

Mecanismos de Mistura em Reatores Químicos 2D

> Margarida S. C. A. Brito

Mixing Mechanisms in 2D Chemical Reactors.

This work aims to identify and characterize the mixing mechanisms in 2D reactors. The 2D nature of flow and mixing stems from the fact that the mixing dynamics are well-represented by 2D time-dependent maps, and the energy transfer mechanisms between flow scales are described from bidimensional turbulence theory. The 2D mixers discussed in this work are rotational devices, Confined Impinging Jets (CIJs), T-Jets, and Split-and-Recombine mixers. This study brings more advances in the know-how on 2D reactors based on the knowledge of mixing mechanisms. It contributes to generating useful data and robust solutions for more efficient industrial processes.

Este trabalho tem como objetivo a identificação e caracterização dos mecanismos de mistura em reatores 2D. A natureza 2D do escoamento e da mistura deve-se à sua dinâmica que é definida por um mapa temporal-espacial 2D e à transferência entre as escalas de escoamento, que é bem descrita no âmbito da teoria bidimensional da turbulência. Os misturadores 2D descritos neste trabalho são os dispositivos rotacionais, misturadores Confined Impinging Jets (CIJs), T-Jets e Split-and-Recombine. Este trabalho traz avanços no conhecimento dos reatores químicos 2D e do seu funcionamento tendo como base a compreensão dos mecanismos de mistura, contribuindo para a geração de dados úteis e soluções robustas para processos industriais mais eficientes.

Introdução

A mistura é uma unidade essencial para os processos industriais, nomeadamente em reações rápidas, em que o tempo de mistura de um fluido tem um grande impacto na qualidade do produto e nos custos operacionais. Isto acontece uma vez que as escalas de mistura e o respetivo tempo têm impacto nas taxas de calor e massa e no tempo de processo. Desta forma, este efeito direto da qualidade do produto faz com que seja necessário fazer um controlo preciso da mistura nos processos industriais.

Durante várias décadas, o conceito de mistura esteve relacionado com os tanques agitados convencionais. Estes reatores têm algumas limitações uma vez que a energia não é injetada no sistema diretamente na interface entre os fluidos, podendo causar uma fraca mistura, longos tempos de processo, pouca eficiência, e produção de produtos secundários indesejados. Nas últimas décadas, tem existido uma revolução da ciência da mistura que se baseia na miniaturização dos reatores, que tem levado a um maior controlo das escalas e tempo de mistura e, conseqüentemente, a uma maior eficiência dos processos. As misturas nestes reatores não ocorrem por energia mecânica externa, como por exemplo, com a utilização de agitadores. A mistura dos fluidos ocorre por um escoamento caótico em regime laminar, que se deve às pequenas dimensões dos misturadores.

Mas o que são afinal reatores químicos 2D? Neste tipo de reatores, a dinâmica de escoamento pode ser

caracterizada com recurso a duas dimensões espaciais, não sendo dependente de uma terceira dimensão. Desta forma, a mistura pode ser descrita por um mapa temporal-espacial bidimensional. A natureza caótica do escoamento promove uma deformação dos fluidos, ou seja a deformação da interface, e uma redução da espessura de cada fluido (tamanho da lamela ou estria), que é feito à mesma taxa de deformação [1,2]. Para além disso, a transferência de energia neste tipo de reatores é descrita pela teoria bidimensional da turbulência. Contrariamente à teoria clássica, na teoria da turbulência bidimensional, a energia é fornecida ao sistema pela injeção dos dois fluidos, promovendo a sua dissipação no ponto de contacto e, conseqüentemente, a formação de estruturas maiores (vórtices) [3].

Esta descrição da mistura de fluidos pela sua deformação em regimes laminares foi reportada, pela primeira vez, na década de 1950 [1,4]. Os critérios apontados para a avaliação da mistura são a geração de área interfacial e a redução do tamanho da estria [5]. Mohr *et al.* [1] introduziu o conceito de tamanho de estria pela visualização de um corante disperso pontualmente no interior de um fluido entre dois pratos paralelos, como apresentado na Figura 1. Neste esquema, o prato superior está em movimento, e o prato inferior estacionário. A difusão entre os dois fluidos é desprezada. Assim, tendo os dois fluidos as mesmas viscosidade e densidade, existe uma deformação e um aumento da área interfacial do corante

(Figura 1). A visualização do escoamento mostra a deformação do corante, cuja espessura é denominada pelo tamanho da estria $s(t)$.

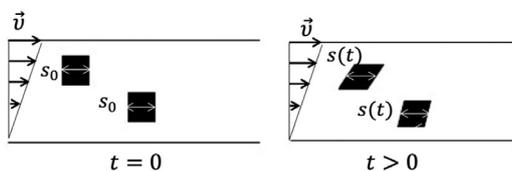


Figura 1 - Mecanismos de mistura num escoamento de corte.

Neste tipo de escoamentos, o tamanho da área interfacial tem um crescimento linear ao longo do tempo. Contudo, este crescimento pode tornar-se exponencial para escoamentos laminares caóticos, em que existe a formação de vórtices que promovem a deformação dos fluidos e, conseqüentemente, a formação da área interfacial [6]. Ottino [7] descreve os mecanismos de mistura laminar caótica como a deformação e o dobramento, no tempo e no espaço, de um elemento de fluido. Este fenômeno promove um gradiente de concentrações pela redução do tamanho da estria.

