que, este gránulo debe ser contado en el intervalo siguiente. Considerando a r como la longitud característica (radio de la partícula) la ecuación (57) se puede escribir como:

$$\frac{r_{i+1}}{r_i} = \sqrt[3]{2} \quad (58)$$

Donde r es el radio de la partícula en un intervalo (i) y en un intervalo inmediato mayor (i+1). Aplicando esta técnica, la ecuación de balance de población (52) puede ser convertida en un conjunto de ecuaciones de balance de población discretizados en varios intervalos de tamaño.

3.3.6.2. Expresión cinética discretizada para la nucleación

La tasa de nucleación β_{nuc} , se considera como la tasa de aparición de partículas de tamaño cero, donde $\delta(L)$ es la función delta de Dirac. Si el dominio del tamaño es discretizado en un número suficiente de intervalos, es posible permitir que la nucleación ocurra en el intervalo de tamaño más pequeño.

$$r_n = \left(\frac{dn_i}{dt} \right)_{Nucleation} = \beta_{nuc} \delta(r_i) \quad (59)$$

3.3.6.3. Expresión cinética discretizada para el crecimiento

La forma discretizada que describe el proceso de crecimiento, ecuación (60) está compuesta por el producto de una tasa de crecimiento discreta β_{crec} y de la distribución de tamaños de partículas con la longitud como coordenada interna. En un tiempo dt un número de partículas, dn_i crecerán dentro del rango de tamaño ith desde el rango de tamaño $(i-1)$. Similarmente, un número de partículas crecerán fuera del intervalo de tamaño ith en el intervalo $(i+1)$. De tal forma la tasa global de crecimiento está dada por la expresión:

$$r_g = \left(\frac{dn_i}{dt} \right)_{Crecimiento} = \beta_{crec} \left(\frac{n_{i-1}}{r_i - r_{i-1}} + n_i - \frac{n_i}{r_{i+1} - r_i} \right) \quad (60)$$

Por lo anterior, para describir el cambio en el número de partículas (distribución de tamaños de partículas) en el sistema debido a los procesos simultáneos de nucleación, agregación y crecimiento, las ecuaciones 55, 59 y 60 se combinan conjuntamente para obtener la siguiente expresión.

$$\frac{dn_i}{dt} = r_n + r_g + r_a \quad (61)$$

Donde n_i es la fracción masa de agregados; t es el tiempo de operación; r_n , r_g y r_a son la tasa de nucleación, crecimiento y agregación, respectivamente, y β_{nuc} , β_{crec} y β_{agreg} son las constantes cinéticas de nucleación, crecimiento y agregación, respectivamente. Los modelos en este trabajo están dados por un conjunto de ecuaciones diferenciales ordinarias que fueron resueltas por el método de Runge-Kutta-Fehlberg (Lapidus et al., 1971). La estimación de los parámetros cinéticos (ver anexo B) se llevó a cabo utilizando el método de Levenberg-Marquardt (Stewart et al., 1971).

El BPD que se utilizó en este trabajo considera lo siguiente:

- (1) Se toman en cuenta los procesos de nucleación, crecimiento y agregación, pero no el de rompimiento, ya que para sistemas similares, este último es muy lento con respecto a los otros y de acuerdo a diversos trabajos (Tan et al., 2005) se considera implícitamente en el término que caracteriza el proceso de nucleación.

- (2) Se utilizan cinéticas empíricas para la nucleación y crecimiento. Mientras que para agregación se utiliza una expresión empírica conocida como la ecuación de equipartición de energía cinética (Ecuación 15) cuyo desarrollo se basa en la teoría cinética de los gases (Hounslow et al., 1988).
- (3) Se presentan dos tipos de nucleación dependiendo del tamaño relativo entre la gota y la partícula que interactúan: de dispersión y de inmersión. Éstos se agrupan y cuantifican con una misma cinética de nucleación. La nucleación tiene lugar durante toda la operación del equipo (Cryer, 1999).
- (4) En los ensayos experimentales correspondientes a aquellos en los cuales no se recirculaban los sólidos elutriados al sistema, se recuperó la fracción de estos, siendo esta, cerca del 1% de la masa total de sólidos cargados al equipo, concluyéndose que esta pérdida no merma la población de sólidos.

Capítulo 4

Resultados

4.1. Caracterización física e hidrodinámica de los sólidos

Debido a que el lote de sólidos proporcionado por el fabricante tiene una distribución de tamaños de partículas muy amplia y por consiguiente un importante porcentaje en volumen de sólidos finos, se acota el tamaño de los sólidos a ser empleados en la serie de ensayos experimentales. La población de sólidos acotados corresponde a las mallas No. 80, 100 y 150 respectivamente. El motivo de tal selección reside, que en la planeación del diseño experimental se analiza el efecto que tiene el recircular la fracción de los sólidos finos arrastrados por la corriente de aire sobre el comportamiento de crecimiento del aglomerado, además de obtener condiciones de fluidización razonables. Cabe mencionar, que la población de sólidos que se empleó para la realización del diseño experimental completamente aleatorio (DFCA) se agotó en su totalidad, por lo que se adquirió un nuevo lote de sólidos (al cual se le realizó el mismo procedimiento de acotamiento debido al volumen de sólidos finos) para la realización del diseño experimental factorial 2^3 (DF 2^3). En la Tabla 4.1 se presentan los diámetros promedios de sólidos empleados para cada diseño experimental.

Tabla 4.1. Diámetro promedio de los sólidos de trabajo

Densidad de sólido g/ml (Reportado por el fabricante) (ρ_a)	Diámetro promedio de partícula mm (d_{po}) Lote 1 (DFCA)	Diámetro promedio de partícula mm (d_{po}) Lote 2 (DF 2^3)
1.14	0.121	0.145

En la Tabla 4.2 se muestra el cálculo del diámetro promedio de las partículas iniciales de trabajo correspondiente a las mallas No. 80, 100 y 150 para el diseño factorial completamente aleatorio así como para el diseño factorial 2^3 empleando la ecuación (49) de la página 59.

Tabla 4.2. Cálculo para obtener el diámetro promedio de los sólidos de trabajo: (a) diseño factorial completamente aleatorio; (b) diseño factorial 2^3

(a)

MALLA	w_i (g)	$x_i = w_i/W$	ABERTURA (mm)	dp_i	$x_i/dp_i(\text{mm})^{-1}$ (± 0.05)
10	0	0.000	2		
20	0	0.000	0.841	1.4205	0.000
30	0	0.000	0.59436	0.71768	0.000
40	0.58	0.003	0.4191	0.50673	0.006
60	0.89	0.004	0.24892	0.33401	0.013
80	5.38	0.027	0.1778	0.21336	0.126
100	122.32	0.612	0.14986	0.16383	3.733
150	3.01	0.015	0.10414	0.127	0.119
180	14.58	0.073	0.08128	0.09271	0.786
200	52.96	0.265	0.07366	0.07747	3.418
diam.prom (mm)					
$\Sigma(x_i/dp_i)^{-1}$					8.201
$\Sigma(x_i/dp_i)^{-1}$					0.122

(b)

MALLA	w_i (g)	$x = w_i/W$	ABERTURA (mm)	dp_i	$x_i/dp_i (\text{mm})^{-1}$ (± 0.05)
10	0	0.000	2	2.19	0.000
20	0.01	0.000	0.841	1.4205	0.000
30	0.05	0.000	0.595	0.718	0.000
40	0.12	0.000	0.42	0.5075	0.001
60	1.89	0.006	0.25	0.335	0.019
80	100.98	0.337	0.177	0.2135	1.579
100	98.7	0.329	0.149	0.163	2.021
150	24.9	0.083	0.105	0.127	0.654
180	72.98	0.244	0.08128	0.09314	2.615
200	0	0.000	0.074	0.07764	0.000
					6.889
diam prome (mm)					
$\Sigma(x_i/dp_i)^{-1}$					0.145

Se puede considerar que los sólidos empleados en este trabajo son sólidos tipo A de acuerdo a la clasificación de Geldart, (1973), los cuales se caracterizan por tener una densidad menor de 1.4 g/cm^3 , presentan una expansión considerable de lecho con un incremento en la velocidad de fluidización del gas cuando la velocidad mínima de fluidización se ha excedido. Esta expansión, se alcanza una vez que la velocidad de fluidización alcanza dos o tres veces la velocidad mínima de fluidización. En la Figura 4.1a se presenta el tipo de sólido de acuerdo a la clasificación de Geldart, (1973), así como, la imagen de los sólidos correspondientes a las mallas seleccionadas (No. 80, 100 y 150) 4.1b.

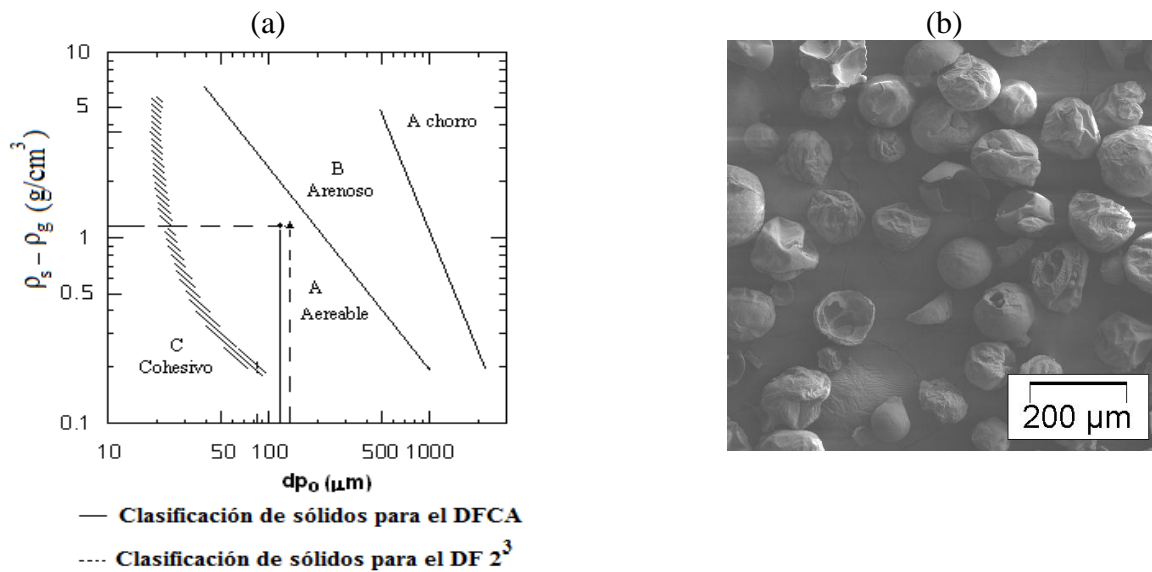


Figura 4.1. Clasificación de los sólidos (a); morfología de los sólidos de las mallas seleccionadas No. 80, 100 y 150(b)

La caracterización hidrodinámica, comprende el conocimiento de los límites de operación del lecho fluidizado; para ello, se determina la velocidad mínima de fluidización experimentalmente para los sólidos de las mallas seleccionadas. Considerando una carga de sólidos confinada en un recipiente normalmente tubular, la cual es suspendida por una corriente ascendente de gas. A velocidades muy bajas, el fluido pasa a través de los huecos libres dejados por los sólidos estáticos. A medida que aumenta el flujo, la caída de presión a través del lecho aumenta en forma lineal, hasta llegar a un punto tal que las partículas empiezan a moverse debido a que la fuerza de fricción entre el fluido y las partículas, iguala a las fuerzas de gravedad y a las que se establecen entre las partículas empacadas entre sí y con el contenedor. En este punto se localizan las condiciones mínimas de fluidización. A partir de este punto al seguir aumentando el flujo, la caída de presión se mantiene relativamente constante y las partículas se mueven más vigorosamente. Finalmente, el seguir aumentando el flujo, hará que se alcancen las condiciones de transporte neumático, que es cuando los sólidos empiezan a salir del recipiente arrastrados por el fluido. Cabe resaltar, que debido a que la cámara de fluidización es de geometría cónica (Figura 3.1), el área transversal al flujo se considera constante, por lo cual, se utilizó un diámetro promedio comprendido entre el diámetro superior (20 cm) y el diámetro inferior (10 cm) de la cámara de fluidización. Por convención, el flujo mínimo de fluidización experimental se determina por la intersección de la línea del lecho fijo (caída de presión) contra el flujo de aire como se muestra en la Figura 4.2.

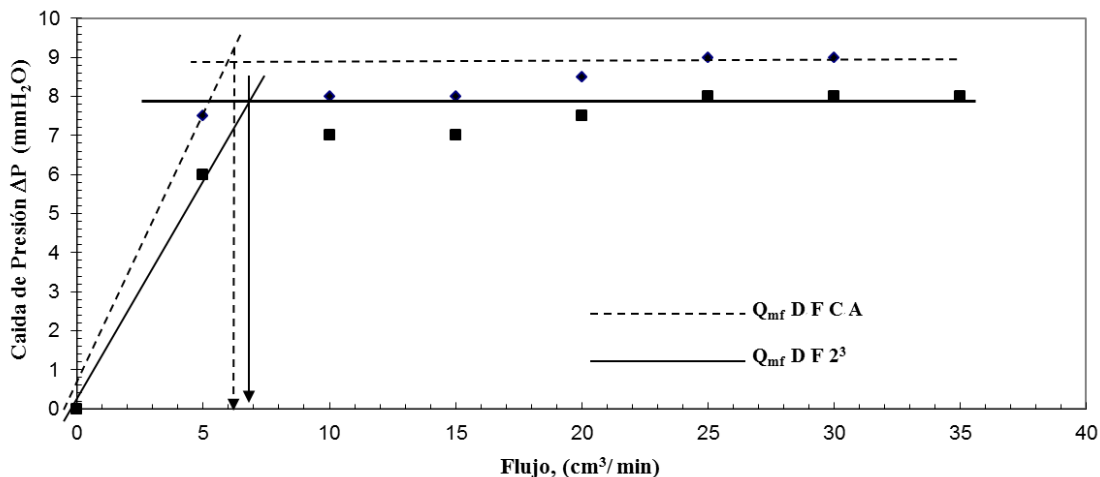


Figura 4.2. Determinación experimental del flujo mínimo de fluidización Q_{mf} .

En la Tabla 4.3 se reportan tanto la velocidad mínima de fluidización obtenida experimentalmente (flujo de aire ascendente) y calculada por medio de la Eq. 1, página 8. La velocidad terminal de los sólidos finos se calculó por medio de las Eqs. 2-4, página 8 (para la determinación de la velocidad mínima de fluidización así como de la velocidad terminal se consideró que los sólidos poseen una geometría esférica).

Tabla 4.3. Caracterización hidrodinámica de sólidos finos.

Q_{mf} : Flujo mínimo de fluidización, (cm/min) Experimental	Área transversal de la cámara de fluidización, (cm ²)	Velocidad mínima de fluidización, (cm/s)	U_t ; Velocidad terminal, (cm/min) Calculada	Número de Reynolds
6.1 (DFCA*)	176.71	0.0379	0.5063	0.2372
6.7 (DF2 ³ **)	176.71	0.040	0.7250	0.3074

* Diseño Factorial Completamente Aleatorio; ** Diseño Factorial 2³

Dado que se tiene partículas de líquido cayendo verticalmente en un fluido viscoso, ésta se acelerará hasta alcanzar una velocidad constante y es conocida como velocidad terminal. El movimiento de las gotas cayendo libremente a través del aire depende si la misma es lo suficientemente pequeña o demasiado grande como para comportarse como una esfera. Para una esfera de radio R moviéndose en un flujo no turbulento dentro de un fluido de viscosidad, μ , la velocidad terminal se puede determinar por medio de la ley de Stokes (Byron et al., 1975, ecuación 2.6-16, p. 2-28). Debido a que las boquillas no dispersan gotas de un solo tamaño, es decir no es una dispersión monodispersa, las gotas se encuentran dentro de un rango de tamaños. Por lo tanto se tiene una distribución de gotas polidispersa.

Una de las características más importantes de este tipo de dispersión es su tamaño característico y por lo tanto, las gotas de líquido se especificarán a través de ella (Valencia, 2001). Dado que el diámetro promedio de la gota se expresa como un diámetro medio de volumen (DMV) el cual es de 30 μm (según dato obtenido de tabla de acuerdo a las condiciones específicas de presión del aire y flujo de líquido en la boquilla de atomización), esta es lo suficientemente pequeña para considerarla como una esfera. Así mismo, se calculó el número de Weber para corroborar que las gotas líquidas conserven su forma. En la Tabla 4.4 se presenta la velocidad terminal de la gota, así como el número Weber.

Tabla 4.4. Velocidad terminal de la gota de líquido

Viscosidad del aire (g/cm*min)	Densidad del aire (g/cm ³)	Densidad del agua (g/cm ³)	Velocidad terminal de la gota, (cm/min)	Número de Reynolds (Re)	Número de Weber (We)
1.86e-4	1.164e-3	0.9971	0.5466	1.42e-5	5.66e-4

Considerando que la velocidad de caída terminal de las partículas depende de su tamaño y de la componente vertical de la velocidad del flujo de aire, se puede observar que la magnitud de la velocidad terminal de la gota obtenida a partir de la ecuación (7) de la página 11, la cual se reporta en la Tabla 4.4 es mucho menor que la velocidad mínima de fluidización de los sólidos reportada en la Tabla 4.3, por lo que se puede concluir que las gotas de líquido de menor tamaño presentes en la carga de atomización son arrastradas por el flujo ascendente de aire. Cabe mencionar, que el tamaño de gota se refiere al tamaño de gotas de atomización individuales que forman el modelo de atomización de una boquilla (ver Tabla 3.3) y dado que no todas las gotas de atomización tienen el mismo tamaño, el tamaño de gota expresado en DMV es un valor donde el 50% del total de líquido pulverizado se hace en gotas de mayor tamaño que el diámetro medio y el 50% en gotas más pequeñas que ese diámetro medio. Sin embargo a pesar de que se tienen gotas muy pequeñas en la carga de atomización, éstas no pueden sustraerse a la gravedad y van cayendo lentamente (ésta caída puede verse favorecida por la geometría cónica de la cámara de aglomeración (Figura 3.1) cuya función es la de desacelerar el flujo de aire). Cabe recordar que la carga de atomización está compuesta de diferentes tamaños de gotas, donde las grandes caen más rápidamente que las más pequeñas. Por lo tanto, las gotas pequeñas son absorbidas en la parte delantera de las gotas grandes que caen mientras que otras pueden ser capturadas por el proceso de coalescencia en la parte trasera (succión).

Estas gotas siendo de mayor tamaño caen rápidamente, chocando y coalesciendo con las gotas de menores tamaños que se encuentran en su camino (las cuales son más lentas) volviéndose cada vez de mayor tamaño (Figura 4.3). Siendo éstas gotas de mayor tamaño, vencen la resistencia impuesta por la corriente de aire ascendente hasta alcanzar la superficie del lecho de sólidos.

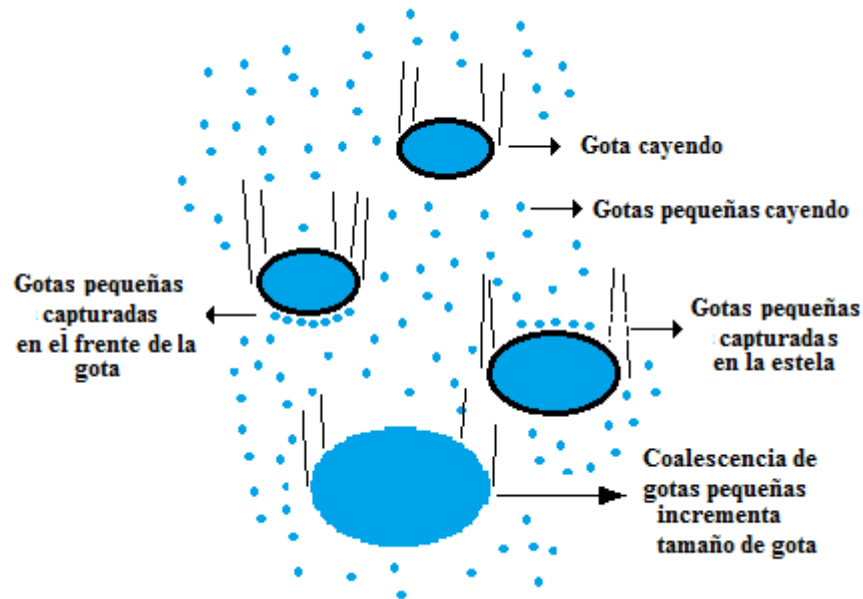


Figura 4.3. Crecimiento de gota por coalescencia de gotas pequeñas

Cabe resaltar que aunque puede presentarse la deformación de la gota, esto no influye en el proceso de aglomeración. El interés se centra en que la gota logre humedecer a los sólidos para su coalescencia.

4.2. Experimentos de aglomeración del diseño experimental completamente aleatorio (DFCA)

4.2.1. Diámetro promedio experimental.

En la Figura 4.4 se presentan las distribuciones en fracción masa de partículas retenida en los tamices a las diferentes condiciones de operación del sistema. Con el propósito de resaltar las diferencias en la distribución del tamaño de las partículas, se establecieron arbitrariamente 3 intervalos: uno inferior (0.0 a 0.127 mm), uno intermedio (0.163 a 0.335 mm) y otro superior (0.5075 a 1.42 mm). En todos los casos se muestra la distribución de partículas inicial para propósitos de comparación. En esta figura se observa que la fracción de partículas retenidas se desplaza del intervalo inferior hacia los superiores, lo cual indica que se presenta un proceso de crecimiento.

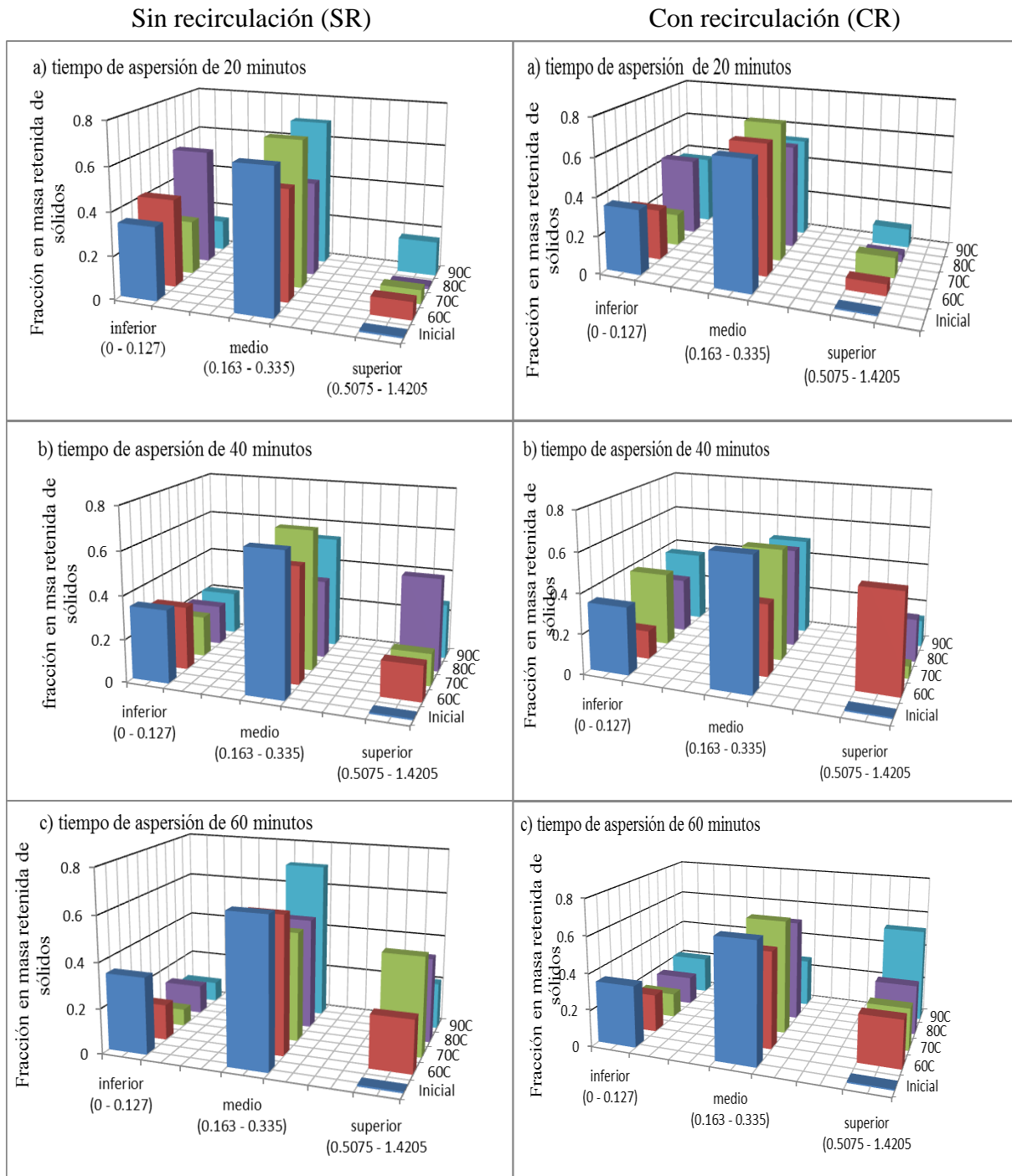


Figura 4.4. Distribución de sólidos retenidos por intervalos de tamaño, a las diferentes condiciones experimentales (CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación)

A partir de los datos de la Figura 4.4 y utilizando la Ecuación 48 de la página 56 se obtuvieron los diámetros promedio correspondientes a cada combinación de los niveles de los parámetros de operación seleccionados. Para la discusión de los resultados, éstos se presentan en dos secciones, una

que no considera la recirculación de los sólidos elutriados (SR) durante los experimentos y otra que considera la recirculación de las partículas elutriadas (CR).

4.2.1.1. Experimentos del diseño factorial completamente aleatorio, Sin recirculación

En la Tabla 4.5 se presentan los diámetros promedio experimentales obtenidos a las diferentes combinaciones de los niveles de los parámetros para el Diseño Factorial Completamente Aleatorio (DFCA).

Tabla 4.5. Diámetro promedio de los aglomerados del DFCA, Sin recirculación

Tiempo de atomización, (t_a) (min)	Temperatura del aire, (T_0) (°C)	Diámetro Promedio, (mm) ($\pm 0.05\%$)
20	60	0.141
	70	0.166
	80	0.180
	90	0.194
40	60	0.172
	70	0.184
	80	0.237
	90	0.197
60	60	0.209
	70	0.283
	80	0.244
	90	0.211

Se puede observar una tendencia clara a obtener aglomerados con un diámetro promedio mayor cuando se incrementa el tiempo de atomización, lo cual es favorecido por la influencia que exhibe el proceso de coalescencia. Mientras que para tiempos bajos de atomización, la influencia del proceso de nucleación predomina tal y como se discute y corrobora en la sección de modelado del sistema estudiado. La primera interacción entre las gotas de líquido aglomerante y partículas suspendidas se lleva a cabo en la zona de atomización. Esta interacción, permite formar preferentemente núcleos saturados de líquido una vez, que éstas son engullidas por las gotas de líquido atomizado, manifestándose el proceso de nucleación por inmersión (Kumar, 2006).

Puede considerarse, que esta etapa, forma núcleos iniciales de un tamaño semejante, por lo que se obtendrán distribuciones de tamaño estrechas. Cabe mencionar que al no retornar los sólidos elutriados nuevamente al sistema, el proceso de nucleación que se lleva a cabo en la zona de atomización decae, promoviendo con esto que el líquido atomizado interactúe preferentemente con la población de sólidos de mayor tamaño presentes en la zona de dispersión. El líquido penetra hacia el interior de la superficie del lecho debido a la acción combinada de la tensión superficial y fuerzas de adhesión entre el líquido y el sólido. Ésta acción, permite que el líquido suba a través de los espacios vacíos formados entre los sólidos manteniendo húmeda la superficie de éstos (Streeter and Wylie, 1979). Estos núcleos húmedos interactúan con el resto de sólidos que componen el lecho, promoviendo un crecimiento causado por la coalescencia entre ellos. Siendo esta etapa dominada por el proceso de agregación.

A una temperatura de 70°C y un tiempo de atomización de 60 minutos se obtiene el mayor crecimiento de los sólidos. La variación de la temperatura tuvo un efecto despreciable en el crecimiento del aglomerado final, comparada con el efecto de la variación del tiempo de atomización. No obstante, la temperatura interactuó de manera compleja con el sistema de aglomeración, ya que para cada tiempo de atomización tuvo un efecto diferente sobre el diámetro promedio del producto final. Para un tiempo de atomización alto, el incremento en la temperatura redujo el diámetro promedio, ya que una temperatura alta favorece el nivel de evaporación del líquido, promoviendo con esto una deficiencia de líquido en la superficie de las partículas, impidiendo la formación de puentes líquidos responsables para mantener unidos a los sólidos que colisionan con ellas, disminuyendo con esto el dominio del proceso de agregación.

4.2.1.2. Experimentos del diseño factorial completamente aleatorio, Con recirculación

En la Tabla 4.6 se presentan los diámetros promedio de los aglomerados obtenidos a las diferentes combinaciones de los niveles de los parámetros de operación para el Diseño Factorial Completamente Aleatorio (DFCA).

Tabla 4.6. Diámetro promedio de los aglomerados del DFCA, Con recirculación

Tiempo de atomización, (t_a) (min)	Temperatura del aire, (T_0) (°C)	Diámetro Promedio, (mm) ($\pm 0.05\%$)
20	60	0.163
	70	0.178
	80	0.135
	90	0.150
40	60	0.250
	70	0.147
	80	0.180
	90	0.157
60	60	0.214
	70	0.206
	80	0.218
	90	0.249

El efecto de recircular las partículas elutriadas nuevamente al sistema, prolonga el contacto entre las partículas de menor tamaño y el líquido atomizado, existiendo durante toda la operación del granulador un proceso de nucleación por inmersión en la zona de atomización como lo sugiere [Realpe and Velásquez, \(2008\)](#). Los resultados para los experimentos con recirculación muestran que el tiempo de atomización tuvo el efecto más significativo en la aglomeración de las partículas, teniendo el mayor tamaño cuando se operó el granulador con un tiempo de atomización de 60 minutos y temperatura de 90°C. El efecto de la temperatura no es claro pero como se corrobora en el análisis de varianza y en el modelado del sistema en subsecuentes secciones, no presenta un efecto apreciable comparado con el del tiempo de atomización en la formación del aglomerado. En términos generales, la operación del sistema Con y Sin recirculación de partículas elutriadas a la cámara de fluidización no tiene un efecto considerable en el proceso de aglomeración, si es comparado con el efecto del tiempo de atomización. No obstante, se percibe que se obtienen aglomerados de un tamaño más uniforme cuando se recirculan los sólidos elutriados. Un aspecto a resaltar es con relación a la población de partículas consideradas en los intervalos inicial e intermedio, la cual disminuye debido a que pasan a formar parte de la población de partículas de los intervalos superiores. Esta disminución, sugiere que la formación de núcleos en la zona de atomización se prolonga debido al retorno de los sólidos a la cámara de fluidización, los cuales

colisionan con los sólidos que componen el lecho, incrementado así la población de agregados de los intervalos superiores (Goldszal and Bousquet, 2001; Kumar, 2006; Realpe and Velásquez, 2008).

4.2.1.3. Análisis de varianza del diseño factorial completamente aleatorio (DFCA)

En la Tabla 4.7 se presenta el resumen del análisis de varianza (ANOVA) aplicado a los resultados obtenidos del diseño experimental (ver anexo A). El análisis estadístico evaluó los datos a un nivel de significancia α , del 5%. En esta tabla se muestra el valor de la distribución calculada, “ F_o ” y la distribución teórica, “ $F_{teórica}$ ”. De tal forma, que si estas distribuciones son comparadas, y $F_o > F_{teórica}$ significa que existe una diferencia en las respuestas al variar los niveles de los parámetros del proceso bajo estudio. De manera alterna se puede emplear el enfoque de probabilidad “P” que indica si los datos son significativos, es decir, si el valor de P es menor que 0.05, expresa que ese factor afecta el crecimiento del aglomerado.

Tabla 4.7. Análisis de varianza para el diseño factorial completamente aleatorio

Fuente de variación	Suma de cuadrados	Grados de libertad	Cuadrado medio	Valor de F_o	Valor de $F_{teórica}$	Valor P
Recircul, (R)	0.000495	1	0.000495	0.4493	5.99	0.5276
Tiempo, (t_a)	0.021682	2	0.010841	9.8480	5.14	0.0127 ♦
Recircul*Tiempo, (R* t_a)	0.000353	2	0.000177	0.1602	5.14	0.8555
Temp, (T_o)	0.000097	3	0.000032	0.0094	4.76	0.9920
Recircul*Temp, (R* T_o)	0.004155	3	0.001385	1.2570	4.76	0.3699
Tiempo*Temp, (t_a * T_o)	0.006904	6	0.001152	1.0440	4.28	0.4797
Error	0.006611	6	0.001102			
Total	0.040318	23				

♦ indica factor estadísticamente significativo

Cabe resaltar, que este hecho se visualizó al realizar el análisis de la variabilidad del diámetro promedio por efecto de los parámetros del proceso estudiados, y se confirma por medio del análisis de varianza y el modelado del sistema. El análisis de varianza determinó que hay diferencias significativas entre las medias de los tratamientos del factor tiempo de atomización pero no se especifican cuales

difieren. Frecuentemente es posible determinar cuáles son las medias que difieren probando las diferencias entre *todos* los pares de medias de los tratamientos. Un método diseñado para la comparación por pares entre todas las medias poblacionales es la prueba de Tukey.

4.2.1.4. Prueba de Tukey

En la sección 3.3.4., se describió el método de comparación por pares de medias poblacionales por lo que en la Tabla 4.8 se presenta la diferencia significativa para los pares promedios de los tratamientos con $\alpha=0.05$, $f = 20$ grados de libertad y $q_{0.05} = 2.53$ (Montgomery, 2007). Cualquier par promedio que difiera en valor absoluto por más de 0.130785 implica que el par de medias poblacionales son significativas.

Tabla 4.8. Comparación de medias de los tratamientos del DFCA

Nivel	Media estimada	Tratamiento	Diferencia
60	0.647625	60 vs 40	$0.647625 - 0.535625 = 0.112$
40	0.535625	60 vs 20	$0.647625 - 0.515250 = 0.132375^*$
20	0.515250	40 vs 20	$0.535625 - 0.515250 = 0.020375$

* Par de medias que son significativamente diferentes

Analizando el valor obtenido de la diferencia media para cada tratamiento se observa que la combinación de los niveles 60 vs 20 cumple con el requisito señalado anteriormente. Por consiguiente, los niveles del parámetro tiempo de atomización en los cuales se presenta una diferencia significativa es entre los niveles 60 y 20 minutos.

4.2.2. Caracterización del aglomerador de lecho fluidizado

La implementación y realización del diseño experimental completamente aleatorio fue un sistema complejo que incluyó dos parámetros operacionales controlables con sus respectivos niveles: tiempo de atomización del agente aglomerante (20, 40 y 60 minutos); temperatura de alimentación del aire (60, 70, 80, y 90°C) y un parámetro con dos niveles: recirculación de los sólidos elutriados (CR Y SR). Este diseño experimental permitió determinar que entre los niveles de 60 minutos y 20 minutos de atomización del agente aglomerante se localiza la influencia de este parámetro (considerando el resultado de la sección 4.2.1.4). En cuanto al parámetro temperatura el ANOVA determinó que no influye en el comportamiento de crecimiento del aglomerado, lo cual pudo deberse a que la influencia

de este parámetro pudo quedar oculta por la influencia de los otros dos parámetros además de que los niveles de temperatura seleccionados fueron elevados para la obtención de aglomerados en este sistema. Por lo que se realizó un ajuste en los niveles de este parámetro el cual se describe en la sección 4.2.2.1. Así mismo, el parámetro de operación recirculación de sólidos elutriados con dos niveles (CR y SR) no sufre ninguna modificación, ya que se espera que la presencia de partículas finas coalescan con las de mayor tamaño favoreciendo el crecimiento del aglomerado.

4.2.2.1. Niveles de temperatura

Se detectó que durante la realización de los ensayos experimentales correspondientes al nivel de temperatura de 90°C, la lectura registrada por el controlador temperatura permaneció en 85-86°C, siendo menor a la del nivel de temperatura de operación deseada (90°C). Por consiguiente, se cuestionó cual es la temperatura del aire real que prevalece en la cámara de fluidización durante los ensayos experimentales; comprendiendo que en realidad la temperatura que registra el controlador no es la misma que se localiza en la cámara de fluidización. Éste evento motivó a replantear la forma de evaluar el efecto de la temperatura. Para poder verificar la temperatura que se alcanza en la cámara de aglomeración durante el proceso, se procedió a realizar lo siguiente: se colocó un termopar (el cual está conectado directamente al controlador de temperatura) en la cámara de aglomeración a 10 cm sobre el distribuidor. Así mismo, se introdujo un termómetro de bulbo seco en la cámara (a la misma altura del termopar) con el objetivo de verificar la temperatura a la que se encuentra el lecho cuando la temperatura de operación se fija en el controlador. Posteriormente, se ajusta la temperatura de operación en el controlador, por ejemplo a 90°C, y se carga un lote de 300 gramos de sólidos de tamarindo en la cámara y se inicia el proceso de fluidización, permitiendo que el sistema se estabilice térmicamente. El tiempo de duración de la prueba correspondió al nivel superior del tiempo de atomización de 60 minutos. Se registró la temperatura alcanzada en el termómetro de bulbo seco cada 5 minutos. De esta forma se determinó la temperatura prevaleciente en el lecho de sólidos durante el proceso de aglomeración siendo esta de 65°C. El procedimiento antes descrito se repitió para las temperaturas de 70 y 80°C y un tiempo de 60 minutos, alcanzándose temperaturas de 60 a 63°C respectivamente. El ensayo se repitió para la temperatura de 40°C y se encontró que la temperatura prevaleciente en el lecho se encontraba en 40-41°C.