O trabalho desenvolvido no Laboratório LSRE-LCM tem contribuído para os estudos fundamentais dos mecanismos de misturas em reatores à escala micro/milimétrica [8-12]. Nestes reatores, a mistura ocorre em regimes laminares, sendo promovida pelo escoamento caótico dos fluidos. Os reatores em estudo têm sido dispositivos rotacionais, *Confined Impinging Jets (CIJs)*, *T-Jets* e os misturadores *Split-and-Recombine*. Este trabalho traz mais avanços no conhecimento dos reatores 2D e do seu funcionamento, tendo como base a compreensão dos mecanismos de mistura, contribuindo para a geração de dados úteis e soluções robustas para processos industriais mais eficientes.

Os misturadores aqui abordados são utilizados em diversas aplicações, sendo que os caudais associados são bastante baixos (aplicação microfluídica) ou a viscosidade dos fluidos é muito elevada (filmes, polímeros, produtos alimentares,...). No caso particular dos misturadores *CIJs* e *T-Jets*, estes estudos permitem a geração de diretrizes para a indústria de polímeros, e para a produção de nanopartículas, respetivamente. Os dispositivos rotacionais são propostos como uma metodologia para testar formulações à escala laboratorial, nomeadamente para processos de cinéticas para reações rápidas.

Dispositivos Rotacionais – Metodologia para estudos cinéticos de processos à escala laboratorial

Os dispositivos rotacionais consistem em dois pratos paralelos, em que o prato superior está a rodar e o prato inferior estacionário. A mistura de dois fluidos com as

mesmas propriedades físicas foi estudada a partir de simulações de dinâmica de fluidos computacionais (CFD, do inglês *Computational Fluid Dynamics*). Nestas simulações, as paredes exteriores não têm tensões e os fluidos estão inicialmente lado a lado. As simulações CFD mostram que a rotação do prato superior promove a deformação da área interfacial e a formação de uma estrutura lamelar pela sobreposição dos fluidos. Como descrito na Introdução, este comportamento é típico do escoamento de pura deformação [1].

O tamanho da estria foi determinado pela metodologia proposta por Matos *et al.* [13], a *Lagrangian Mixing Simulation (LMS)*. Para esta metodologia foi considerada uma geometria 2D que consiste na parede exterior do sistema prato-prato e condições periódicas foram consideradas nas duas arestas laterais para simular o escoamento contínuo ao longo de todo o domínio. A Figura 2a apresenta os mapas das duas fases para o tempo inicial, depois de uma volta e ao fim de duas voltas. Esta estrutura é semelhante para as simulações 2D e 3D.

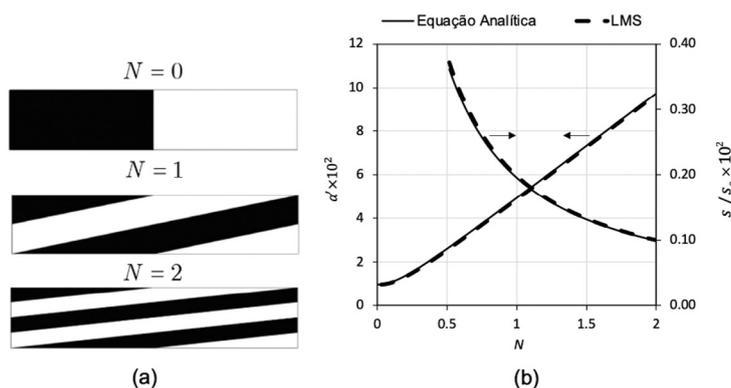


Figura 2 - (a) Mapas com a distribuição de cada fase para a posição de inicial ($N = 0$), depois de uma volta ($N = 1$) e duas voltas ($N = 2$); (b) a evolução do tamanho das estrias e do tamanho da área interfacial calculada por LMS e pelas equações analíticas. Imagens adaptadas de Brito *et al.* [14] com permissão.

Um método que faz o rastreio de uma partícula no escoamento foi utilizado para descrever matematicamente o tamanho da estria (Equação 1).

$$\frac{s(t)}{s_0} = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\omega R_p t}{h_p}\right)^2}} \quad (1)$$

Nesta equação, s_0 é o tamanho inicial da estria para $t = 0$, h_p é o espaço entre os dois pratos, ω é a velocidade angular do prato superior em rad s^{-1} e R_p é o raio do prato. A validação desta expressão permite projetar as condições de operação, tais como a velocidade do prato superior e o número de rotações para atingir uma estriação desejada. A expressão que descreve a área interfacial entre dois fluidos foi determinada usando a mesma metodologia (Equação 2).

$$\alpha' = \sqrt{1 + \left(\frac{\omega R_p t}{h_p}\right)^2} \quad (2)$$

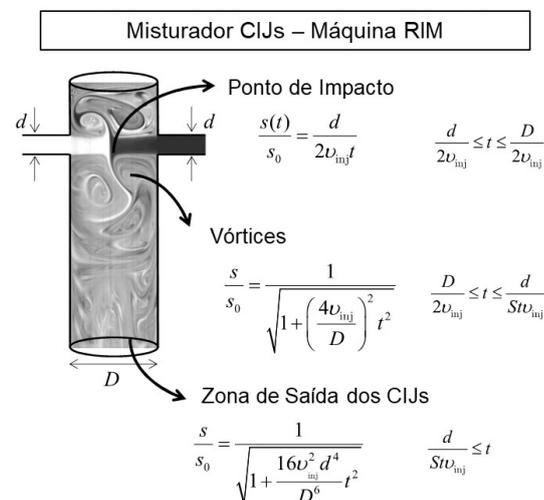
A Figura 2b compara estas expressões com a área interfacial e o tamanho da estria determinadas por LMS, permitindo a sua validação.