Tomando como base lo antes descrito, se realizó una revisión bibliográfica de los procesos de aglomeración en lechos fluidizados con el objetivo de averiguar los niveles de la temperatura del aire

bajo los cuales se llevan a cabo estos tipos de procesos, encontrándose que operan entre 40 y 60°C. Estos niveles de temperatura son adecuadamente controlables en el sistema bajo estudio, por lo que se realiza un ajuste en los niveles de este factor para analizar su efecto sobre el diámetro promedio del aglomerado. Tomando en consideración lo descrito anteriormente, se puede visualizar que se tiene un diseño experimental con los mismos parámetros de estudio pero con dos niveles para cada parámetro. Por consiguiente, se implementa un diseño factorial 2^3 (Box, et al., 1988, Montgomery, 2007) para esclarecer el efecto de los parámetros: temperatura del aire de alimentación y recirculación de los sólidos sobre el crecimiento del aglomerado.

4.3. Experimentos de aglomeración del diseño factorial 2^3

4.3.1. Diámetro promedio experimental

En la Figura 4.5 se presentan las distribuciones de la fracción masa de los sólidos retenidos en los diferentes tamices a las diferentes combinaciones de los factores de operación (en todos los casos se muestra la distribución de partículas inicial para propósitos de comparación. Con el propósito de resaltar las diferencias en la distribución del tamaño de las partículas se establecieron arbitrariamente 3 intervalos: uno inferior, **I**, comprendido entre 0.0770 a 0.127 mm, uno intermedio, **II**, comprendido entre 0.163 a 0.335 mm y otro superior, **III**, comprendido entre 0.5075 a 1.42 mm. Cabe mencionar que la población de sólidos iniciales no la conforman sólidos correspondientes al intervalo superior. En esta se puede observar una disminución de la población de sólidos correspondientes al intervalo inferior, mientras que en el intervalo superior se incrementan la fracción de sólidos retenidos. Así mismo, en el intervalo intermedio se puede observar un comportamiento variable en la fracción de sólidos retenidos. Sin embargo, para cada distribución existe un desplazamiento de los sólidos del intervalo inferior hacia el superior, lo cual sugiere que se existe un proceso de aglomeración. Además, se puede observar que el comportamiento de la distribución correspondiente a las condiciones de 60 min, 40°C y CR se obtienen distribuciones de tamaños de partícula más uniforme y unimodales (intervalo intermedio) con un incremento en la fracción de sólidos más gruesos retenidos en los intervalos mayores. Así mismo, se presenta una disminución muy importante de la fracción de sólidos finos del intervalo inferior. El proceso llevado a las condiciones de 60 min, 60°C y CR presenta una distribución con un comportamiento semejante al caso anterior con una disminución pobre de los sólidos finos. El comportamiento presentado bajo estas condiciones experimentales establecidas indica que con aumento en el nivel de temperatura, la tasa de evaporación es mayor por lo tanto los sólidos humedecidos se

secan rápidamente, minimizando el éxito en la agregación con otros sólidos. Puede considerarse que el efecto de los sólidos de menor tamaño induce a obtener distribuciones con menos variabilidad en la población de aglomerados.

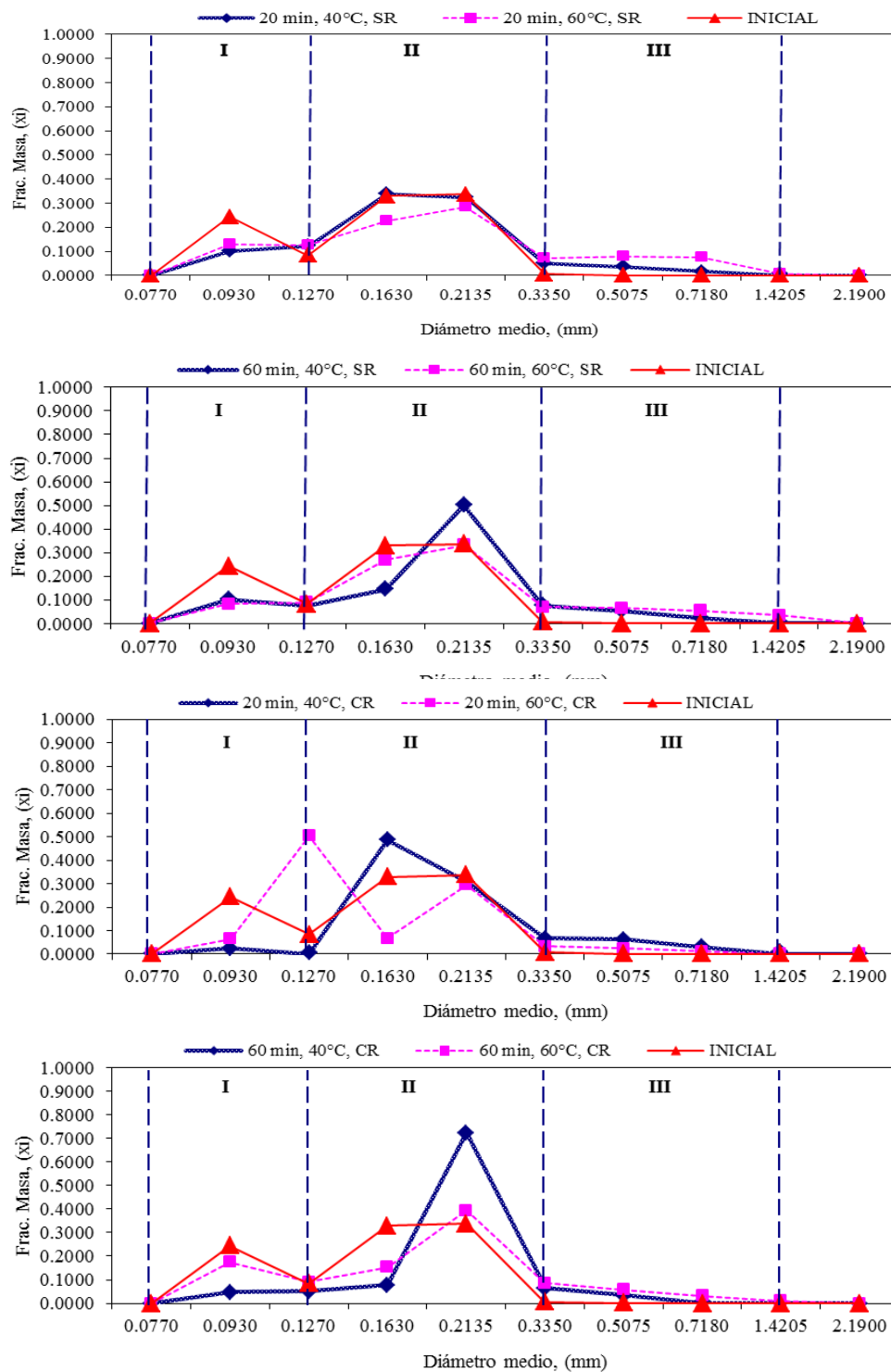


Figura 4.5. Distribución de sólidos retenidos por intervalos de tamaño, a las diferentes condiciones experimentales para el diseño factorial 2^3

A partir de los datos de la Figura 4.5 y utilizando la Ecuación (49) de la página 56, se obtuvieron los diámetros promedio correspondiente a cada combinación de los niveles de los parámetros de operación seleccionados (se comparan con el diámetro promedio de los sólidos iniciales el cual es de 0.1451 mm). Para la discusión de los resultados se presentan 2 secciones, una que no considera la recirculación de los sólidos elutriados (SR) durante los experimentos y otra que considera la recirculación de las partículas elutriadas (CR).

4.3.1.1. Experimentos del diseño factorial 2³, Sin recirculación

En la Tabla 4.9 se presentan los diámetros promedio experimentales del diseño factorial 2³ obtenidos a los diferentes niveles de los factores de estudio.

Tabla 4.9. Diámetro promedio de los aglomerados del diseño factorial 2³, Sin recirculación

Tiempo de atomización, (t _a) (min)	Temperatura del aire, (T ₀) (°C)	Diámetro promedio (mm) (±0.05%)
20	40	0.1682
20	60	0.177
60	40	0.1846
60	60	0.1895

La comparación de los diámetros promedios experimentales obtenidos a las diferentes combinaciones de los niveles de los factores bajo estudio mostrados en la tabla anterior, revela que se obtienen aglomerados con un diámetro promedio mayor cuando los ensayos experimentales se realiza, combinando los niveles superiores de los factores tiempo de atomización y temperatura. Es claro, que al incrementar el tiempo de atomización se tiene en el sistema una mayor concentración de líquido, consiguiendo con esto una mayor área del lecho húmedo, resultando en una mayor formación de puentes líquidos que mantienen unidos a los sólidos una vez que colisionan. Cuando el líquido toca la superficie del sólido, éste debe dispersarse, sobre ésta, seguido por un proceso de agotamiento de líquido. Cuando el gránulo se encuentra saturado de líquido, se establecen puentes líquidos en los puntos de contacto entre los sólidos los cuales se transforman en puentes sólidos permanentes debido a la acción del aire caliente. Cabe resaltar, que la intensidad de mezclado del lecho se ve afectada tanto por el incremento en la humedad así como del crecimiento del sólido. Este evento, afecta de manera directa la distribución del tamaño de los sólidos. La falta de renovación de la superficie del lecho, impide que el líquido aglomerante sea distribuido adecuadamente a través de este, ocasionando que en

diversas zonas del lecho se concentren mayores cantidades de líquido promoviendo la formación de grumos de mayor tamaño reflejándose en distribuciones amplias de tamaño.

4.3.1.2. Experimentos del diseño factorial 2^3 , Con recirculación

En la Tabla 4.10 se presentan los diámetros promedio experimentales del diseño factorial 2^3 (DF 2^3) obtenidos a los diferentes niveles de los factores de estudio.

Tabla 4.10. Diámetro promedio de los aglomerados del diseño factorial 2^3 , Con recirculación

Tiempo de atomización, t_a (min)	Temperatura del aire, T_0 (°C)	Diámetro promedio (mm) ($\pm 0.05\%$)
20	40	0.1947
20	60	0.1503
60	40	0.1989
60	60	0.1701

Puede observarse que los diámetros experimentales obtenidos a baja temperatura y recirculando los sólidos elutriados son de un tamaño mayor a aquellos obtenidos a alta temperatura y no recirculando los sólidos al sistema. Al recircular los sólidos elutriados al sistema, la interacción de estos y las gotas de líquido atomizado se prolonga por un mayor tiempo, favoreciéndose de este modo la formación de una concentración mayor de núcleos, presumiblemente, dominando así el proceso de nucleación por inmersión (Kumar, 2006). Estos núcleos sirven de base para un crecimiento posterior cuando éstos colisionan y quedan unidos con sólidos de mayor tamaño que componen el lecho favoreciendo el proceso de agregación. Recordando que el proceso de aglomeración se ve influenciado por la distribución de tamaños de partículas (Lister and Waters 1988,1990) se percibe el efecto de contar con sólidos de menor tamaño, pues resulta en un aglomerado más grande dado que las partículas pequeñas se deslizan dentro de las separaciones creadas en la unión entre partículas de mayor tamaño, actuando como un puente para la fase húmeda favoreciendo la coalescencia entre ellos (figura 1.8). Así mismo, puede observarse un efecto favorable en el crecimiento del aglomerado cuando el ensayo se realiza al menor nivel de temperatura.

4.3.1.3. Análisis de varianza para el diseño factorial 2³

En la Tabla 4.11 se presenta el resumen del análisis de varianza (ANOVA) aplicado a los resultados obtenidos del diseño factorial 2³.

Tabla 4.11. Análisis de varianza para el diseño factorial 2³

Fuente de variación	Suma de cuadrados	Grados de libertad	Cuadrado medio	Valor de F _O	Valor de F _{teórica}	Valor P
Tiempo (t _a)	0.00035	1	0.00035	15.20	10.13	0.0292♦
Temp (T _o)	0.000442	1	0.000442	19.23	10.13	0.0214♦
Recirc (R)	0.000003	1	0.0000035	0.1521	10.13	0.7195
Temp*Recirc (T _o *R)	0.000944	1	0.000944	41.04	10.13	0.0075♦
Error	0.000068	3	0.000023			
Total	0.001807	7				

♦ indica factor estadísticamente significativo

Al analizar la magnitud de los valores de F_O contra los de F_{teórica} obtenidos para los diferentes factores del proceso, se determina la influencia de los factores tiempo de atomización del líquido aglomerante así como de la temperatura, los cuales resultaron ser estadísticamente significativas en el crecimiento del aglomerado. Para el factor tiempo de atomización, $F_o = 15.20 > F_{teórica} = 10.13$ ($P \leq 0.05$) y para el factor temperatura, $F_o = 19.23 > F_{teórica} = 10.13$ ($P \leq 0.05$) respectivamente. Cabe resaltar, que aunque el efecto individual del parámetro recirculación no influye en el crecimiento del aglomerado $F_o = 0.1521 < F_{teórica} = 10.13$ ($P \geq 0.05$) existe una influencia de este factor cuando interacciona con la temperatura $F_o = 15.20 > F_{teórica} = 10.13$ ($P \leq 0.05$). Por consiguiente, puede indicarse, que la variabilidad en el diámetro promedio del aglomerado está relacionada con los diferentes factores estadísticamente significativos pues al variar los niveles de los factores inciden en el tamaño del aglomerado. Un aspecto importante a analizar es la combinación entre el factor recirculación y temperatura, ya que, al variar el nivel de temperatura considerando ya sea la recirculación de sólidos o no, influye de manera significativa en el comportamiento de crecimiento del aglomerado.

4.3.1.4. Interacciones

Para tener una idea de la influencia de ésta interacción, consideremos los perfiles que se muestran en la Figura 4.6 se puede observar una tendencia a obtener aglomerados con un diámetro promedio menor cuando el ensayo experimental se realiza al nivel superior de temperatura y sin recircular la fracción de sólidos elutriados. Situación que se puede explicar debido a que los sólidos experimentan un calentamiento mayor, impulsado por la acción del aire caliente, lo cual provoca que las gotas de líquido que llegan a la superficie del sólido se evaporen, impidiendo la formación de puentes líquidos necesarios para la agregación con otros sólidos, minimizando el crecimiento del aglomerado.

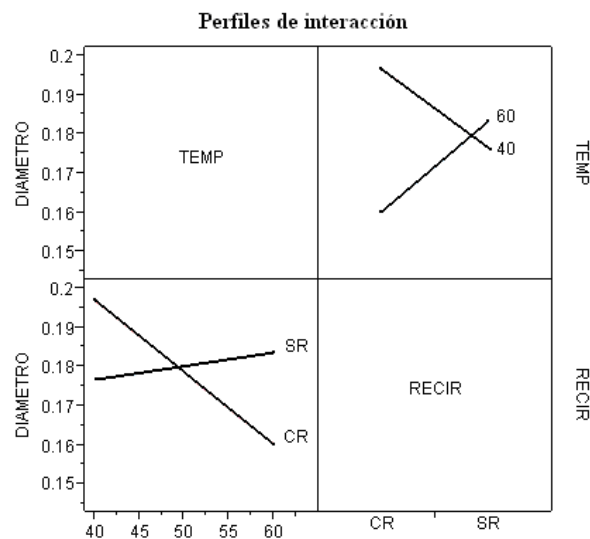


Figura 4.6. Perfiles de interacción entre los factores temperatura y recirculación de sólidos

Sin embargo, cuando el ensayo experimental se realiza combinando la recirculación de sólidos y baja temperatura se obtiene el mayor crecimiento del aglomerado. A una baja temperatura se presenta una menor evaporación del líquido, provocando con esto, que la superficie del sólido permanezca humedecida por más tiempo. Así mismo, al retornar nuevamente la fracción de sólidos elutriados al sistema, se induce la interacción entre los sólidos de mayor tamaño y la fracción recirculada, logrando la agregación entre ellos. Los sólidos de menor tamaño promueven un mayor crecimiento de los aglomerados ya que éstos ocupan los espacios intersticiales formados por los de mayor tamaño, actuando como una base para que el líquido ascienda y humedezca la superficie de éste agregado, el cual interactuará con otros sólidos del lecho incrementando su tamaño. Dado que el diseño experimental es una configuración de puntos en el espacio de los factores (parámetros de operación) éste, tiene asociado un modelo que predice el comportamiento de la variable respuesta al variar los

factores estadísticamente significativos. Considerando los factores estadísticamente significativos de la Tabla 4.11, se presenta a continuación el modelo general de predicción asociado al diseño experimental 2³ el cual viene dado por la ecuación (23). El paquete estadístico JMP-7 emitió el modelo estadístico sin codificar (ver anexo A) en función de los parámetros de operación significativos que afectan el crecimiento del aglomerado.

$$\bar{d}_p = 0.17916 + 6.6125e^{-3} * \left(\frac{TIEMPO - 40}{20} \right) - 7.437e^{-3} * \left(\frac{TEMP - 50}{10} \right) + \left(\frac{TEMP - 50}{10} \right) * (recir \left[\begin{array}{l} "CR" \Rightarrow -1.086e^{-2} \\ "SR" \Rightarrow 1.086e^{-2} \end{array} \right]) \quad (61)$$

$$+ (recir \left[\begin{array}{l} "CR" \Rightarrow -6.625e^{-4} \\ "SR" \Rightarrow 6.625e^{-4} \end{array} \right])$$

Dónde: Tiempo; representa el nivel del tiempo de atomización; Temp; representa el nivel de temperatura del aire en la cámara de fluidización (40, 60°C); y las variables “CR”, “SR”; indica que el ensayo experimental se realizó con recirculación y/o sin recirculación de los sólidos respectivamente.

4.3.1.5. Modelo de diseños de experimentos

El modelo estadístico simplificado sin codificar que predice el crecimiento del aglomerado considerando la recirculación de la fracción de sólidos elutriados es:

$$\bar{d}_p = 0.2568 + 3.3062e^{-4} * TIEMPO - 1.8370e^{-3} * TEMP \quad (62)$$

Mientras que el modelo estadístico simplificado sin codificar que predice el crecimiento del aglomerado sin considerar la no recirculación de la fracción de sólidos elutriados es el siguiente

$$\bar{d}_p = 0.1495 + 3.3062e^{-4} * TIEMPO + 3.4250e^{-4} * TEMP \quad (63)$$

Por consiguiente, en la Tabla 4.12 se muestran tanto los diámetros promedio experimentales así como los estimados por el modelo de experimentos, siendo estos últimos predichos de manera satisfactoria (Montgomery, 2007).

Tabla 4.12. Diámetros predichos por el modelo de experimentos

Tiempo (min)	Temp (°C)	Recirc (R)	Diámetro Experimental (mm)	Diámetro predicho (mm)	Residual
20	40	CR	0.1947	0.1901875	0.0045125
20	40	SR	0.1682	0.1697875	-0.0015875
20	60	CR	0.1503	0.1535875	-0.0032875
20	60	SR	0.177	0.1766375	0.0003625
60	40	CR	0.1989	0.2034125	-0.0045125
60	40	SR	0.1846	0.1830125	0.0015875
60	60	CR	0.1701	0.1668125	0.0032875
60	60	SR	0.1895	0.1898625	-0.0003625

CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación

4.4. Análisis de las predicciones del balance de población discretizado para los parámetros del diseño factorial completamente aleatorio.

Para la predicción del comportamiento dinámico del proceso de aglomeración cuando éste es influenciado por los cambios en los niveles de los parámetros de operación: tiempo de atomización de líquido, t_a (20 min y 60 min); temperatura del aire de alimentación, T_0 (60°C y 80°C) y recirculación de sólidos, R (Con recirculación, CR y Sin recirculación, SR), se empleó un modelo de balance de población discretizado definido por las ecuaciones (54–60), que describen la evolución en el número de partículas durante el tiempo de aglomeración. El modelo considera expresiones cinéticas para los procesos de nucleación, β_{nuc} , agregación β_{agreg} y crecimiento β_{crec} , los cuales fueron seleccionados de diversos artículos que trabajaron con un sistema similar (Hounslow, 1988; Tan et al., 2005). El modelo empleado para describir cómo cambia la distribución de tamaños de partículas del sistema como función del tiempo, es probado contra las observaciones experimentales obtenidas por medio de un diseño factorial completamente aleatorio que averiguó los efectos de los niveles de los parámetros anteriormente descritos sobre la aglomeración de sólidos finos de tamarindo para ajustar los parámetros desconocidos de los diferentes términos cinéticos involucrados. En la Tabla 4.13 se muestran los valores de las constantes cinéticas que fueron estimadas utilizando las observaciones correspondientes a cada corrida experimental en cuestión. La magnitud de estas constantes cinéticas se relacionó directamente con la contribución de los diferentes procesos individuales a la aglomeración

considerados en el modelo. Los valores estimados presentaron un 95% de confiabilidad y no presentaron una correlación estadística entre ellas ($CE < 0.8$).

Tabla 4.13. Parámetros cinéticos de predicción para el balance de población discretizado del DFCA

Parámetro cinéticos Estimado con un 95% de confiabilidad	$T_0=60^\circ\text{C};$ $t_a=20$ min; CR	$T_0=60^\circ\text{C};$ $t_a=60$ min; CR	$T_0=80^\circ\text{C};$ $t_a=60$ min; CR	$T_0=80^\circ\text{C};$ $t_a=60$ min; SR
β_{nuc} ($\text{m}^{-5/3}\text{s}^{-1}$)	2.29e-02	5.19e-04	1.79e-04	8.69e-04
β_{agreg} ($\text{m}^{-1/2}\text{s}^{-1}$)	1.38e-04	1.38e-03	7.08e-03	9.15e-03
β_{crec} ($\text{m}^{-1}\text{s}^{-1}$)	7.32e-12	2.11e-8	5.15e-07	3.15e-07

CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación

Para una temperatura de 60°C , considerando la recirculación de sólidos CR y un tiempo de atomización de 20 y 60 minutos, la magnitud de las constantes cinéticas para los procesos de nucleación, agregación y crecimiento tiene un comportamiento decreciente respectivamente $\beta_{nuc} > \beta_{agreg} > \beta_{crec}$. Esta tendencia indica que a estas condiciones de operación los procesos individuales de nucleación y agregación controlan el proceso de aglomeración. Este comportamiento puede explicarse de la siguiente manera: la aglomeración puede ocurrir ya sea por nucleación (un evento de aglomeración envolviendo tres o más partículas sólidas) o aglomeración binaria (evento de aglomeración envolviendo dos partículas). En el caso de nucleación, se ha encontrado una relación entre el tamaño de gota y el tamaño de la partícula formada (Waldie, 1991). El régimen de nucleación podrá dominar cuando el tamaño de gota es mayor que el de la partícula, lo cual se considera en este sistema a través de la descripción hecha en la página 80 (Coalescencia de las gotas de líquido atomizadas). Cada gota produce una partícula grande (aglomerado inicial), y la tasa de crecimiento es alta. En algún tiempo los sólidos finos han sido empleados, así que el periodo de nucleación no se prolonga. Una vez formado el aglomerado inicial, se puede considerar que este posee una estructura porosa, por lo que existen espacios entre las partículas que lo forman para ser llenados con líquido a su retorno a la zona de atomización. El líquido puede ser evaporado por la acción del aire caliente y puede ser succionado dentro de las partículas dejando seca su superficie. Dependiendo de las condiciones de atomización y secado, es posible que los poros de los agregados se saturen de líquido, provocando el humedecimiento de la superficie, por lo que el crecimiento podrá continuar por aglomeración. Puede considerarse que el crecimiento en esta región es más baja que en la de nucleación. Si las fuerzas de los puentes líquidos no son tan fuertes para mantener unidos a los aglomerados, es posible que el aglomerado incremente su tamaño por

crecimiento, por lo que se puede considerar que este régimen de crecimiento sea lento y no significativo con respecto al de nucleación y agregación. Este comportamiento puede visualizarse en la dinámica del proceso de aglomeración para el diseño factorial completamente aleatorio. El análisis de las constantes cinéticas revela que las variaciones en la temperatura y la operación del sistema con recirculación y sin recirculación de sólidos tienen un efecto no tan claro de evidenciar en la aglomeración de los sólidos de tamarindo. Así, el tiempo de atomización es el parámetro del proceso que influye en mayor grado en el crecimiento del aglomerado, lo cual es corroborado con el análisis de varianza, pudiendo decir que: a tiempos de atomización cortos, el proceso de nucleación es dominante; mientras que a tiempos de atomización largos lo es el proceso de agregación.

4.4.1. Dinámicas del proceso de aglomeración del diseño factorial completamente aleatorio.

La Figura 4.7 muestra una comparación entre predicciones y observaciones de la distribución de tamaño de las partículas para dos diferentes tiempos de atomización, considerando para ambos casos la misma distribución de partículas inicial, la misma temperatura y condiciones de recirculación de elutriados (CR). Cabe mencionar que las gráficas se presentan mostrando la fracción masa de sólidos contra radio de partícula. Esta forma de expresarlo reside al hecho de que después del proceso de aglomeración, la fracción masa de sólidos incrementa, por lo que el número de sólidos correspondientes a ese radio incrementa. La Figura 4.7a muestra la dinámica de aglomeración para un tiempo de atomización de 20 minutos. El modelo predice satisfactoriamente las observaciones al final de la operación del granulador, donde se observa la dinámica de formación de núcleos como proceso dominante en la aglomeración. La Figura 4.7b muestra una comparación entre la distribución de partículas a dos tiempos de atomización: 20 y 60 minutos. El modelo además de predecir las observaciones satisfactoriamente, concuerda con lo expuesto anteriormente en términos de las constantes cinéticas y el análisis de varianza: la variación del tiempo de atomización tiene el mayor efecto en el proceso de aglomeración. Aquí, la nucleación es el proceso dominante a tiempos de atomización bajos mientras que la agregación lo es a tiempos de atomización altos.

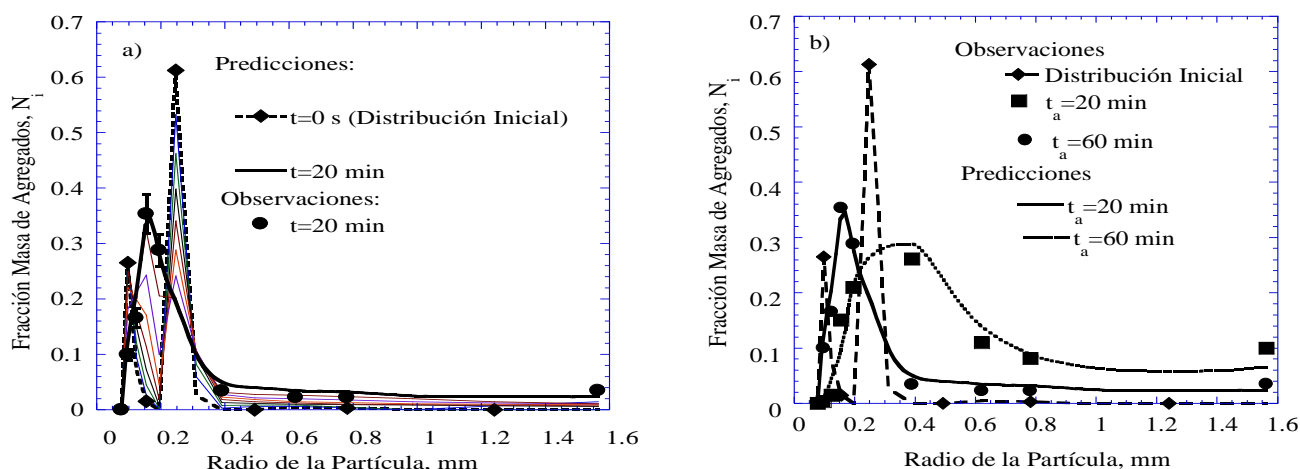


Figura 4.7. a) Comparación entre predicciones y observaciones para un $t_a = 20$ min, $T_0 = 60^\circ\text{C}$ y CR; y b) Comparación entre predicciones y observaciones para dos diferentes tiempos de atomización a la misma temperatura ($T_0 = 60^\circ\text{C}$) y CR: $t_a = 20$ min y $t_a = 60$ min (CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación).

4.5. Análisis de las predicciones del balance de población discretizado para diseño factorial 2^3

Para la predicción del comportamiento dinámico del proceso de aglomeración cuando éste es influenciado por los cambios en los niveles de los parámetros de operación: tiempo de atomización de líquido, t_a (20 min y 60 min), temperatura del aire, T_0 (60°C y 80°C), recirculación de sólidos elutriados, R (CR y SR) se empleó un modelo de balance de población discretizado definido por las ecuaciones (54-60) que describen la evolución en el número de partículas durante el tiempo de aglomeración. El modelo considera expresiones cinéticas para los procesos de nucleación, β_{nuc} , agregación β_{agreg} y crecimiento β_{crec} (Hounslow, 1988; Tan et al., 2005). El modelo empleado para describir cómo cambia la distribución de tamaños de partículas del sistema como función del tiempo es probado contra las observaciones experimentales obtenidas por medio de un diseño factorial 2^3 , cuya significancia estadística se determinó a través de un análisis de varianza. Las observaciones experimentales fueron empleadas para ajustar los parámetros (anexo B) desconocidos de los diferentes términos cinéticos involucrados, relacionados con los diferentes procesos de aglomeración. En la Tabla 4.14 se muestran las magnitudes de las constantes cinéticas β_{nuc} , β_{agreg} y β_{crec} que fueron estimadas empleando las observaciones correspondientes a cada corrida experimental. La magnitud de estas constantes se relacionan directamente con la contribución de los procesos de aglomeración considerados en el modelo: nucleación, agregación y crecimiento respectivamente. Los valores estimados presentaron un 95% de confiabilidad y no presentaron una correlación estadística entre ellas ($CE < 0.8$).

Tabla 4.14. Parámetros cinéticos de predicción para el balance de población discretizado para diseño el diseño factorial 2^3

Parámetro cinéticos Estimado con un 95% de confianza	$T_0=40^\circ\text{C};$ $t_a=20$ min; CR	$T_0=40^\circ\text{C};$ $t_a=20$ min; SR	$T_0=60^\circ\text{C};$ $t_a=20$ min; CR	$T_0=60^\circ\text{C};$ $t_a=20$ min; SR
β_{nuc} ($\text{m}^{-5/3}\text{s}^{-1}$)	5.07e-02	1.08e-02	2.15e-03	2.58e-04
β_{agreg} ($\text{m}^{-1/2}\text{s}^{-1}$)	3.28e-03	5.84e-03	1.96e-04	1.32e-04
β_{crec} ($\text{m}^{-1}\text{s}^{-1}$)	5.246e-04	1.30e-04	1.15e-05	2.91e-06
Parámetro cinéticos Estimado con un 95% de confianza	$T_0=40^\circ\text{C};$ $t_a=60$ min; CR	$T_0=40^\circ\text{C};$ $t_a=60$ min; SR	$T_0=60^\circ\text{C};$ $t_a=60$ min; CR	$T_0=60^\circ\text{C};$ $t_a=60$ min; SR
β_{nuc} ($\text{m}^{-5/3}\text{s}^{-1}$)	4.35e-01	5.20e-02	2.67e-03	2.07e-03
β_{agreg} ($\text{m}^{-1/2}\text{s}^{-1}$)	6.32e-02	1.04e-02	7.19e-04	6.53e-04
β_{crec} ($\text{m}^{-1}\text{s}^{-1}$)	6.66e-04	7.09e-04	9.15e-06	1.15e-07

CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación

Cuando el granulador se operó a tiempos bajos de atomización del líquido (20 min) y variando la temperatura (40-60°C) y recirculación de sólidos elutriados (CR y SR), el proceso de aglomeración es favorecido por los procesos de nucleación y agregación con respecto al de crecimiento, tal y como se revela por el valor numérico las constantes cinéticas $\beta_n > \beta_a$ and $\beta_a > \beta_g$. Sin embargo, puede visualizarse un comportamiento descendente en la magnitud de las constantes cinéticas con el incremento en el nivel de temperatura (60°C). Este decremento, puede deberse a que una vez formado el aglomerado inicial, el líquido presente en la superficie de éste puede ser evaporado por la acción del aire que posee una temperatura mayor, secando la superficie del aglomerado e impidiendo la coalescencia de los aglomerados, dando por resultado una disminución en el proceso de agregación. Cabe resaltar, que los resultados obtenidos vía análisis de varianza, indica la interacción entre la temperatura y la recirculación de sólidos. Inicialmente, el régimen de nucleación domina cuando el tamaño de gota es mayor que el de la partícula sólida. La gota al ser de mayor tamaño engulle a los sólidos, por consiguiente, cada gota produce una partícula grande (aglomerado inicial) y el proceso de crecimiento es alto. Sin embargo, en algún tiempo, los sólidos finos han sido empleados, así que el periodo de nucleación no se prolonga. Con el retorno de este aglomerado inicial a la zona de atomización, este puede captar líquido que es succionado hacia el interior. Dependiendo de las condiciones de atomización y secado, es posible que los espacios vacíos de los aglomerados se saturen con el líquido, por lo que el crecimiento podrá continuar por agregación. Cabe resaltar, que la presencia de sólidos de menor tamaño en el aglomerado, funcionan como puentes para la fase líquida, por lo que

el líquido puede humedecer en menor tiempo la superficie de éste. La interacción entre la temperatura (40°C) y la recirculación de sólidos (CR) favorece los procesos de nucleación y agregación tal y como lo describe el análisis de varianza y la gráfica de interacciones (Figura 4.6). Una comparación entre los parámetros estimados y la fracción de masa observada de agregados para todos los experimentos indicaron que cuando el proceso de nucleación resulto dominante, $\beta_n > \beta_a$ y $\beta_n > \beta_g$, la fracción masa de agregados observados en la Figura 4.8 es superior en tamaños de partículas pequeños. Además, cuando β_a aumentó, el proceso de agregación es favorecido y, por lo tanto, la fracción de masa observada de agregados aumentó para tamaños de partículas más grandes. Los valores más bajos estimados de β_g en todos los estudios de casos experimentales sugirieron que el mecanismo de crecimiento fue insignificante en el sistema estudiado. Finalmente, puede expresarse que el proceso de aglomeración bajo estudio es gobernado principalmente por los procesos de nucleación y agregación.

4.5.1. Dinámicas del proceso de aglomeración del diseño factorial 2³.

La Figura 4.8 muestra la comparación entre las predicciones y observaciones experimentales. La Figura 4.8a muestra la distribución inicial de tamaños de sólidos. Puede observarse que esta distribución de tamaños no la compone sólidos correspondientes a los intervalos superiores. En la Figura 4.8b-c se muestran los comportamientos dinámicos del proceso de aglomeración para los niveles inferiores de temperatura (40°C), tiempo de atomización (20 min) y considerando la influencia de recircular o no la fracción de sólidos CR y SR respectivamente. En ambas situaciones, el modelo discretizado predice de manera adecuada las observaciones experimentales.

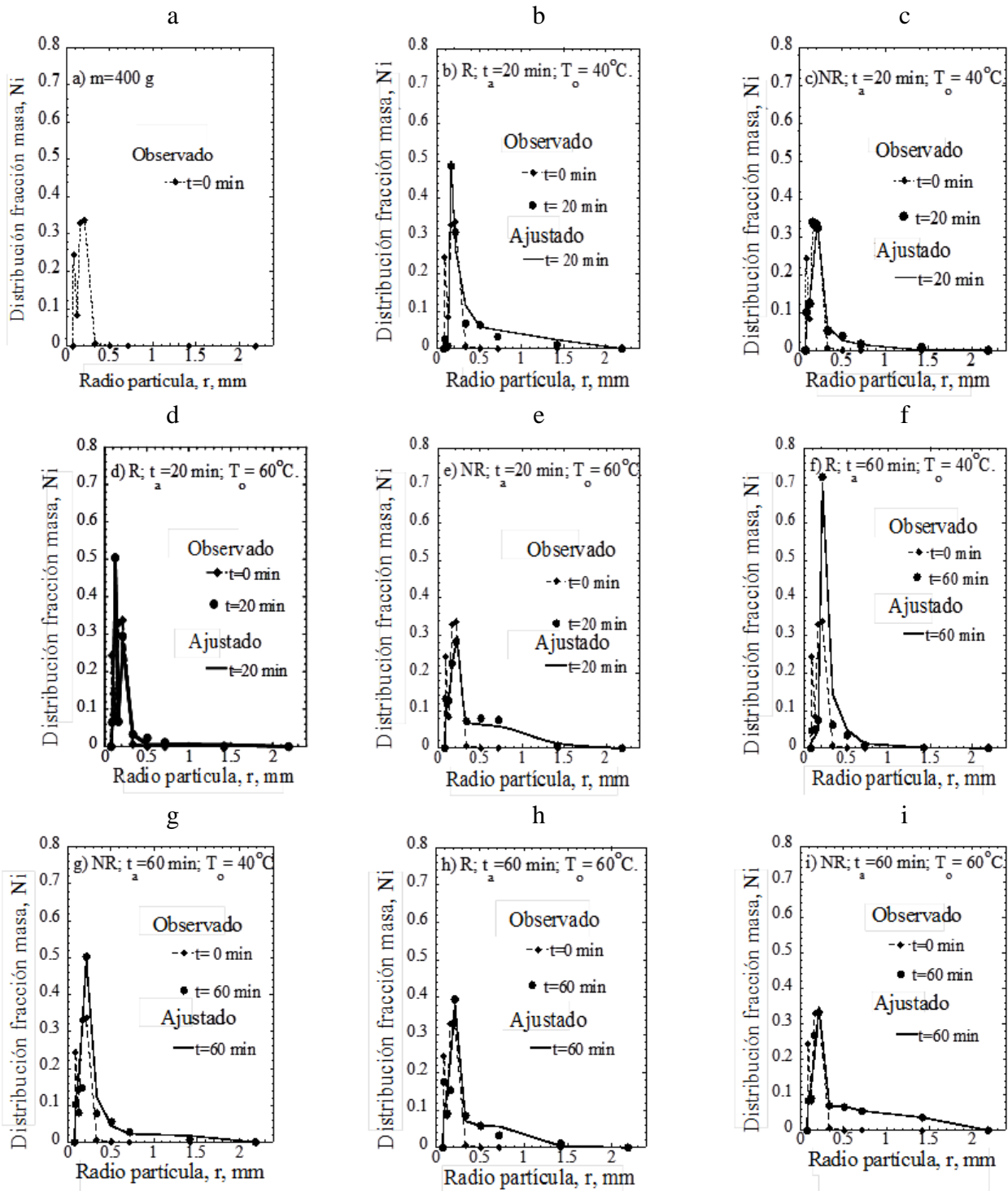


Figura 4.8. a) Comparación entre predicciones y observaciones para un $t_a = 20$ min, $T_0 = 60^\circ\text{C}$ y CR; y b) Comparación entre predicciones y observaciones para dos diferentes tiempos de atomización a la misma temperatura ($T_0 = 60^\circ\text{C}$) y CR: $t_a = 20$ min y $t_a = 60$ min (CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación)

Se observa una importante influencia de los procesos de nucleación y agregación sobre el proceso de aglomeración cuando se recirculan los sólidos (Figura 4.8b) mientras que, cuando no se recirculan los sólidos decrecen estos procesos. Como se describió inicialmente, la población polidispersa inicial del tamaño de las partículas influye en la etapa inicial de nucleación, esto es, las partículas de menor tamaño interactúan con las gotas de líquido formando los núcleos iniciales. Posteriormente, se presenta la etapa de crecimiento del aglomerado por el proceso de agregación cuando estos núcleos iniciales colisionan con los sólidos de mayor tamaño que componen el lecho (Realpe y Velásquez, 2008). Cabe mencionar, que operar el sistema a baja temperatura (40°C) no se presenta una tasa de evaporación elevada, lo cual permite, que la capa de líquido que recubre a los agregados iniciales permita formar puentes líquidos al colisionar con otros agregados y/o partículas de mayor tamaño favoreciendo el crecimiento del agregado. Además, las distribuciones de tamaño obtenidas bajo estas condiciones experimentales presentan un comportamiento unimodal.