Os resultados CFD mostram que a mistura dá-se pela deformação da área interfacial e sobreposição dos fluidos, fenómeno semelhante aos mecanismos típicos dos regimes laminares caóticos. Desta forma, este dispositivo rotacional pode ser utilizado para estudos de cinéticas reacionais que ocorrem em reatores à escala industrial, tais como nas máquinas de *Reaction Injection Moulding* (RIM), amplamente utilizadas em processos de produção de poliuretanos. Nas máquinas RIM dois monómeros são injetados através de dois jatos opostos numa câmara onde a mistura é promovida. De seguida, a mistura segue para um molde onde ocorre a polimerização.

Frequentemente, a implementação de novos processos em máquinas RIM ocorre por tentativa e erro. Contudo, este processo leva ao consumo de muitos reagentes e à necessidade de otimização casuística das condições de processo. Assim, os dispositivos rotacionais são apontados como uma alternativa para um estudo das cinéticas e de formulações de poliuretanos, uma vez que, dependendo das condições de deformação, podem replicar diferentes zonas da cabeça de mistura. A Figura 3 mostra as expressões analíticas para a velocidade angular do prato superior que promovem tamanhos de estrias semelhantes às das condições que ocorrem nas diferentes regiões das cabeças de mistura das máquinas RIM. Este trabalho encontra-se descrito detalhadamente em Brito *et al.* [14].

Misturadores de Jatos Opostos

Os dois misturadores de jatos opostos apresentados neste trabalho são os *CIJs* e os *T-Jets*. Ambos os reatores apresentam dois jatos opostos onde as correntes são

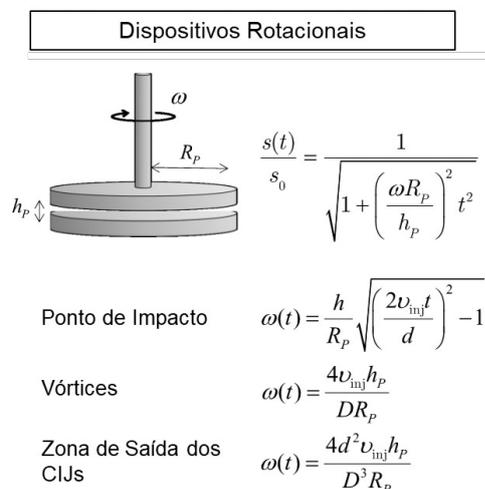


injetadas numa câmara onde ocorre a mistura. A principal diferença entre estes dois misturadores é a sua geometria: enquanto os *CIJs* são cilíndricos (Figura 3), os *T-Jets* são prismáticos (Figura 8a).

Misturadores CIJs

As cabeças das máquinas RIM são muitas vezes denominadas por *CIJs*. Nesta aplicação, estes reatores de jatos opostos são utilizados para a mistura de dois fluidos com propriedades, viscosidades e densidades, diferentes. Estudos experimentais e numéricos desenvolvidos no LSRE-LCM mostram que a mistura entre fluidos diferentes em *CIJs* é promovida pela formação de um regime laminar caótico [12,15]. As Figuras 4 e 5, retiradas de Brito *et al.* [12] e Brito *et al.* [15], respetivamente, mostram imagens capturadas pela técnica *PLIF* (*PLIF*, do termo inglês *Planar Laser Induced Fluorescence*) obtidas por um plano definido pelos eixos dos injetores e da cabeça de mistura, para razões de viscosidade de 5 para dois números de Reynolds definidos à entrada dos injetores, $Re_1 = 50$ e $Re_2 = 70$. Os dois fluidos injetados são soluções aquosas de glicerol, cujos índices de refração foram iguados adicionando cloreto de cálcio à solução menos viscosa. Esta metodologia para igualar os índices de refração está descrita em Brito [16]. A rodamina 6G foi utilizada como marcador nas experiências *PLIF* e adicionada ao fluido mais viscoso. Os índices 1 e 2 em Re_1 e Re_2 correspondem, respetivamente, ao injetor esquerdo (1) e ao injetor direito (2). Nestas experiências, o injetor 1 alimenta o fluido menos viscoso e o fluido mais viscoso é alimentado pelo injetor 2. As Figuras 4 e 5 mostram que as condições necessárias para a mistura de dois fluidos para uma razão de viscosidade de 5 é dada pelo balanço dos dois jatos no centro da câmara, e que o número de Reynolds crítico ($Re_c > 150$) é definido pelas condições de injeção do fluido mais viscoso. As mesmas conclusões foram obtidas para outros valores da razão de viscosidade,

Figura 3 - A evolução do tamanho das estrias em misturadores *CIJs* (e as respetivas condições para o reómetro prato-prato).



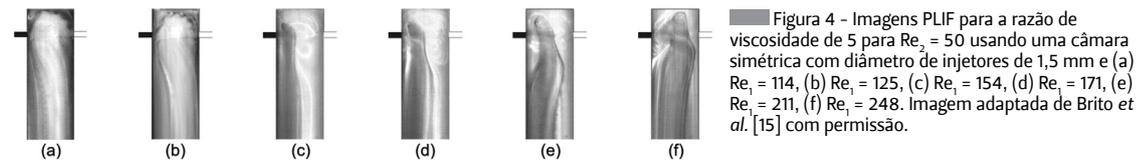


Figura 4 - Imagens PLIF para a razão de viscosidade de 5 para $Re_2 = 50$ usando uma câmara simétrica com diâmetro de injetores de 1,5 mm e (a) $Re_1 = 114$, (b) $Re_1 = 125$, (c) $Re_1 = 154$, (d) $Re_1 = 171$, (e) $Re_1 = 211$, (f) $Re_1 = 248$. Imagem adaptada de Brito et al. [15] com permissão.

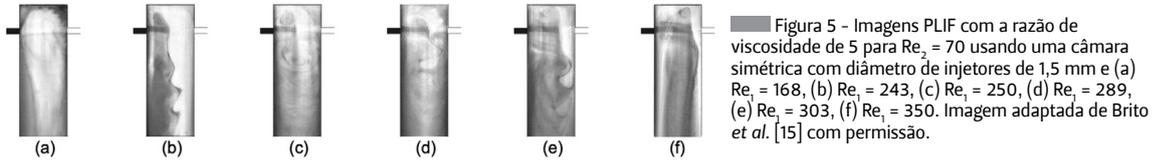


Figura 5 - Imagens PLIF com a razão de viscosidade de 5 para $Re_2 = 70$ usando uma câmara simétrica com diâmetro de injetores de 1,5 mm e (a) $Re_1 = 168$, (b) $Re_1 = 243$, (c) $Re_1 = 250$, (d) $Re_1 = 289$, (e) $Re_1 = 303$, (f) $Re_1 = 350$. Imagem adaptada de Brito et al. [15] com permissão.

nomeadamente 2 e 9, e tanto para câmaras simétricas em que os dois injetores têm os mesmos diâmetros, como para câmaras assimétricas [15].

A determinação do ponto de impacto em *CIJs* é fundamental para o planeamento de experiências e processos. Três modelos foram considerados para descrever o ponto de impacto na câmara: o modelo do análogo elástico, EAM (EAM, do termo em inglês *Elastic Analogue Model*), o modelo do balanço da energia cinética dos jatos, KEM (KEM, do termo em inglês *Kinetic Energy Model*) e o modelo do balanço do momento dos jatos, MM (MM, do termo em inglês *Momentum Model*). Estes modelos estão descritos detalhadamente em Fonte et al. [17] e Brito et al. [18]. Os três modelos consideram as propriedades dos fluidos, a geometria dos reatores e as condições de entrada.

O EAM, proposto por Fonte et al. [17], faz uma analogia do balanço de dois fluidos com o equilíbrio entre duas molas. Este modelo descreve o ponto de impacto entre dois jatos para uma mistura de dois fluidos com as mesmas propriedades (Equação 3).

$$\xi = \frac{\sqrt{\phi_K} \frac{Re_1 d_1}{Re_2 d_2} \left(1 + \frac{Re_2 d_2}{10 D}\right) - \left(1 + \frac{Re_1 d_1}{10 D}\right)}{\sqrt{\phi_K} \frac{Re_1 d_1}{Re_2 d_2} + 1} \quad (3)$$

$$\phi_K = \frac{\rho_1 d_1^2 U_{inj,1}^2}{\rho_2 d_2^2 U_{inj,2}^2}$$

Nesta equação, ξ é o ponto de impacto adimensional, D é o tamanho da câmara, ϕ_k é a razão da energia cinética dos jatos, ρ é a densidade, μ é a viscosidade e U_{inj} é a velocidade do injetor. KEM e MM prevêm o ponto de impacto dos dois jatos com base no balanço da energia cinética e no balanço dos momentos dos jatos, respetivamente. KEM é dada pela Equação 4.

$$\xi = \frac{\left[\frac{\rho_1^2}{\rho_2^2} \phi_M \frac{\mu_2}{\mu_1} \right] \left(1 + \frac{Re_2 d_2}{8 D}\right) - \left(1 + \frac{Re_1 d_1}{8 D}\right)}{\frac{1}{\rho_2^2} \phi_M \frac{\mu_2}{\mu_1} + 1} \quad (4)$$

$$\phi_M = \frac{\rho_1 U_{inj,1}^2 d_1^2}{\rho_2 U_{inj,2}^2 d_2^2}$$

Nesta equação, Φ_M é a razão do momento dos jatos. Para MM, a expressão é dada pela Equação 5.

$$\xi = \frac{\left[\frac{\rho_1}{\rho_2} \phi_M \frac{\mu_2}{\mu_1} \right] \left(1 + \frac{Re_2 d_2}{8 D}\right) - \left(1 + \frac{Re_1 d_1}{8 D}\right)}{\frac{\rho_1}{\rho_2} \phi_M \frac{\mu_2}{\mu_1} + 1} \quad (5)$$

Resultados numéricos e experimentais são utilizados para validar estes modelos.

A Figura 6 apresenta o ponto de impacto adimensional determinado através de experiências e simulações para duas condições diferentes: razão de viscosidade de 5 e razão de densidade de 1; razão de viscosidade de 5 e razão de densidade de 10. A Figura 6 mostra que o KEM é considerado uma equação universal, descrevendo o ponto de impacto para uma maior gama de validação.

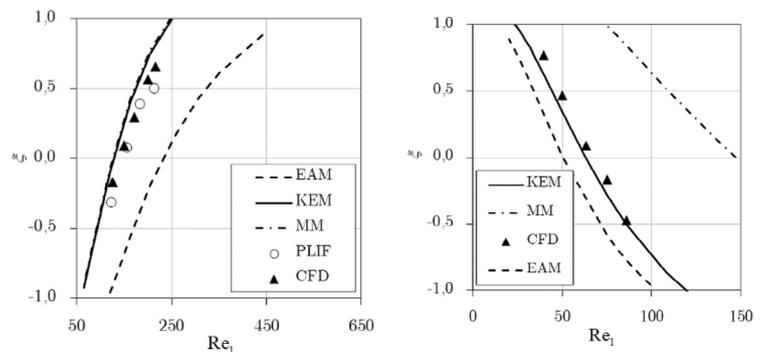


Figura 6 - Ponto de impacto adimensional (ξ) determinado por EAM, KEM, MM, pelas simulações CFD e dados de PLIF para a mistura de dois fluidos com propriedades diferentes - uma razão de viscosidade de 5 e (a) uma razão de densidade de 1 e $Re_2 = 45$; (b) uma razão de densidade de 10 e $Re_2 = 45$. Imagem retirada de Brito et al. [18] com permissão.