Bajo el mismo tópico se analizan las predicciones que se obtuvieron para el nivel superior de temperatura, considerando nuevamente la recirculación y no recirculación para tiempo cortos de atomización, Figura 4.8d-e respectivamente. Puede observarse el efecto de recircular la fracción de sólidos elutriados al sistema. Este retorno, favorece el proceso de nucleación, pues los sólidos entran a la nuevamente a la zona de atomización, prolongando la interacción entre éstos y las gotas de líquido atomizado promoviendo un mayor dominio del proceso de nucleación. Así mismo, se presenta un desplazamiento de la distribución de hacia los intervalos de mayor tamaño, la cual muestra un comportamiento bimodal. Caso contrario a lo sucedido cuando no se recirculan los sólidos. Para esta situación, al inicio del proceso, se presenta el proceso de nucleación, el cual dura mientras se mantenga en el sistema la fracción de sólidos de menor tamaño que puedan interactuar con las gotas de líquido en la zona de atomización. Agotados éstos, las gotas de líquido interactúan preferentemente con los sólidos de mayor tamaño que componen el lecho que se encuentran en la zona de dispersión. Esta situación promueve la coalescencia entre los núcleos iniciales y sólidos de mayor tamaño siendo el proceso de agregación el dominante. Una elevada temperatura ocasiona una mayor evaporación del líquido, provocando con esto, que los núcleos iniciales se sequen en menor tiempo, evitando la adhesión con otros agregados y/o partículas de mayor tamaño. Esta situación parece favorecer el proceso de nucleación con respecto al proceso de agregación y crecimiento. Analizando la dinámica del proceso de aglomeración para tiempos largos de atomización, nivel inferior de temperatura y recirculando o no los sólidos elutriados, Figuras 4.8f-g se puede observar el efecto significativo que tiene una mayor concentración de líquido en el sistema. Inicialmente, se puede observar el efecto

combinado entre una baja temperatura y la presencia de sólidos de menor tamaño, resaltando el dominio que tiene el proceso de nucleación sobre el de agregación y crecimiento en el proceso de aglomeración.

Existe un desplazamiento en la distribución de tamaño de partícula hacia los intervalos intermedios, pasando de una distribución bimodal a una unimodal. Analizando el efecto que presenta la no recirculación de los sólidos, puede observarse que al inicio del proceso está presente el proceso de nucleación, pero conforme se agota la fracción de sólidos susceptibles de elutriarse, va decayendo. Una vez, agotada la fracción de sólidos elutriables, los núcleos iniciales interactúan con los sólidos que componen el lecho, incrementando su tamaño. Así mismo, estos agregados captarán el líquido atomizado promoviendo con esto que el proceso de agregación sea importante principalmente, en los intervalos superiores. Nuevamente, la distribución pasa de una bimodal a una unimodal. El análisis de las dinámicas del proceso para las condiciones de nivel superior de temperatura, con y sin recirculación de sólidos, Figuras 4.8h-i presentan un comportamiento semejante al caso anteriormente descrito cuando se recirculan los sólidos y cuando no se recirculan. En estas dinámicas, se observa un equilibrio entre los procesos de agregación y nucleación. Dos consideraciones pueden describirse en este caso, primeramente: a este nivel de temperatura existe una mayor evaporación de líquido por lo que las partículas susceptibles de ser elutriadas y que interactúan con las gotas de líquido en la zona de atomización, se secan rápidamente. Debido al retorno de los sólidos, la etapa de formación de agregados iniciales continúa, hasta que éstos se agoten. Estos agregados iniciales interactúan posteriormente con los sólidos de mayor tamaño que componen el lecho, contribuyendo con esto, a que el proceso de agregación sea dominante, y segundo: para el caso de no recircular la fracción de sólidos, al inicio del proceso está presente el proceso de nucleación, éste se mantiene mientras estén presentes sólidos susceptibles de ser elutriados, una vez agotados las gotas de líquido interactúan con los sólidos de mayor tamaño del lecho y los agregados iniciales, de esta forma el proceso de agregación tiene un periodo mayor en el proceso que el de nucleación. Cabe resaltar, que las distribuciones de tamaño para estas condiciones experimentales, muestran un comportamiento bimodal.

4.6. Observación de la morfología de los aglomerados por microscopio estereoscópico.

La Figura 4.9 muestra las imágenes fotográficas obtenidas mediante un microscopio estereoscópico modelo NZ-14T de las partículas iniciales de tamarindo así como de los aglomerados obtenidos a las diferentes condiciones de operación. La Figura 4.9a muestra la imagen de los sólidos iniciales de trabajo. Se puede observar un polvo fino homogéneo de color café característico del fruto de tamarindo. Imágenes de los aglomerados de tamarindo obtenidas al nivel inferior de la temperatura (40°C) variando el tiempo de atomización (20 y 60 min) y el factor recirculación (Con Recirculación y Sin Recirculación) se muestran en la Figura 4.9b-e. En forma general, las imágenes muestran que el aglomerado está constituido por la adhesión de diversas partículas de diferente tamaño, indicando con esto, que el crecimiento del aglomerado es por aglomeración. El aglomerado presenta una geometría cercanamente esférica.

Los aglomerados obtenidos atomizando el líquido aglomerante por un periodo de tiempo de 60 minutos (Figura 4.9c y 4.9e), presentan un mayor tamaño que aquellos obtenidos atomizando el líquido por un periodo de 20 minutos (Figura 4.9b y 4.9c). Este comportamiento se debe que al haber una mayor concentración de líquido en el sistema, el líquido llena el espacio inter-partícula en el aglomerado a tal grado que éste se satura de líquido. Entonces, el líquido puede ser usado para formar puentes entre los aglomerados, llenando nuevamente la porosidad formada entre los aglomerados tal y como lo describe [Goldzal and Bousquet, \(2001\)](#). Cabe resaltar, que este mayor crecimiento se ve favorecido por que no se presenta una elevada evaporación del líquido en el sistema, pues la temperatura a la que se llevó a cabo el proceso no es lo suficientemente alta (40°C). Sin embargo, no se puede describir un claro efecto de la recirculación de sólidos.

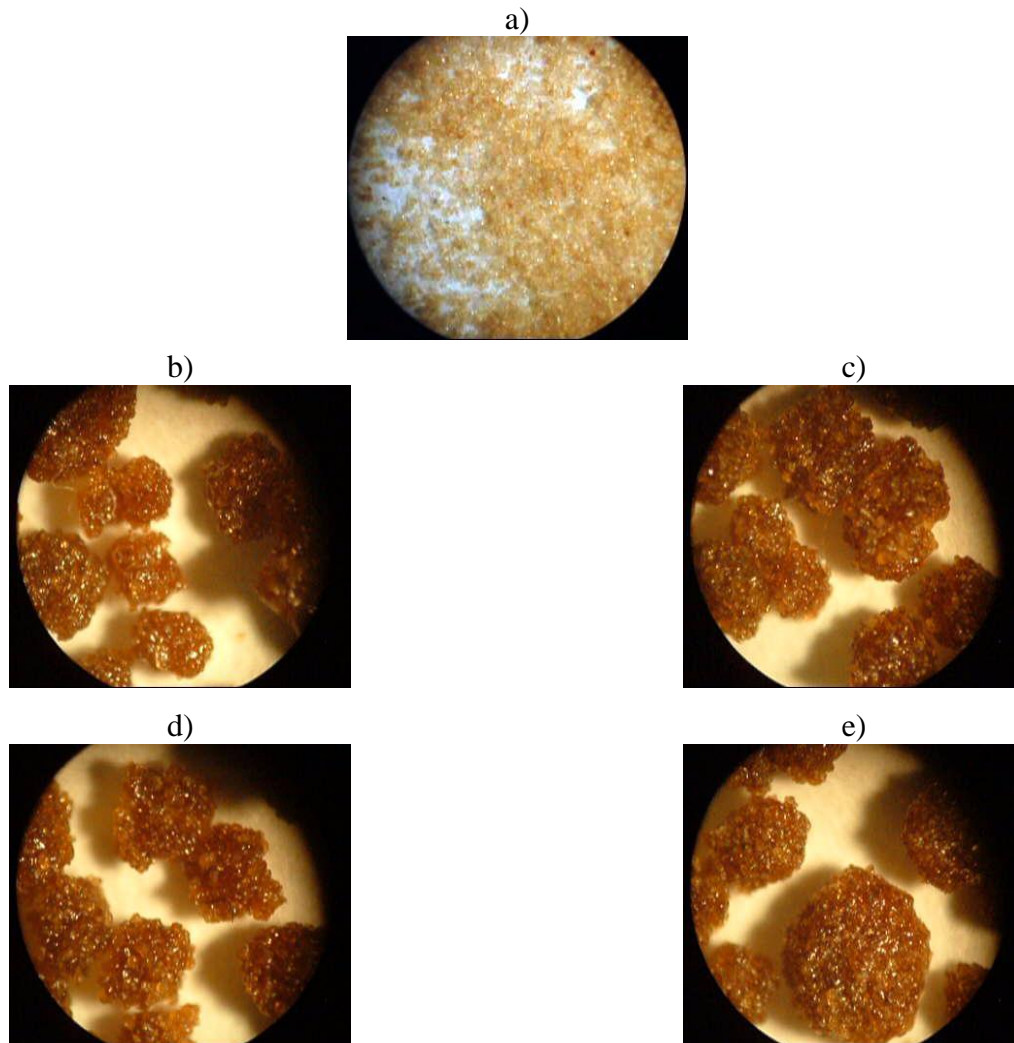


Figura 4.9. Imágenes estereoscópicas de los aglomerados obtenidos a los niveles superior e inferior del factor tiempo, con recirculación y sin recirculación de sólidos y nivel inferior de temperatura: a) sólidos iniciales; b) 20 min, 40°C, CR; c) 60 min, 40°C, CR; d) 20 min, 40°C, SR; e) 60 min, 40°C, SR. (CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación)

En la figura 4.10 se presentan las imágenes de los aglomerados de tamarindo obtenidos al nivel superior de temperatura (60°C), variando tanto el tiempo de atomización (20 y 60 minutos) como la recirculación de los sólidos elutriados (Con recirculación y Sin recirculación). Nuevamente se aprecia que el aglomerado está constituido por la adhesión de diversas partículas de diferente tamaño, indicando con esto que el crecimiento del aglomerado es por aglomeración. No obstante, los aglomerados obtenidos bajo las condiciones de tiempo de atomización de líquido y recirculación de sólidos antes descritas, aparentemente presentan un tamaño similar, lo cual puede deberse

preferentemente al efecto de la temperatura, ya que a la temperatura de 60°C se presenta una mayor evaporación del líquido. Al haber una mayor evaporación, el aglomerado no alcanza el estado de saturación de líquido, por lo que el líquido que logra ser captado es el suficiente para logra formar los puentes líquidos indispensables para mantener a las partículas unidas, dejando los espacios interpartícula libres de líquido, por lo que el aglomerado llega a su tamaño crítico final. En términos del efecto de la recirculación de sólidos elutriados no hay una clara evidencia del efecto de éste factor sobre el crecimiento del aglomerado.

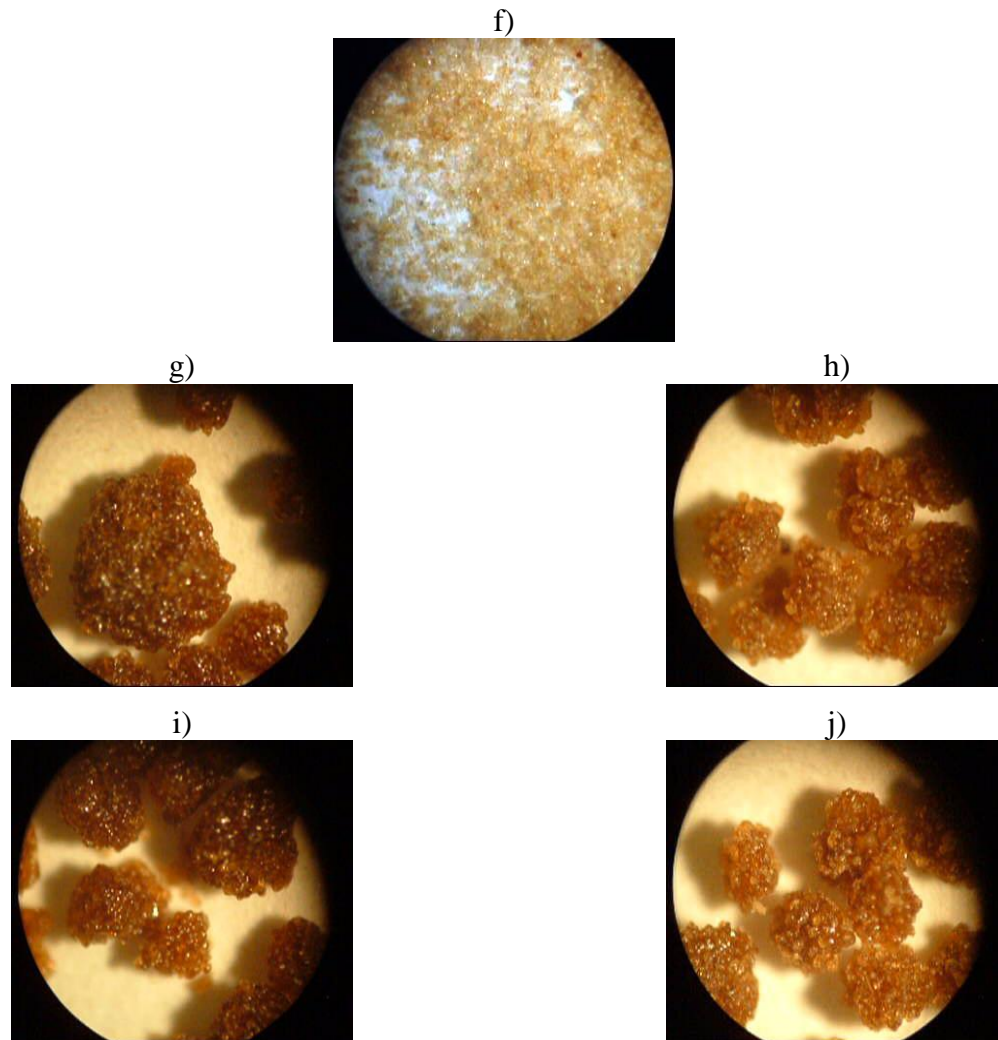


Figura 4.10. Imágenes estereoscópicas de los aglomerados obtenidos a los niveles superior e inferior del factor tiempo, con recirculación y sin recirculación de sólidos y nivel superior de temperatura: f) sólidos iniciales; g) 20 min, 60°C, CR; h) 60 min, 60°C, CR; i) 20 min, 60°C, SR; j) 60 min, 60°C, SR. (CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación)

4.7. Observación de la morfología de los aglomerados por microscopía SEM

La Figura 4.11 muestra la imagen de las partículas iniciales de tamarindo empleadas para la obtención de los aglomerados. Puede observarse un polvo fino con un tamaño de partícula homogéneo, no porosa además de presentar una estructura cercanamente esférica. En la figura 4.11b se muestra la imagen del aglomerado obtenido a una temperatura de 40°C, tiempo de atomización de 20 minutos y considerando la recirculación de sólidos elutriados. Se puede observar que el aglomerado está constituido por la unión de diversas partículas, indicando con esto, que el crecimiento del aglomerado es por aglomeración. Sobre la superficie del aglomerado se visualizan pequeñas depresiones, los cuales no deben considerarse como poros. Así mismo, el aglomerado presenta una superficie continua de acuerdo a lo reportado por [Dullien, \(1992\)](#). Esta característica, puede deberse a la disolución de los componentes solubles (azúcares) que forman parte de la composición de los polvos de tamarindo. En la figura 4.11c se muestra la imagen del aglomerado obtenido a un tiempo de atomización de 60 minutos, 40°C y Con recirculación (CR). Se puede observar que el aglomerado está constituido por la unión nuevamente de partículas de diversos tamaños. Así mismo, presenta una estructura similar presentada por el aglomerado de la Figura 11b. Sin embargo, éste es de mayor tamaño que el obtenido cuando se atomiza el líquido por 20 minutos, 40°C, CR. Esta característica, se puede justificar debido que al haber una mayor concentración de líquido en el sistema, el líquido llena el espacio inter-partícula en el aglomerado a tal grado que éste se satura de líquido, de tal forma, el líquido puede ser usado para formar puentes entre los aglomerados, llenando nuevamente de líquido el espacio intersticial como lo describe [Goldzal and Bousquet, \(2001\)](#). Éste mayor crecimiento se ve favorecido por que no se presenta una elevada evaporación del líquido en el sistema, pues la temperatura a la que se llevó a cabo el proceso no es lo suficientemente alta. En términos del efecto de la recirculación de sólidos elutriados, no hay una clara evidencia del efecto de éste factor sobre el crecimiento del aglomerado.

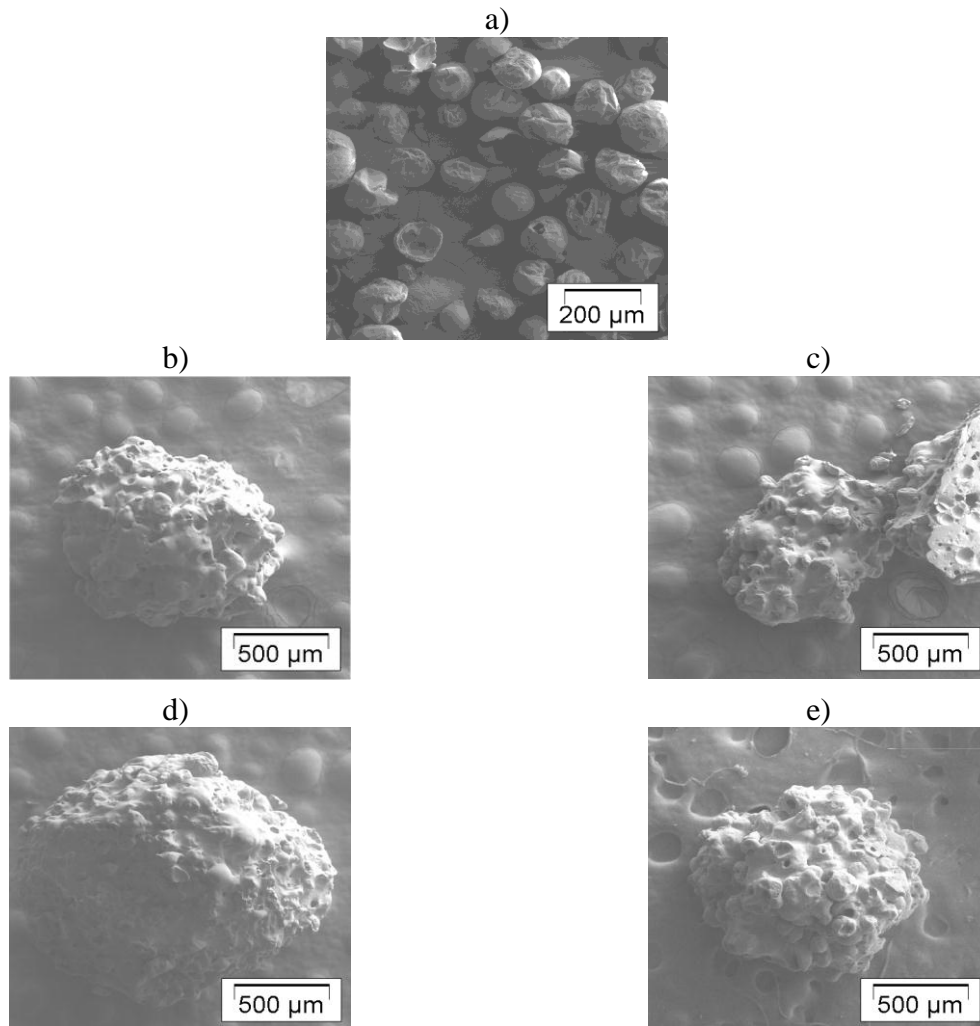


Figura 4.11. Imágenes SEM de los aglomerados a diferentes combinaciones de los factores de estudio a) sólidos iniciales; b) 20 min, 40°C, CR; c) 60 min, 40°C, CR; d) 20 min, 40°C, S/R; e) 60 min, 40°C, SR. (CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación)

En la Figura 4.12 se presenta el corte transversal del aglomerado correspondiente a las mismas condiciones experimentales de las fotografías anteriores. En éstas, se puede apreciar una superficie continua originada por la disolución de los azúcares que forman parte de los polvos de tamarindo, la cual inicia desde la parte interna del aglomerado y se extiende hacia la superficie del aglomerado. Igualmente, se puede observar una gran cantidad de depresiones las cuales se pudieron formar probablemente por la presencia de aire atrapado. En términos del efecto de la recirculación de sólidos elutriados no hay una clara evidencia del efecto de éste factor sobre el crecimiento del aglomerado.

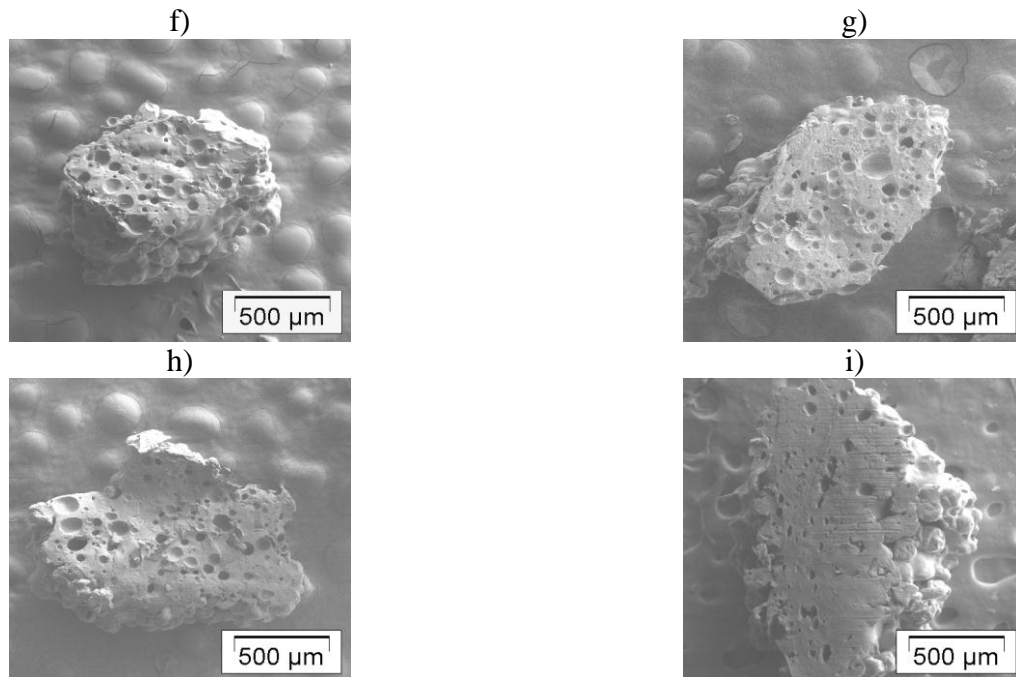


Figura 4.12. Imágenes SEM del corte transversal de los aglomerados a diferentes combinaciones de los factores de estudio f) 20 min, 40°C, CR, g) 20 min, 40°C, SR, h) 60 min, 40°C, CR, i) 60 min, 40°C, SR. (CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación)

En la Figura 4.13 se presentan las imágenes SEM para los aglomerados obtenidos para el diseño factorial 2^3 al nivel superior de temperatura (60°C o 40°C) variando el tiempo de atomización y el factor recirculación. La Figura 4.13i muestra la imagen de las partículas iniciales de tamarindo empleadas para la obtención de los aglomerados. Puede observarse un polvo fino, con un tamaño de partícula homogéneo y no presentan poros visibles. Las imágenes 4.13j y 4.13k muestran los aglomerados obtenidos a las condiciones de temperatura de 60°C y recirculando los sólidos elutriados, las cuales se mantuvieron fijas, mientras se varían los tiempos de atomización (20 y 60 minutos). Estas imágenes muestran evidencia que los aglomerados obtenidos están constituido por la adhesión de diversas partículas de diferentes tamaños, indicando nuevamente, que el crecimiento del aglomerado es por aglomeración. Así mismo, presentan una geometría cercanamente esférica. Los aglomerados obtenidos bajo éstas condiciones tienen un mayor tamaño que los obtenidos bajo las mismas condiciones anteriormente descritas pero sin recircular los sólidos elutriados (Figura 4.13l y 4.13m). La superficie de los aglomerados presenta una estructura continua la cual se puede considerar que es formada a partir de la disolución de los componentes solubles del tamarindo. Así mismo, puede distinguirse que en la superficie se encuentran sólidos de diferente tamaño, lo cual confirma que el crecimiento es por aglomeración. No obstante, la temperatura a la cual se obtuvieron éstos aglomerados

es elevada y por ende se pudo presentar una mayor evaporación del líquido, puede considerarse que existe una influencia de la interacción entre las recirculación de sólidos y temperatura, recordando que al emplear población polidispersa de sólidos, se tiene que los sólidos de menos tamaño hacen la función de puentes entre la fase líquida presente en el aglomerado y los sólidos, contribuyendo al engrandecimiento del aglomerado.

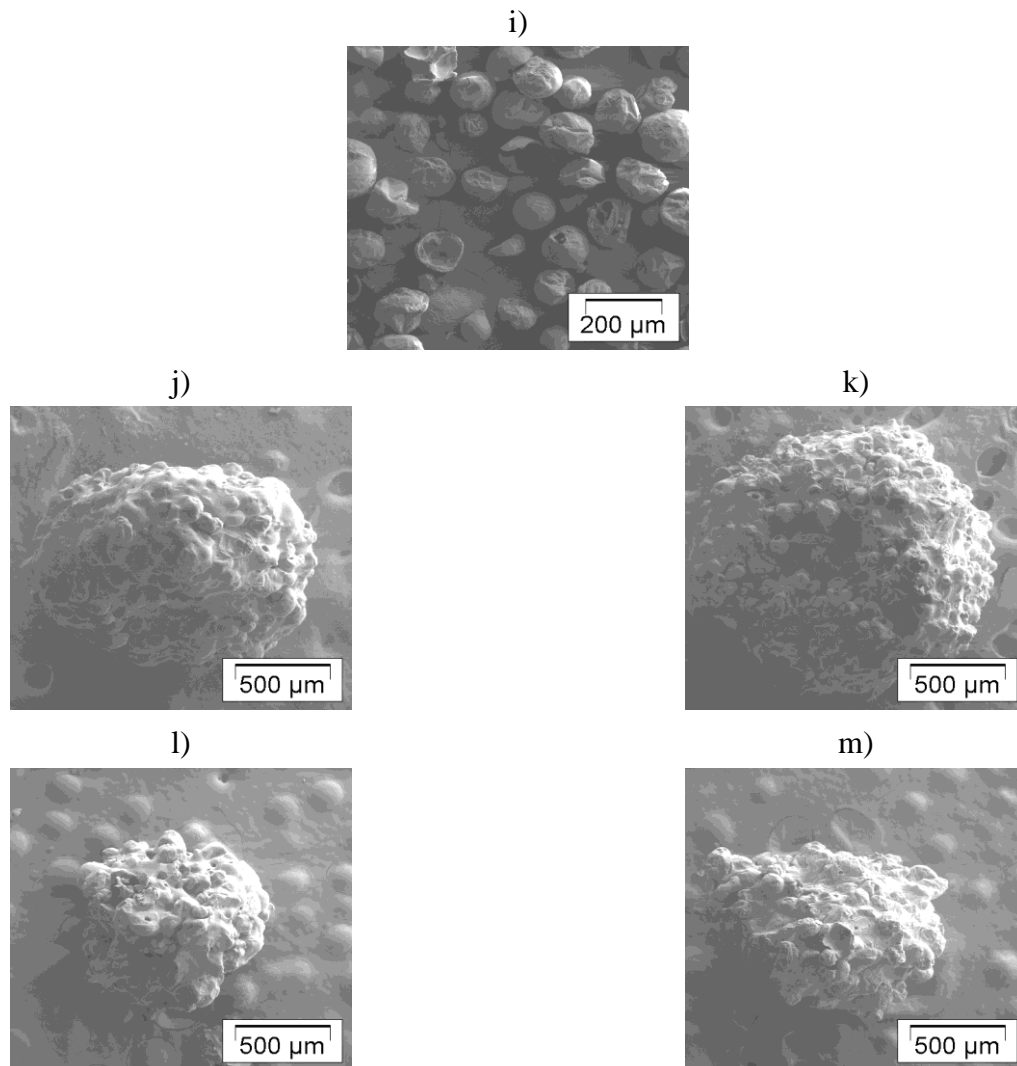


Figura 4.13. Imágenes SEM de los aglomerados a diferentes combinaciones de los factores de estudio i) sólidos iniciales; j) 20 min, 60°C, CR; k) 60 min, 60°C, CR; l) 20 min, 60°C, SR; m) 60 min, 60°C, SR. (CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación)

En la Figura 4.14 se presenta el corte transversal de los aglomerados obtenidos a las mismas condiciones experimentales de la figura 4.13. En la Figuras 4.14n y 4.14o puede observarse la parte interna de los aglomerados, la cual presenta una estructura continua originada posiblemente por la disolución de los azúcares que forman parte de los polvos de tamarindo. Esta estructura inicia desde la parte interna del aglomerado y se extiende hacia la superficie del aglomerado. Además se pueden

observar depresiones, las cuales se pudieron formar por el aire atrapado. Las figuras 4.14ñ 4.14p son un acercamiento de los cortes transversales, donde se puede apreciar claramente la estructura continua del aglomerado. En términos del efecto de la recirculación de sólidos elutriados no hay una clara evidencia del efecto de éste factor sobre la morfología del aglomerado.

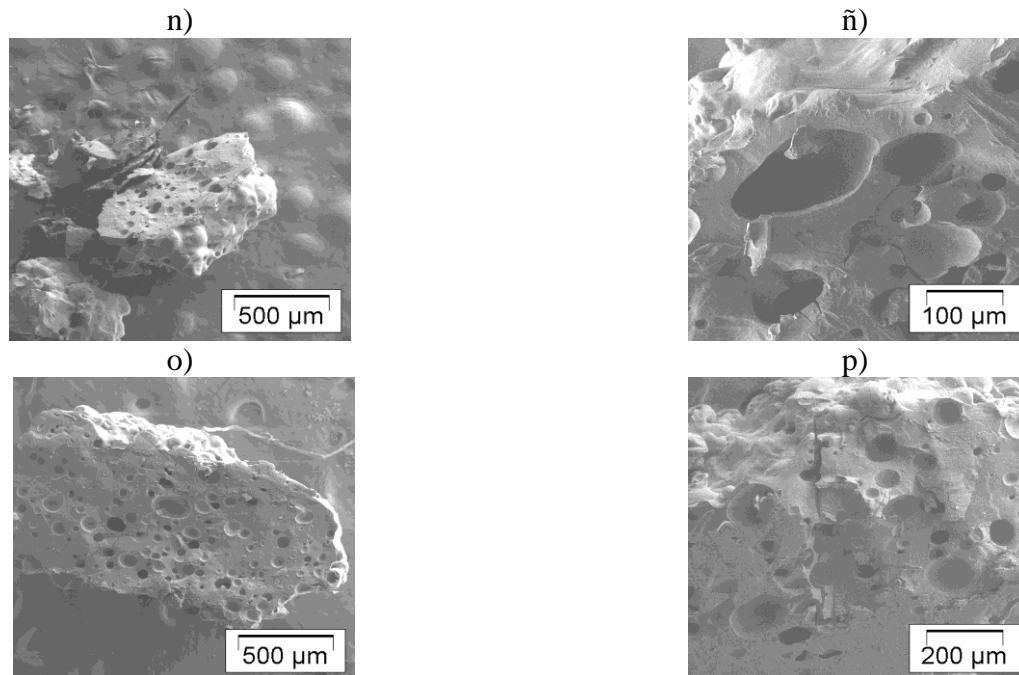


Figura 4.14. Imágenes SEM del corte transversal de los aglomerados a diferentes combinaciones de los factores de estudio n) 20 min, 60°C, CR; ñ) 60 min, 60°C, CR; o) 20 min, 60°C, SR; p) 60 min, 60°C, SR (CR, Con recirculación; SR, Sin recirculación)

Capítulo 5

Conclusiones

Este trabajo mostró que la aglomeración de partículas orgánicas de tamarindo en un granulador de lecho fluidizado a escala piloto puede ser estudiado satisfactoriamente con el uso e integración de herramientas estadísticas y fundamentales, como son: un diseño experimental, un análisis estadístico y un balance de población discretizado, que permiten analizar y cuantificar el efecto de los parámetros del proceso: tiempo de atomización del medio aglomerante (t_a), temperatura del medio fluidizante (T_o) y recirculación de partículas elutriadas (R), sobre los diferentes procesos presentes en la aglomeración: nucleación, crecimiento y agregación, así como en el comportamiento de crecimiento del aglomerado.

La manipulación de una población inicial polidispersa es complicada con relación a su aglomeración en lechos fluidizados, pues debido a la presencia de partículas de diferentes tamaños se tiene en el sistema una distribución de velocidades, lo cual influencia el comportamiento de la fluidización y mezclado de los sólidos, y por ende el proceso de aglomeración. Sin embargo, en este trabajo se demostró que empleando una población polidispersa acotada, se puede tener condiciones adecuadas de fluidización y mezclado en el sistema. A partir de esto, se logró la adecuada relación entre el líquido atomizado y flujo de aire lo cual permitió una mayor concentración de líquido en el lecho, realizando con éxito la aglomeración de sólidos sin que se presente el fenómeno de apagado húmedo.

Diseño factorial completamente aleatorio

El cálculo del diámetro promedio del aglomerado indica que la aglomeración de las partículas orgánicas de tamarindo se llevó satisfactoriamente empleando un granulador de lecho fluidizado a escala piloto.

El análisis cualitativo de las observaciones experimentales, permitió observar la influencia que tiene la concentración de líquido en el sistema con respecto al crecimiento del aglomerado. Con el incremento en el tiempo de atomización de líquido, se comprueba que se obtienen aglomerados con un diámetro promedio mayor. Así mismo, la población de sólidos pertenecientes al intervalo inferior disminuye de manera importante, mientras que la población de sólidos pertenecientes a los intervalos intermedio y superior incrementan. El desplazamiento hacia estos intervalos se interpreta como un cambio en la distribución de tamaños de partículas, esto es, se presentó el crecimiento de los sólidos. originado por la presencia y dominio de los diferentes procesos de aglomeración presentes en el sistema.

A través del análisis cualitativo de los resultados experimentales, el efecto de los parámetros temperatura y recirculación en su modalidad de con recirculación y sin recirculación no es evidente, lo cual se debió a su compleja interacción entre estos.

El análisis de varianza empleando el diámetro promedio del aglomerado como respuesta confirma la influencia estadísticamente significativa del tiempo de atomización del líquido aglomerante sobre los diferentes procesos de aglomeración, y el crecimiento promedio del aglomerado. Aunque los parámetros operacionales temperatura y recirculación no resultaron estadísticamente significativos, se tiene evidencia que existe una influencia del tamaño de partícula y la temperatura sobre el crecimiento del aglomerado, así como en el comportamiento de la distribución de tamaños de sólidos.

La simulación del proceso de aglomeración a través del empleo de una ecuación de Balance de Población discretizada tomando como referencia el resultado estadísticamente significativo del análisis de varianza, confirma el efecto de los niveles de operación del tiempo de atomización del líquido sobre los procesos de aglomeración: la nucleación es el proceso dominante a un tiempo de atomización bajo, mientras que el proceso de agregación, lo es un tiempo de atomización alto. Así mismo, el efecto del proceso de crecimiento fue despreciable.

A través de una prueba estadística conocida como prueba de Tukey, se determinó que entre los niveles 20 y 60 minutos del parámetro tiempo de atomización, existe una diferencia importante en cuanto al efecto de este parámetro sobre el crecimiento del aglomerado.

Éste trabajo de investigación significó la publicación de un artículo en la revista Mexicana de Ingeniería Química Vol.10, No. 2 (2011).