A validação do KEM como equação universal permite uma maior eficiência do planeamento das experiências em *CIJs*. Este modelo pode ser utilizado para o *design* de processos em máquinas RIM, permitindo a implementação dos *CIJs* noutros processos, como por exemplo, um processo de emulsificação contínuo em *CIJs*.

Neste trabalho foi explorada a utilização dos *CIJs* num processo contínuo para a produção de maionese. O óleo de girassol e uma solução aquosa de 1,3% m/m de lecitina, o tensoativo, foram injetados como dois jatos opostos na câmara de mistura dos *CIJs*. As condições

de injeção foram determinadas pelos resultados anteriormente descritos: o número de Reynolds da corrente mais viscosa (o óleo) é superior ao valor crítico ($Re_c > 150$), e as condições do fluido menos viscoso são determinadas pelo KEM para $\xi = 0$, que corresponde às condições de equilíbrio dos jatos. A distribuição das gotas de óleo foi obtida por microscopia ótica (MO) para uma amostra de emulsão recolhida à saída dos *CIJs* e apresentada na Figura 7. A distribuição do tamanho das gotas de óleo foi comparada com o valor obtido quando as emulsões são produzidas num processo *batch* operando às mesmas condições de deformação. A Figura 7 mostra que as emulsões produzidas em contínuo nos *CIJs* para $Re = 150$ e $Re = 200$ apresentam uma distribuição mais homogênea das gotas de óleo do que para a produção em *batch*. Estes resultados demonstram que a injeção de energia no sistema em *CIJs* é maior que no processo que usa o misturador rotor-estator. O teste da gota permitiu concluir que se trata de uma emulsão óleo/água, ou seja, quando a

emulsão é adicionada ao óleo, esta forma uma gota, pelo que podemos concluir que a fase contínua é água e a fase dispersa é óleo (Figura 7).

Misturador *T-Jets*

Os estudos fundamentais de mistura em *T-Jets* reportaram as condições críticas para iniciar o regime laminar caótico para fluidos com as mesmas propriedades [19,20]. A transição para um regime de escoamento caótico é significativamente afetada pelo número de Reynolds e por parâmetros geométricos. Estudos anteriores mostram que a melhor configuração geométrica para o escoamento laminar caótico e para a mistura de fluidos com as mesmas propriedades é para um reator designado por W6w1e4 (largura da câmara $W = 6$ mm, largura dos injetores $w = 1$ mm, profundidade do reator $e = 4$ mm) [19,20]. O esquema da geometria encontra-se na Figura 8a.

Este trabalho foi estendido ao estudo fundamental de dois fluidos com propriedades diferentes em reatores *T-Jets* e publicado em Brito *et al.* [21]. Os fluidos são duas soluções aquosas de glicerol, e a rodamina 6G é usada como marcador. O fluido mais viscoso é injetado através do injetor 1 e o fluido menos viscoso pelo injetor 2 (Figuras 8b e 8c). À semelhança da metodologia implementada para os *CIJs*, os índices de refração foram igualados usando o cloreto de cálcio. As Figuras 8b e 8c mostram que os misturadores *T-Jets* com a geometria W6w1e4 podem misturar fluidos diferentes com razões de viscosidade de 3. Resultados semelhantes foram obtidos para razões de viscosidade de 1,2. As imagens PLIF mostram que a transição para o regime laminar caótico é completamente controlada pelo jato com maior viscosidade e pelo equilíbrio dos jatos no centro da câmara. Outras geometrias foram estudadas, e a visualização do escoamento por PLIF mostra que geometrias com profundidades menores não promovem uma mistura tão eficiente uma vez que o efeito de parede é mais significativo para essas configurações. Portanto uma geometria com $W/w = 6$ e $W/e < 2$ promove uma mistura eficiente das duas

Figura 7 - Imagens de microscopia ótica de emulsões produzidas por um processo *batch* e por um processo contínuo (misturador *CIJs*) para $Re_{\text{óleo}} = 150$ e $Re_{\text{óleo}} = 200$; o respetivo diâmetro das gotas de óleo e uma imagem do tamanho da gota para uma emulsão óleo/água.