Conclusiones 2³

El cálculo del diámetro promedio del aglomerado indica que la aglomeración de las partículas orgánicas de tamarindo se llevó satisfactoriamente empleando un granulador de lecho fluidizado a escala piloto

Las distribuciones de tamaños de partículas experimentales obtenidas, revelaron que la recirculación de sólidos elutriados permite estrechar la distribución de tamaños de los aglomerados, comportándose de manera unimodal. Mientras que cuando no se recirculan los sólidos elutriados, la distribución final de tamaños, presenta un comportamiento bimodal.

El análisis de varianza empleando el diámetro promedio del aglomerado como respuesta, reconoció que la temperatura del lecho, tiempo de atomización y la interacción entre la recirculación de sólidos y temperatura fueron los parámetros de operación que influyen el proceso de aglomeración.

El nivel superior del tiempo de atomización junto con el nivel inferior de temperatura bajo condiciones de recirculación de sólidos elutriados permitió obtener aglomerado con el mayor diámetro promedio, lo cual se corroboró por medio del perfil de interacciones.

Por otro lado, los modelos de diseños de experimentos obtenidos, predicen de manera satisfactoria las observaciones experimentales.

Las observaciones de aglomeración obtenidas mediante el diseño factorial 2³, fueron predichas de manera satisfactoria por el balance de población discretizado, considerando las expresiones cinéticas seleccionadas para la nucleación, crecimiento y agregación.

El modelado indicó que estos procesos de aglomeración resultaron significativos en el sistema estudiado, dado a través de la magnitud de los parámetros cinéticos estimados a las diferentes condiciones de operación del sistema. Las predicciones confirman las conclusiones obtenidas a través del análisis de varianza usando el diámetro promedio como respuesta estadística además de elucidar que tanto la nucleación como la agregación, fueron los procesos dominantes en el proceso de aglomeración.

A través de la visualización de las imágenes de los aglomerados obtenidos, se pudo identificar que el tipo de crecimiento que se lleva a cabo en este tipo de sistemas es por la adhesión de partículas individuales (agregación) para formar un agregado (aglomerado) de mayor tamaño.

Finalmente, se puede concluir que se logró alcanzar el objetivo de este trabajo, ya que se establecieron los límites operacionales de las variables bajo estudio que permitieron obtener aglomerados de diferente tamaño.

Así mismo, se logró alcanzar el objetivo de evidenciar la influencia de la polidispersidad de la población de sólidos través de la interacción con la temperatura, sobre el crecimiento del aglomerado así como de los procesos de nucleación y agregación. Por consiguiente, a través de la manipulación de los niveles establecidos para estos parámetros, se obtendrán distribuciones de tamaños de aglomerados más uniformes evitando con esto el problema de segregación.

El análisis estadístico y modelado a través de una ecuación de Balance de Población discretizada pueden ser empleados satisfactoriamente como una aproximación ingenieril para analizar y entender el proceso de aglomeración de sólidos de tamarindo en granuladores de lecho fluidizado, lo que permite visualizar la influencia de los parámetros operacionales en los procesos de agregación y nucleación.

Este trabajo de investigación significó la publicación de un artículo en la revista Chemical Engineering Communications, que ha sido aceptado y cuyo estado se encuentra en prueba de galeras.

Referencias bibliográficas

1. Ayazi, S. P, Liu, Z., and Yates, G.J. (1990). Hydrodynamic Influences on Particle Breakage in Fluidized Beds. *Chemical Engineering Science* 45 (4), 809-817.
2. Adetayo, A. A. and Ennis, B. J. (2000). *Powder Technology*, 108, 202.
3. Barbosa, C. G., López, G. A. (2005). Food powders: physical properties, processing, and functionality. Kluwer Academic/Plenum Publishers New York.
4. Baron, T., Briens, C.L., Hazlett, J.D., Bergougnou, M.A., Galtier, P., (1992). *Can. J. Chem. Eng.*, 70,631
5. Bird, R.B., Steward, W.E., and Lightfoot, E.N. (1975). Fenómenos de Transporte. Reverté, España.
6. Box, G. E. P., W.G. Hunter., and J.S. Hunter. (1988). Estadística para Investigadores; Introducción al diseño de experimentos, análisis de datos y construcción de modelos.
7. Cryer, A. S., And Scherer, N.P. (2003). Observations and Process Parameter Sensitivities in Fluid-Bed Granulation. *AIChE Journal* 45 (10), 2069-2078.
8. Cryer A. S. (1999). Modelado de Procesos de Aglomeración en Lechos Fluidizados. *AIChE Journal* 45(10), 2069-2078.
9. Dacanal, G.C., and Menegalli, F.C. (2008). Experimental Study of Fluidized Bed Agglomeration of Acerola Powder. *Brazilian Journal of Chemical Engineering* 25 (1),
10. Denesuk, M., Zelinski, B.J., Kreidl., N.J., and Uhlmann, D.R. (1994). Dynamics of Incomplete Wetting on Porous Materials. *Journal of Colloid Interface Science* 168, 141-
11. Davidson, J. F., Clift, R., and Harrison, D. (1985). Particle Growth and Coating in Gas-Fluidized Beds in: *Fluidization*, (A.W. Nienow y P.N. Rowe), 563- 594. Academic Press,
12. Dullien F.A.L. (1992). *Porous Media Fluid Transport and Pore Structure*. Academic Press.
13. Draper, N. R. and Smith, H. “Applied Regression Analysis”, Second Edition, John Wiley & Sons, U.S.A. 1981.
14. Ennis, B.J., Tardos, G., and Pfeffer, R. (1991). A Microlevel-Based Characterization of Granulation Phenomena. *Powder Technology* 65 (99), 257-272.
15. Ennis, B.J. (2006). *Powder Technology*, 88, 203

16. Faure, A., York, P., and Rowe, R.C. (2001). Process Control and Scale-up of Pharmaceutical Wet Granulation Processes: a Review. *European Journal of*
17. Francis, F. J. (1999). *Encyclopedia of food science and technology* in: Floros, J.D., and Rattray, J. (Eds.), *Optimization methods in food processing*, Wiley, New York, (1).
18. Flore, K., Schoenherr, M., and Feise, H. (2008). Aspects of granulation in the chemical industry. *Powder Technology*, 1-5.
19. Fuerstenau, D.W. and Sastry, K.V.S. (1970). *Ind. Eng. Chem. Fundam*, 9,145
20. Geldart, D. (1973). Types of Gas Fluidization. *Powder Technology* 7 (5), 285-292.
21. Glatt, (2005). Innovative Technologies for granules and pellets. Glatt Ingenieurtechnik GMBH, Weimar/Germany (company brochure)
22. Goldschmidt, M. J. V., Beetstra, R., and Kuipers, J. A. M. (2004). Hydrodynamic modeling of dense gas-fluidised beds: comparasion and validation of 3D discrete particle
23. Goldszal, A. and Bousquet, J. (2001). Wet agglomeration of Powders: From Physics Toward Process Optimization. *Powder Technology* 117 (3), 221-231.
24. Salman, A.D., Hounslow, M.J., and Seville, J.P.K. (2007). *Granulation: Handbook of Powder Technology* Vol. 11.
25. Hapgood, K. P., Lister, J.D., Biggs, S.R., and Howes, T. (2002). Drop penetration into Porous Powder Beds. *Journal of colloid Interface Science* 253, 353-366.
26. Hounslow, M.J., Ryall, R.L., and Marshall V.R. (1988). A Discretized Population Balance for Nucleation, Growth and Agregation. *AIChE Journal* 34 (11), 1821-1832
27. Hounslow, M.J. (1998). *Kona* 16, 179.
28. Hounslow, M.J., Pearson, J.M.K., and Instone, T. (2001). *AIChE Journal* 47.
29. Hulbert, H., and Katz, S. (1964). Some Problems in Particle Technology. A Statistical Mechanical Formulation. *Chemical Engineering Science* 19, 555-574.
30. Iveson, S.M., Lister, J.D., Hapgood, K., Ennis, B.J. (2001). Nucleation, Growth and Breakage Phenomena in Agitated Wet Granulation Processes: a Review, *Powder*

31. Iveson, S.M. (2002). *Powder Technol.*, 124, 219.
32. Jacob, M. (2005). *Handbook of Powder Technology: Granulation*, 11, 418-430.
33. Kapur, P.C. and Fuerstenau, D.W. (1969). A coalescence model for granulation. *I & G Process Design and Development*, 8 (1), 56-62.
34. Kontogeorgis, G.M. (2004). Notes in course 28315, *Colloid and Surface Chemistry*
35. Kumar, J. (2006). Numerical Approximations of Population Balance Equations in Particulate Systems. Ph. D., thesis, Otto-von-Guericke-University at Magdeburg.
36. Kumar, S., and Ramkrishna, D. (1997). On the Solution of Population Balance Equations by Discretization--III. Nucleation, Growth and Aggregation of Particles. *Chemical*
37. Kunii, D. and Levespiel O. (1990). *Fluidization Engineering*. Wiley and Sons Inc.
38. Kwauk, M. (1992). *Fluidization idealized and bubblesless, with applications*. Science Press
39. Lapidus, L. and Seinfeld, J. H. (1971). *Numerical Solution of Ordinary Differential Equations*. Editorial. A. Press., New York.
40. Lister, J., Waters, A. (1988). Influence of the material properties of iron ore sinter feed on granulation effectiveness. *Powder Technology* 55, 141-151
41. Lister, J. and Waters, A. (1990). Kinetics of iron ore sinter feed granulation. *Powder Technology* 62, 125-134
42. Lister, J. D., and Ennis, B., (2004). *The Science and Engineering of Granulation Proceses*. Kluwer Acadmy Publishers, Dordrecht.
43. Lister, J.D., Hapgood, K.P., Michaels, J.N., Sims, A., Robert, M., Kameneni, S.K., and Hsu, T. (2001). Liquid distribution in a wet granulation: dimensionless spray flux.
44. Lister, J. D. (2003). Scaleup of wet granulation processes: Science not art, *Powder Technol.* 130, 35-40.
45. Liu, L.X., Robinson, D.J., and Addai-Mensah, J. (2011). Population balance based modeling of nickel laterite agglomeration behavior, *Powder Technol.*, **223**, 92-97

46. Liu, L. X., Lister, J. D., Iveson, S. M., and Ennis, B. J. (2000). Coalescence of Deformable Granules in Wet Granulation Processes. *AIChE Journal* 46 (3), 529-539.
47. Liu, L. X. and Litster, J.D. (2002). *Chemical Engineering Science* 57, 2183.
48. Méndez R. I. (1976). *Modelos estadísticos lineales*. Foccavi/CONACyT. México. D.F.
49. Meeter, D. A. and Wolfe, J. P. "Non-Linear Least Squares", Reporte Interno, U.S.A. 1965
50. Montgomery, C. D. (2007). *Diseño y Análisis de Experimentos*. John Wiley & Sons Ltd.
51. Nienow, A. W., and P. N. Rowe. (1985). *Particle Growth and Coating in Gas-Fluidized Beds, Fluidization*. Academic Press, London.
52. Obraniak, A., and Gluba, T. (2012). A model of agglomerate formation during bed wetting in the process of disc granulation, *Chemical and Process Engineering*, **33** (1),
53. Maurstad, Ola. (2002). *Population Balance Modeling of Agglomeration in Granulation Processes*. Ph. D., thesis, University of Science and Technology at , Norwegian.
54. Parveen, F., Josset, S., Briens, C., and Berruti, F. (2012). Effect of size and density on agglomerate breakage in a fluidized bed, *Powder Technol.*, **231**, 102-111.
55. Pell, M. (1990). Gas /fluidization, *Handbook of Powder Technology* 8
56. Poon, J. M. H., Ramachandran, R., Sanders, C. F. W., Glaser, T., Immanuel, C. D., Doyle, I. I. I. F. J., and Litster, J. D. (2009). Experimental validation studies on a multi-
57. Poon, J. M. H., Immanuel, C. D., Doyle, I. I. I. F. J., and Litster, J. D. (2008). A Three-Dimensional Population Balance Model of Granulation with a Mechanistic
58. Ramachandran, R., and Barton, P. I. (2010). Effective parameter estimation within a multi-dimensional population balance model framework, *Chem. Eng. Sci.*, 65, 4884-
59. Ramkrishna, D. (2000). *Population Balances. Theory and Applications to Particulate Systems in Engineering*, Academic Press, London.
60. Randolph, A. D. and Larson, M. A. (1971). *Theory of Particulate Processes: Analysis and Techniques of Continuous Crystallization*, Academic Press, NY.

61. Randolph, A. D. and Larson, M. A. (1988). Theory of Particulate Processes: Analysis and Techniques of Continuous Crystallization, 2nd Edition, Academic Press, NY.
62. Ranz, W. E. and Marshall, W. R. (1952). Evaporation from drops, Pt. 1. Chem. Eng. Prog., 48, 141-146
63. Realpe, A. and Velásquez, C. (2008). Growth Kinetics and Mechanism of Wet Granulation in a Laboratory-scale High Shear Mixer: Effect of Inicial Polydispersity of
64. Rhodes, M. J. (1998). Introduction to particle technology. John Wiley and Sons Ltd, México.
65. Ríos, M. D. (2005). Aglomeración de Finos en un Sistema Combinado Atomización-Fluidización. Tesis de Maestría en Ciencias en Ingeniería Química, Universidad Rowe, R.C. (1989). Binder-substrate interactions in granulation: A theoretical approach
66. based on surface free energy and polarity. International Journal of Pharmaceutics 52,
67. Rumpf, H. (1962). The strength of granules and agglomerates, Agglomeration, Interscience,
68. Salinas, R. E. and Rodriguez, F. R. (1995). Descripción estocástica de sistemas dispersos. Revista Mexicana de Física, 3, 431-450.
69. Sastry, K.V.S. and Fuerstenau, D.W. (1973). Mechanisms of agglomerate growth in Green Pelletization. Powder Technology 7, 97-105.
70. Sastry, K. V. S. (1975). Int. J. Miner. Process. 2, 187.
71. Schaafsma S. H., Kossen, N. W. F., Mos, T. M., Hoffman A. C. (2006). A Model for the Spray Zone in Early-Stage Fluidized Bed Granulation. AIChE Journal 52 (8), 2736-2741
72. Schaafsma, S. H., Vonk, P., and Kossen, N. W. F. (2000). Fluid Bed Agglomeration with a Narrow Droplet Size Distribution. Int. J. Pharm. 193, 175-187.
73. Schaafsma S. H., Vonk, P., Segers, P., and Kossen, N. W. F. (1998). Description of Agglomerate Growth. Powder Technology 97, 183-190.
74. Schaafsma S. H., K. Kossen, N. W. F. (1999). Effects and Control of Humidity and Particle Mixing in Fluid-Bed Granulation. AIChE Journal 45 (6), 1202-1210.
75. Schaefer, T. and Mathiesen, C. (1996). Melt pelletization in a high shear mixer: IX. Effects of binder particle size. Int. J. Pharm. 139, 139-148.

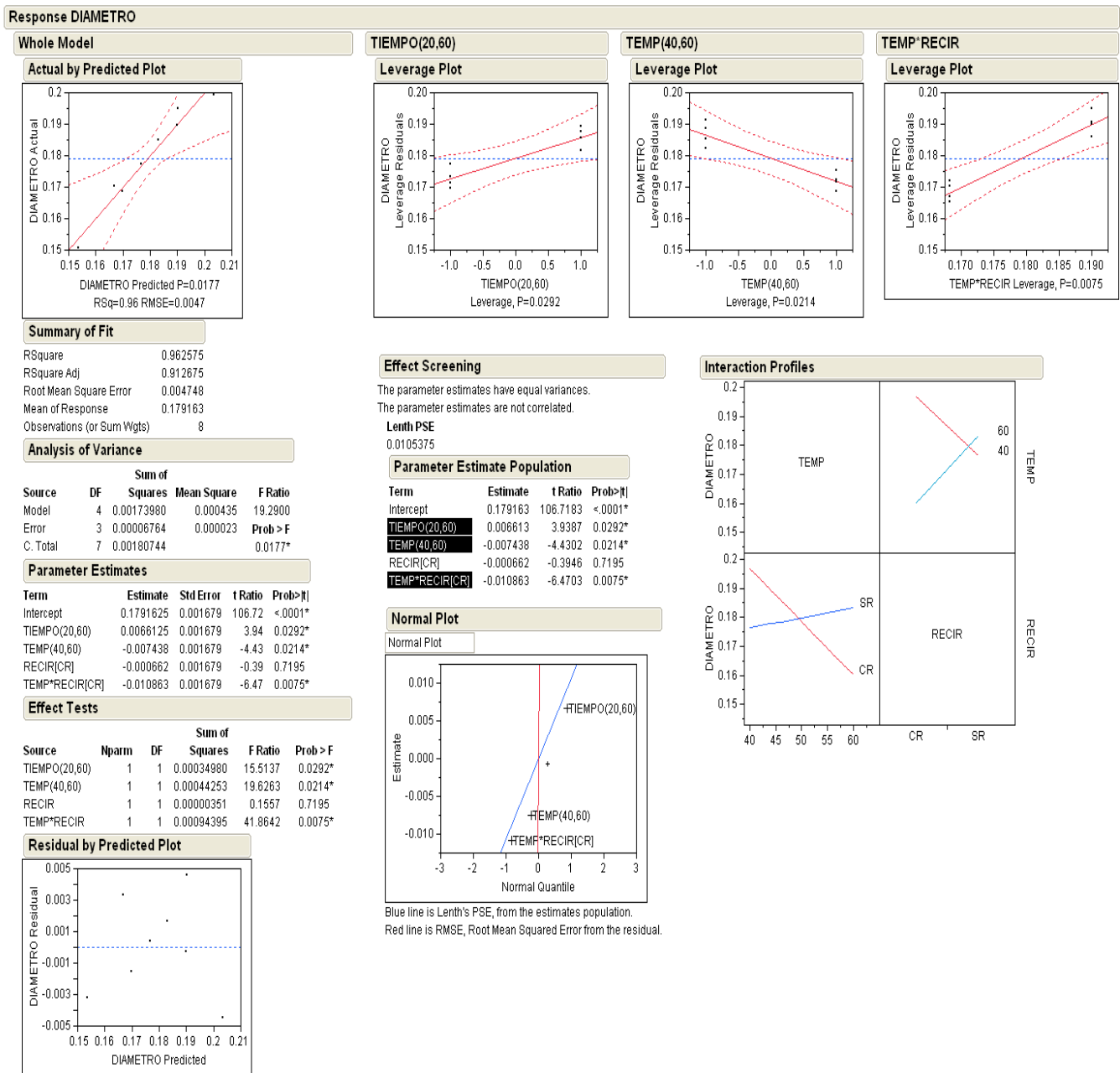
76. Schubert, H. (1987). Food particle Technology: Part 1. Properties of Particles and particulate Food Systems, *Journal of Food Engineering*, 6,1-32.
77. Streeter, V. and Wylie, B. (1979). *Mecánica de los fluidos*. Mc Graw Hill, México
78. Von Smoluchowski, M. (1916). *Z. Phys.*, 17, 585.
79. Soos, M., Sefcik, J., and Morbidelli, M. (2006). Investigation of Aggregation, Breakage and Restructuring Kinetics of Colloidal Dispersions in Turbulent Flows by Population
80. Štěpánek, F., Rajniak, P., Mancinelli, C., Chern, R.T., and Ramachandran, R. (2009). Distribution and accessibility of binder in wet granules, *Powder Technol.*, **189**, 376-384.
81. Stewart, W. E., Caracotsios, M., and Sørensen, J.P. (1971). Parameter Estimation from Multiresponse Data: *GREGPACK. AIChE Journal* **38** (5).
82. Tan, H. S., Salman, A. D., and Hounslow, M.J. (2006). Kinetics of Fluidised Bed Melt Granulation I: The Effect of Process Variables. *Chemical Engineering Science* 61 (5),
83. Tan, H. S., Salman, A. D., and Hounslow, M. J. (2005). Kinetics of Fluidised Bed Melt Granulation V: Simultaneous Modelling of Aggregation and Breakage. *Chemical*
84. Tan, H. S., Goldschmidt, M. J. V., Boerefijn, R., Hounslow, M. J., Salman A. D., Kuipers, J. A. M., (2004). *Powder Technology* 142,103.
85. Tardos, G. I., Irfan-Khan, M., and Mort, P. R. (1997). Critical parameters and limiting conditions in binder granulation of fine powders. *Powder Technology* 94, 245-258.
86. Tourbin, M. and Frances, C. (2008). Experimental Characterization and Population Balance Modelling of The Dense Silica Suspensions Aggregation Process. *Chemical*
87. Valencia, M. O. (2001). Modelo Hidrodinámico para el Tubo Elevador de una Unidad de FCC con Evaporación de Gasóleo. Tesis de Maestría en Ciencias en Ingeniería Química,
88. Verkoeijen, D., Pouw, G. A., Meesters, G.M.H., and Scarlett, B. (2002). *Chem. Eng. Sci.* 57, 2287
89. Watano, S., Morikawa, T. and Miyanami, K. (1995). Kinetics of Granule Growth in Fluidized Bed Granulation with Moisture Control. *Chemical and Pharmaceutical*
90. Waldie, B. (1991). Growth Mechanism and the Dependence of Granule Size on Drop Size in Fluidized-Bed Granulation. *Chemical Engineering Science* 46 (11), 2781-2785.