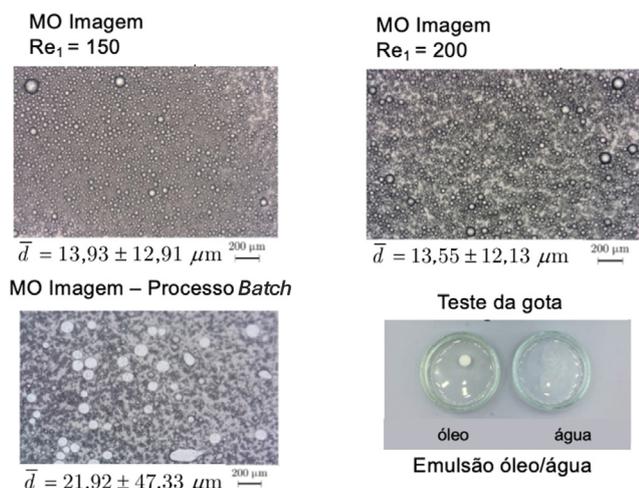
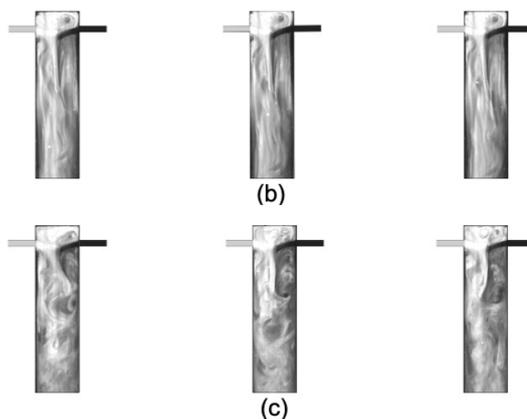
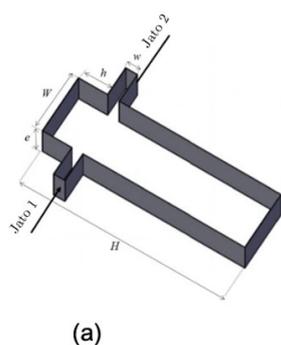


Figura 8 - (a) Representação esquemática do misturador *T-jets* e respetivas dimensões; (b) Imagens PLIF da mistura de dois fluidos dissimilares com razões de viscosidade de 3 usando geometria W6w1e4 com (a) $Re_{\text{Hjet1}} = 93$ e $Re_{\text{Hjet2}} = 560$; (c) $Re_{\text{Hjet1}} = 105$ e $Re_{\text{Hjet2}} = 640$. Imagem adaptada de Brito *et al.* [21] com permissão.



correntes a um regime laminar caótico para condições de injeção simétricas e assimétricas.

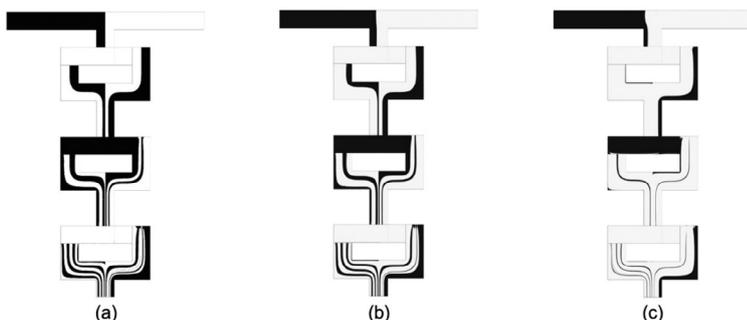
O modelo baseado na analogia dos jatos com duas molas (EAM) foi adaptado e mostra que é capaz de prever o ponto de impacto em *T-Jets*. Este modelo considera a viscosidade dos fluidos e a velocidade dos jatos. A validação deste modelo a partir dos resultados CFD mostra que a gama de validade é: $-0,5 < \xi < 0,5$ e $Re \geq 25$ [21]. Os parâmetros geométricos considerados nesta validação são $W/w = 6$ e $W/e \leq 2$. Esta conclusão mostra que o EAM pode ser implementado como uma metodologia para prever o ponto de impacto nos *T-Jets* e, por outro lado, para prever as condições dos jatos para a sua injeção no centro da câmara, $\xi = 0$, o que é uma condição chave para a eficiência do regime caótico. Uma validação mais detalhada deste modelo encontra-se em Brito *et al.* [21].

Misturadores *Split-and-Recombine*

Os misturadores *Split-and-Recombine* (SR) abordados neste trabalho consistem numa rede de misturadores *T-Jets* em que os fluidos são injetados na câmara de mistura. Cada misturador *T-Jet* tem um papel importante na deformação e na sobreposição das duas correntes. O corte das correntes ocorre à saída de cada elemento de mistura, ou seja, cada *T-Jet*.

O escoamento em misturadores SR foi estudado através de simulações CFD 3D [22]. A mistura foi simulada usando o modelo *Volume-Of-Fluid* (VOF). A geometria consiste num reator com quatro *T-Jets*, como mostra a Figura 9. Os fluidos têm as mesmas propriedades e são injetados a um regime de Stokes. Os resultados CFD apresentados na Figura 9 mostram uma distribuição não homogênea das estrias formada à saída de cada elemento de mistura. As lamelas mais finas são geradas nas zonas de maior deformação, ou seja, no centro do canal, enquanto as mais largas nas zonas de menor deformação, perto das paredes. A distribuição de tamanhos de estrias tem a mesma forma do perfil de velocidades na secção quadrática. A posição de cada interface entre os fluidos foi descrita através do balanço de massa em cada elemento de

Figura 9 - Distribuição das estrias para diferentes razões de entrada (a) $r_s = 1$; (b) $r_s = 2$; (c) $r_s = 10$. Imagem adaptada de Brito *et al.* [22] com permissão.



mistura, resultando na Equação 6.

$$\chi_i = \cos\left(\frac{1}{3}\cos^{-1}\left(1+4\chi_{i-1}^3-6\chi_{i-1}^2\frac{2^{1-n_{me}}r_s^{\alpha_0}}{r_s+1}\right)-\frac{2\pi}{3}\right)+\frac{1}{2} \quad (6)$$

Nesta equação, r_s é a razão de caudais, $i = 1$ até $2^{n_{me}+1}$, α é 0 se i é par ou 1 se i é ímpar e $X_0 = 0$. A Figura 10a mostra a validação da equação analítica que descreve χ_i e os resultados CFD, que está detalhadamente descrita em Brito *et al.* [22]. A expressão que descreve a posição da interface permite determinar o tamanho de estria máximo e mínimo. O decaimento do tamanho máximo de estria é dado pela Equação 7 e o tamanho mínimo de estria é dado pela Equação 8.

$$\delta_{max}(n_{me}) = \cos\left(\frac{1}{3}\cos^{-1}(1-2^{-n_{me}})-\frac{2\pi}{3}\right)+\frac{1}{2} \quad (7)$$

$$\delta_{min}(n_{me}) = \cos\left(\frac{1}{3}\cos^{-1}(-2^{-n_{me}})-\frac{2\pi}{3}\right)+\frac{1}{2} \quad (8)$$

A literatura descreve os mecanismos de mistura em SR pela repetição da transformação de Baker, que consiste no corte e combinação das correntes [23,24]. A criação de uma estrutura lamelar em misturadores SR promove a redução do tamanho das estrias, que é dado por $\delta(n_{me})=2^{-(n_{me}+1)}$ à luz da transformação ideal. Contudo, a Figura 10b mostra que o tamanho das estrias máximo e mínimo em misturadores SR é dado por $\delta_{max}(n_{me})\sim 2^{-n_{me}/2}$ e $\delta_{min}(n_{me})\sim 2^{-n_{me}}$ [22]. Isto significa que os escalares maiores decaem a metade da taxa determinada pela transformada de Baker, mostrando que o reator SR deverá ser duas vezes mais longo que o reator ideal para completar a mistura. A maior inovação deste trabalho é a introdução de um novo modelo que descreve a não-homogeneidade das escalas de misturas em misturadores SR. Os resultados propõem uma equação que determina o decaimento da tamanho da estria mais larga, que é o passo limitante nas operações de mistura neste tipo de reatores.

Conclusão

Este trabalho traz avanços no conhecimento de reatores 2D, contribuindo para a geração de dados úteis e soluções robustas para experiências com base no conhecimento fundamental dos mecanismos de mistura. Um objetivo deste trabalho é reunir ferramentas para uma futura implementação dos reatores 2D em plantas industriais e metodologias para o desenvolvimento de novos processos usando estes reatores. Cinco aspetos de inovação são reportados:

1. Os dispositivos rotacionais são propostos como uma metodologia que descreve a informação da mistura que ocorre em reatores 2D. As escalas de mistura são totalmente controladas pela velocidade

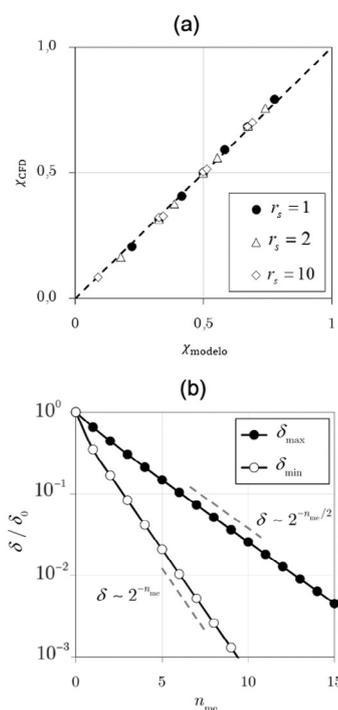


Figura 10 - (a) Comparação entre a posição da interface obtida pelo modelo analítico e pelas simulações CFD para diferentes valores de razões de caudais para dois elementos de mistura; (b) a taxa de decaimento do tamanho das estrias para $r_s = 1$ calculada pelo tamanho das estrias menor e maior. Imagem adaptada de Brito *et al.* [22] com permissão.

do prato superior e o respetivo número de rotações.

2. Uma equação analítica é proposta para descrever o ponto de impacto em reatores de jatos opostos. Esta equação tem em consideração os parâmetros geométricos, a velocidade dos jatos e as propriedades dos fluidos. A validação desta expressão tem uma grande contribuição para o *design* dos processos industriais em CIJs.

3. As aplicações dos reatores CIJs foram também estendidas aos processos contínuos de emulsificação. A eficiência da mistura é promovida pela injeção da fase dispersa e contínua como dois jatos opostos. Neste processo, a energia dissipada no ponto de impacto promove a mistura eficiente das fases.

4. Uma expressão que descreve a posição do ponto de impacto em *T-Jets* é também proposta e considera as propriedades dos fluidos, a geometria do reator e as condições de operação dos jatos de entrada.

5. Uma expressão que descreve o decaimento do tamanho das estrias em misturadores SR é proposta como uma ferramenta para o *design* de processos neste reator. A descrição completa dos mecanismos de mistura aumenta a possibilidade deste tipo de misturadores serem utilizados para a intensificação de processos.

Agradecimentos

Este trabalho foi financiado pelos POCI-01-0145-FE-FEDER-016551, POCI-01-0145-FEDER-030445 – financiados por fundos FEDER – Programa Operacional Competitividade e Internacionalização (POCI) e por fundos nacionais através da FCT – Fundação para a Ciência e a Tecnologia. Agradece-se também pela bolsa FCT PD/BD/135060/2017, por fundos nacionais através da FCT/MCTES (PIDDAC): LSRE-LCM, UIDB/50020/2020 (DOI:

10.54499/UIDB/50020/2020) e UIDP/50020/2020 (DOI: 10.54499/UIDP/50020/2020); e ALiCE, LA/P/0045/2020 (DOI: 10.54499/LA/P/0045/2020). Margarida S. C. A. Brito agradece ao Doutor Ricardo Santos, à Professora Doutora Madalena Dias, ao Professor Doutor José Carlos Lopes e ao Doutor Cláudio Fonte, pela orientação durante a execução do seu trabalho de doutoramento e por terem proporcionado as condições para a sua realização.