91. Wang, F. Y. and Cameron, I. T. (2002). Powder Technology 124, 238.
92. Wauters, P. A. L., Scarlett, B., Liu, Litster, L. X., and Meesters, G. M .H. (2003). Chem. Eng. Comm., 190, 1309.
93. Wright, H. and Ramkrihna, D. (1992). Comput. Chem. Eng. 16, 1019.
94. Zajic, L. and Buckton, G. (1990). The use of surface energy values to predict optimum binder selection for granulations. International Journal of Pharmaceutics 59, 155-164.

Anexos

A. Resumen del análisis de varianza del diseño completamente aleatorio (DFCA)

Resumen del análisis de varianza del diseño factorial 2^3 , (masa de 400g)



B. Estimación de Parámetros en Sistemas no-Lineales

El programa utilizado en este estudio para obtener los valores de los parámetros desconocidos, (θ), en modelos no lineales, es mediante mínimos cuadrados. La estimación de estos parámetros se logra al resolver un sistema de n ecuaciones no lineales, con n incógnitas ($n < 50$). Para conocer estas incógnitas, (θ), es usada una técnica iterativa. En éste estudio se aplicó el método de Marquardt (1963), el cual combina el método de Gauss (series de Taylor) y Descenso más Pronunciado [Draper, N. R. and Smith, H. (1981); Meeter, D. A. and Wolfe, J. P (1965)] combinación que da como resultados la estimación del vector θ , cuya dimensión es $(p \times 1)$, donde p ; es el número total de parámetros contenidos en un modelo no-lineal.

Una breve explicación sobre los fundamentos en los cuales se basa este método de regresión se muestra a continuación:

Suponga que tentativamente se considera un modelo matemático de la forma:

$$\eta = f(\theta, \xi) \quad (C.1)$$

Donde θ es un vector que contiene los parámetros desconocidos y ξ es el vector de la variable independiente. Sí (Y) es el vector que representa la variable dependiente y contiene los valores de las n observaciones hechas. Cuando u observaciones, Y_u , son muestreadas, el valor de la variable independiente es ξ_u . Sin embargo, a causa del error experimental, las observaciones Y_u , difieren de la respuesta real, de tal forma que:

$$Y_u = \eta_u + \varepsilon_u, \quad u=1, \dots, n \quad (C.2)$$

Para obtener el valor de θ , se usan los datos experimentales. De ésta forma una estimación de θ se obtiene minimizando a $SS(\theta)$:

$$SS(\theta) = \sum_{u=1}^n (Y_u - \eta_u)^2 = \sum_{u=1}^n (Y_u - f(\theta, \xi_u))^2 \quad (C.3)$$

Procedimiento que comúnmente es llamado; estimación por mínimos cuadrados. Ahora bien, el programa que se utiliza en éste estudio, da el estimado de θ por mínimos cuadrados, ya sea cuando el modelo (Ecuación C.1) es lineal o no, con respecto a los parámetros desconocidos, θ . Para asegurar una óptima estimación por mínimos cuadrados, algunas suposiciones son hechas con respecto al vector error, ε :

A. El vector error ε , son variables aleatorias independientes, con una varianza igual a la probabilidad de distribución.

B. El ε esperado es cero (no hay vías sistemática para obtenerlo experimentalmente).

C. La distribución de probabilidad del ε , es la distribución normal con varianza, σ^2 .

Cuando el modelo (Ecuación C.1) es lineal con respecto a los parámetros θ , esta ecuación se puede expresar como:

$$\eta = Z\theta \quad (C.4)$$

donde η y θ son vectores con dimensiones (nx1) y (px1) respectivamente, y Z es una matriz de dimensiones (n x p), y no es función de θ , la cual tiene la forma :

$$Z_{n \times p} = \begin{cases} \frac{\partial \eta_u}{\partial \theta_i} & u = 1, \dots, n \\ & i = 1, \dots, p \end{cases} \quad (C.5)$$

Al tener esta característica los valores del vector θ , son factibles obtenerlos por mínimos cuadrados, asumiendo únicamente las suposiciones (A) y (B), y que la Ecuación (C.4) es el modelo.

El teorema de Gauss, deduce que todos los estimados del θ , son una combinación lineal de las observaciones Y_u , de tal forma, que los valores estimados del θ tienen pequeñas varianzas. Con esto, la única solución que se obtiene para él θ es:

$$\theta = \hat{\theta} = (Z'Z)^{-1}Z'Y \quad (C.6)$$

donde \mathbf{Z}' es la transpuesta de la matriz \mathbf{Z} . Considerando la suposición (C), se puede aclarar que los parámetros estimados, $(\hat{\theta}_1, \hat{\theta}_2, \dots, \hat{\theta}_p)$, se encuentran normalmente distribuidos.

Cuando el modelo no es lineal con respecto al θ , el problema se vuelve más complicado. En este caso el nuevo vector que contiene los parámetros estimados, $(\hat{\theta})$, por mínimos cuadrados, presenta múltiples soluciones o mínimos relativos con respecto a la suma de cuadrados $SS(\hat{\theta})$.

Para la estimación del $\hat{\theta}$ en sistemas no lineales, el término $f(\xi_u, \hat{\theta})$ de la Ecuación (C.1) es linealizado y por lo tanto aproximado por medio de series de Taylor (Método de Gauss), resultando:

$$f(\xi_u, \hat{\theta}) = f(\xi_u, \theta_0) + \sum_{i=1}^p \left[\frac{\partial f(\xi_u, \hat{\theta})}{\partial \hat{\theta}_i} \right]_{\hat{\theta}=\theta_0} (\hat{\theta}_i - \theta_{i0}) \quad (\text{C.7})$$

Con:

$$\theta_0 = (\theta_{10}, \theta_{20}, \dots, \theta_{p0}) \quad (\text{C.8})$$

donde, θ_{i0} es el valor inicial (i) de los parámetros a estimar, $(\hat{\theta})$, estos valores deben ser “supuestos” inteligentemente o estimados con base en la información disponible sobre el sistema que se tenga, y estar acotados de acuerdo con la circunstancias del sistema físico, ya que estos valores hacen que el método de estimación no lleva a posibles mínimos no factibles, o que no se tenga convergencia.

Teniendo en mente lo antes mencionado, se definen nuevas variables, las cuales son:

$$f_u^0 = f(\xi_u, \theta_0) \quad (\text{C.9})$$

$$\beta_i^0 = \theta_i - \theta_{i0} \quad (\text{C.10})$$

$$\mathbf{Z}_{iu}^0 = \left[\frac{\partial f(\boldsymbol{\xi}_u - \hat{\boldsymbol{\theta}})}{\partial \theta_i} \right]_{\hat{\boldsymbol{\theta}} = \boldsymbol{\theta}_0} \quad (\text{C.11})$$

Con esto la aproximación de la ecuación C.2 es:

$$\mathbf{Y}_u - \mathbf{f}_u^0 = \sum_{i=1}^p \beta_i^0 \mathbf{Z}_{iu}^0 + \varepsilon_u \quad (\text{C.12})$$

Con éstas ecuaciones (C.9-C.12) se estiman los valores de β_i^0 , para $i=1,2,\dots,p$. Donde aplicando la teoría de mínimos cuadrados para sistemas aproximadamente lineales se tiene:

$$\mathbf{Z}_0 = \begin{pmatrix} \mathbf{Z}_{11}^0 & \dots & \mathbf{Z}_{p1}^0 \\ \dots & \dots & \dots \\ \mathbf{Z}_{1n}^0 & \dots & \mathbf{Z}_{pn}^0 \end{pmatrix} = \{ \mathbf{Z}_{iu}^0 \}, \mathbf{n} \times \mathbf{p} \quad (\text{C.13})$$

$$\mathbf{b}_0 = \begin{pmatrix} b_1^0 \\ b_2^0 \\ \vdots \\ \vdots \\ b_p^0 \end{pmatrix} \quad \mathbf{y}_0 = \begin{pmatrix} \mathbf{Y}_1 - \mathbf{f}_1^0 \\ \mathbf{Y}_2 - \mathbf{f}_2^0 \\ \vdots \\ \vdots \\ \mathbf{Y}_n - \mathbf{f}_n^0 \end{pmatrix} = \mathbf{Y} - \mathbf{f}^0 \quad (\text{C.14})$$

De tal forma que la estimación del vector $\boldsymbol{\beta}_0 = (\mathbf{B}_1^0, \mathbf{B}_2^0, \dots, \mathbf{B}_p^0)$ está dado por:

$$\boldsymbol{\beta}_0 = \mathbf{b}_0 = (\mathbf{Z}_0' \mathbf{Z}_0)^{-1} \mathbf{Z}_0' (\mathbf{Y} - \mathbf{f}^0) \quad (\text{C.15})$$

donde el vector \mathbf{b}_0 minimiza la suma de cuadrados con respecto a β_i^0 , $i=1,2,\dots,p$.

Obteniendo una nueva función a minimizar:

$$SS(\hat{\boldsymbol{\theta}}) = \sum_{u=1}^n \left(\mathbf{Y}_u - f(\boldsymbol{\theta}_0, \boldsymbol{\xi}_u) - \sum_{i=1}^p \beta_i^0 \mathbf{Z}_{iu}^0 \right)^2 \quad (\text{C.16})$$

De tal forma que el proceso iterativo para tomar los nuevos valores de los parámetros que se están estimando es el siguiente:

$$\hat{\boldsymbol{\theta}}_{j+1} = \hat{\boldsymbol{\theta}}_j + \mathbf{b}_j \quad (\text{C.17})$$

$$\hat{\boldsymbol{\theta}}_{j+1} = \hat{\boldsymbol{\theta}}_j + (\mathbf{Z}_j' \mathbf{Z}_j)^{-1} \mathbf{Z}_j' (\mathbf{Y} - \mathbf{f}^j) \quad (\text{C.18})$$

donde

$$\mathbf{Z}_j = \{Z_{iu}^j\}'$$

$$\mathbf{f}^j = (f_{1j}^j, f_{2j}^j, \dots, f_{nj}^j)' \quad (\text{C.19})$$

$$\hat{\boldsymbol{\theta}}_j = (\hat{\theta}_{1j}, \hat{\theta}_{2j}, \dots, \hat{\theta}_{pj})'$$

Este proceso iterativo continúa hasta que la solución converge, y cuyo criterio de convergencia es:

$$\frac{|\{\hat{\theta}_{i(j+1)} - \hat{\theta}_{ij}\}|}{\hat{\theta}_{ij}} \leq \delta, \quad i = 1, 2, \dots, p \quad (\text{C.20})$$

Donde δ es una cantidad especificada por el usuario. En cada paso del proceso iterativo $SS(\hat{\boldsymbol{\theta}})$ puede ser evaluado para observar si se logra una reducción en su valor.

En este proceso debido a Gauss (1821), frecuentemente la aproximación dada por la Ecuación (C.7) no es lo suficientemente buena, ya que se hace una pobre aproximación para $SS(\hat{\boldsymbol{\theta}})$. Ya que en algunas ocasiones $SS(\hat{\boldsymbol{\theta}}^{(1)}) \supset SS(\hat{\boldsymbol{\theta}}^{(0)})$ efecto que por supuesto es opuesto a lo que se persigue. De tal manera que se tiene la necesidad de controlar la región sobre la cual la aproximación lineal de $f(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\xi})$ se manifiesta. Esto es posible controlando el tamaño de paso del vector \mathbf{b} . El algoritmo de Marquardt (1963) es muy bueno a éste respecto, y con unas pequeñas modificaciones, es usado en este estudio.

Un breve resumen se cita a continuación:

Si una corrección en el vector \mathbf{b} es hecha, a la Ecuación (C.15), esta se representaría como:

$$\mathbf{b}_j = \left(\mathbf{Z}_j' \mathbf{Z}_j + \lambda \mathbf{I} \right)^{-1} \mathbf{Z}_j' \left(\mathbf{Y} - \mathbf{f}^0 \right) \quad (\text{C.21})$$

donde λ es un número no-negativo. Los siguientes puntos deben cumplirse:

1. La solución del vector \mathbf{b}_j a partir de la Ecuación (C.21), minimiza a $SS(\hat{\boldsymbol{\theta}})$ sobre la frontera de una esfera centrada en $\hat{\boldsymbol{\theta}}_0$, de tal manera que el radio está dado por la siguiente relación:

$$\sqrt{\mathbf{b}_j' \mathbf{b}_j} = \|\mathbf{b}_j\| \quad (\text{C.22})$$

2. $\|\mathbf{b}_j\|$ está en un continuo descenso como incrementa el valor de λ , de tal modo que $\|\mathbf{b}_j\|$ tiende a cero cuando λ tiende al infinito.
3. Si γ es el ángulo entre el vector corregido, (\mathbf{b}_j) y el vector del descenso más pronunciado (\mathbf{b}_g) , entonces, cuando γ tiende a cero, λ tiende al infinito, y como consecuencia \mathbf{b}_j rota hacia \mathbf{b}_g

Así, como es indicado por (3), la corrección hecha a través de \mathbf{b}_j es una interpolación entre el vector producido por el método de Gauss y el método de Descenso más Pronunciado. Donde se conoce perfectamente que el segundo método es invariante a escalar hacia la solución, y considerando que es necesario tener un escalamiento del vector $\hat{\boldsymbol{\theta}}$ en el espacio. Marquardt elige escalar en unidades de los segundos momentos a través de $\frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \hat{\boldsymbol{\theta}}'}$ la cual disfraza a la matriz \mathbf{Z}_j . Marquardt para lograr esto supone que \mathbf{D} es una matriz diagonal cuyos elementos diagonales i -th son los mismos que los de $\mathbf{Z}_j' \mathbf{Z}_j$. De tal manera que después del escalamiento hecho, la ecuación resultante, es un nuevo vector corregido:

$$\mathbf{b}_j = \mathbf{D}^{-1/2} \left(\mathbf{D}^{-1/2} \mathbf{Z}_j' \mathbf{Z}_j \mathbf{D}^{-1/2} + \lambda \mathbf{I} \right)^{-1} \mathbf{D}^{-1/2} \mathbf{Z}_j' \left(\mathbf{Y} - \mathbf{f}^0 \right) \quad (\text{C.23})$$

donde el principio del algoritmo de Marquardt, se basó en las siguientes observaciones:

El método de Descenso más Pronunciado, frecuentemente trabaja bien en las iteraciones iniciales, pero la aproximación al mínimo es progresivamente muy lento. Por el otro lado, el Método de Gauss trabaja bien cuando el mínimo de $SS(\hat{\theta})$ se encuentra cerca, pero frecuentemente se tienen problemas en las iteraciones iniciales. Así que considerando las ecuaciones (C.15), (C.21) y la suposición (3), se observó que el fenómeno mencionado en las líneas anteriores es representado cuando $\lambda \rightarrow \infty$ y $\lambda \rightarrow 0$ respectivamente.

En las primeras iteraciones, cuando el mínimo está lejos, existe la posibilidad que se el vector corregido, (\mathbf{b}_j) , llegue a ser tan grande que la aproximación caiga notablemente. Sin embargo, de las suposiciones (1) y (2), se puede corregir esto. Para hacerlo de inicio se debe de dar un valor de λ grande, y este posteriormente debe disminuir conforme las iteraciones siguen su curso. Siempre teniendo en mente que si el progreso es satisfactorio, λ debe disminuir, (con esto la región de la aproximación lineal incrementa, de lo contrario ya se sabe que hacer).

Así las estrategias principales que toma Marquardt para llevar a cabo las iteraciones, son las siguientes:

Si nos referimos a $SS(\lambda)$ en vez de $SS(\hat{\theta})$, (valor que fue obtenido usando λ en la Ecuación (C.23) para obtener $\hat{\theta}_i$ de $\hat{\theta}_{i-1}$). De tal forma que λ^{i-1} sea el valor de λ en la previa iteración.

Marquadt introduce una nueva constante representada como v y cuyo valor es mayor a 1.

Teniendo claro lo anterior se calcula $SS(\lambda^{(i-1)})$ y $SS(\lambda^{(i-1)}/v)$, y se deben tomar en cuenta los siguientes criterios.

- i. Si; $SS(\lambda^{(i-1)}/v) \subseteq SS(\lambda^{(i-1)})$, entonces; $\lambda^{(i)} = \lambda^{(i-1)}/v$.
- ii. Si $SS(\lambda^{(i-1)}/v) \supset SS(\lambda^{(i-1)})$, y $SS(\lambda^{(i-1)}) \subseteq SS(\hat{\theta}^{(i-1)})$, entonces; $\lambda^{(i)} = \lambda^{(i-1)}$.

iii. Por otra parte, si se incrementa λ como resultado de sucesiva multiplicación con v , se debe considerar otra nueva constante, (w), la cual debe tener valores muy pequeños, de tal forma que si: $SS(\lambda^{(i-1)} v^w) \subseteq SS(\hat{\theta}^{(i-1)})$, entonces; $\lambda^{(i)} = \lambda^{(i-1)} v^w$

Esté algoritmo debe compartir la habilidad de los métodos de Gradientes y Descenso más Pronunciado, la cual es converger de una región lejana a una región donde existe un mínimo, y de debe comportarse como el método de Gauss, donde una vez que la vecindad del mínimo sea registrada, el problema debe converger rápidamente

C. Publicaciones

Revista Mexicana de Ingeniería Química

Chemical Engineering Communications