Referências

- [1] W. D. Mohr, R. L. Saxton, C. H. Jepson, *J. Ind. Eng. Chem.* **1957**, 49, 1855–1856. DOI: 10.1021/le50575a030.
- [2] W. L. Chien, H. Rising, J. M. Ottino, *J. Fluid Mech.* **2006**, 170, 355–377. DOI: 10.1017/S0022112086000927.
- [3] N. D. Gonçalves, H. M. Salvador, C. P. Fonte, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, R. J. Santos, *AIChE J.* **2017**, 63, 2335–2347. DOI: 10.1002/aic.15566.
- [4] R. S. Spencer, R. M. Wiley, *J. Colloid Sci.* **1951**, 6, 133–145. DOI: 10.1016/0095-8522(51)90033-5.
- [5] J. M. Ottino, W. E. Ranz, C. W. Macosko, *Chem. Eng. Sci.* **1979**, 34, 877–890. DOI: 10.1016/0009-2509(79)85145-3.
- [6] S. R. Wiggins, J. M. Ottino, *Philos. Trans., Math. Eng. Sci.* **2004**, 362, 937–970. DOI: 10.1098/rsta.2003.1356.
- [7] J. M. Ottino, “The kinematics of mixing: stretching, chaos and transport”, Cambridge University Press, Reino Unido, **1989**.
- [8] R. J. Santos, A. M. Teixeira, M. R. P. F. N. Costa, J. C. B. Lopes, *Int. Polym. Process* **2002**, 17, 387–394. DOI: 10.3139/217.1707.
- [9] E. Erkoç, R. J. Santos, M. I. Nunes, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, *Chem. Eng. Sci.* **2007**, 62, 5276–5281. DOI: 10.1016/j.ces.2007.03.036.
- [10] P. E. Laranjeira, A. A. Martins, J. C. B. Lopes, M. M. Dias, *AIChE J.* **2009**, 55, 2226–2243. DOI: 10.1002/aic.11815.
- [11] J. C. B. Lopes, P. E. Laranjeira, M. M. Dias, A. A. Martins, *Network mixer and related mixing process*. Patente U.S. 843493B2, **2013**.
- [12] M. S. C. A. Brito, L. P. Esteves, C. P. Fonte, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, R. J. Santos, *Chem. Eng. Res. Des.* **2018**, 134, 392–404. DOI: 10.1016/j.cherd.2018.04.020.
- [13] J. Matos, M. S. C. A. Brito, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, R. J. Santos, *Chem. Eng. Sci.* **2018**, 192, 199–210. DOI: 10.1016/j.ces.2018.07.035.
- [14] M. S. C. A. Brito, J. Matos, M. V. L. Torres, C. P. Fonte, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, R. J. Santos, *AIChE J.* **2022**, 68, e17597. DOI: 10.1002/aic.17597.
- [15] M. S. C. A. Brito, I. S. O. Barbosa, C. P. Fonte, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, R. J. Santos, *Chem. Eng. Sci.* **2022**, 258, 117756. DOI: 10.1016/j.ces.2022.117756.
- [16] M. S. C. A. Brito, *Processes* **2022**, 10, 1260. DOI: 10.3390/pr10071260.
- [17] C. P. Fonte, M. A. Sultan, R. J. Santos, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, *AIChE J.* **2016**, 62, 2200–2212. DOI: 10.1002/aic.15169.
- [18] M. S. C. A. Brito, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, R. J. Santos, C. P. Fonte, *J. Chem. Eng.* **2023**, 465, 142892. DOI: 10.1016/j.jcej.2023.142892.
- [19] M. A. S. M. Yousuf, *Modelling, Simulation and Experimental Characterization of T-Jets Reactors*, Tese de Doutoramento em Engenharia Química e Biológica, Universidade do Porto, **2013**. repositório-aberto.up.pt/handle/10216/72610.
- [20] M. A. Sultan, C. P. Fonte, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, R. J. Santos, *Chem. Eng. Sci.* **2012**, 73, 388–399. DOI: 10.1016/j.ces.2012.02.010.
- [21] M. S. C. A. Brito, C. P. Fonte, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, R. J. Santos, *Chem. Eng. Technol.* **2022**, 45, 355–364. DOI: 10.1002/ceat.202100536.
- [22] M. S. C. A. Brito, R. J. Santos, M. M. Dias, J. C. B. Lopes, C. P. Fonte, *Chem. Eng. Process: Process Intensif.* **2022**, 170, 108714. DOI: 10.1016/j.cep.2021.108714.
- [23] P. E. Neerinx, R. P. J. Denteneer, S. Peelen, H. E. H. Meijer, *Macromol. Mater. Eng.* **2011**, 296, 349–361. DOI: 10.1002/mame.201000338.
- [24] P. Carrière, *Phys. Fluids* **2007**, 19, 118110. DOI: 10.1063/1.2804959.

>

Margarida S. C. A. Brito

Laboratório LSRE-LCM – Laboratory of Separation and Reaction Engineering – Laboratory of Catalysis and Materials. Margarida Brito é Investigadora do Laboratório LSRE-LCM no Departamento de Engenharia Química da Faculdade de Engenharia da Universidade do Porto.

Desenvolve o seu trabalho em estudos fundamentais de mistura usando ferramentas de Dinâmica de Fluidos Computacionais (CFD) e a visualização experimental de escoamento.

mbrito@fe.up.pt

ORCID.org/0000-0003-1134-1743