



"El saber de mis hijos  
hará mi grandeza"

# **UNIVERSIDAD DE SONORA**

---

## **DIVISIÓN DE INGENIERÍA**

### **POSGRADO EN CIENCIAS DE LA INGENIERÍA**

**"ESTUDIO COMPUTACIONAL EN TRES DIMENSIONES DE  
LOS FENÓMENOS DE OXIDACIÓN, EXPANSIÓN Y  
FRAGMENTACIÓN DE PARTÍCULAS DE MATA DE COBRE  
EN UN HORNO DE CONVERSIÓN INSTANTÁNEA"**

**TESIS**

**QUE PARA OBTENER EL GRADO DE:**

**DOCTOR EN CIENCIAS DE LA INGENIERÍA:  
INGENIERÍA QUÍMICA**

**PRESENTA:**

**CIRILO ANDRÉS DUARTE RUIZ**

**DIRECTOR: MANUEL PÉREZ TELLO**

**Hermosillo, Sonora**

**AGOSTO, 2019**

# Repositorio Institucional UNISON



**"El saber de mis hijos  
hará mi grandeza"**



Excepto si se señala otra cosa, la licencia del ítem se describe como openAccess

# UNIVERSIDAD DE SONORA

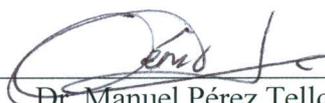
## APROBACION DEL JURADO

de la tesis presentada por:

**Cirilo Andrés Duarte Ruiz**

Esta tesis ha sido revisada por cada uno de los miembros del Jurado y por mayoría de votos la han encontrado satisfactoria.

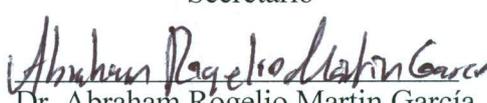
17-Ago-2019  
Fecha

  
\_\_\_\_\_  
Dr. Manuel Pérez Tello  
Presidente

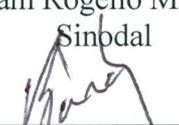
19-Ago-2019  
Fecha

  
\_\_\_\_\_  
Dr. Jesús Fernando Hinojosa Palafox  
Secretario

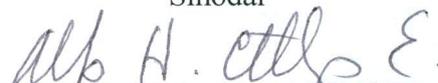
19-08-2019  
Fecha

  
\_\_\_\_\_  
Dr. Abraham Rogelio Martín García  
Sinodal

17/08/2019  
Fecha

  
\_\_\_\_\_  
Dr. Víctor Manuel Sánchez Corrales  
Sinodal

19/08/2019  
Fecha

  
\_\_\_\_\_  
Dr. Alfonso Humberto Castillejos Escobar  
Sinodal Externo



"El saber de mis hijos  
hará mi grandeza"

# UNIVERSIDAD DE SONORA

División de Ingeniería

Posgrado en Ciencias de la Ingeniería: Ingeniería Química

## AUTORIZACION DEL EXAMEN DE GRADO

15 de Agosto de 2019.

Por la presente se hace constar que la estudiante: **Cirilo Andrés Duarte Ruiz**, ha cumplido satisfactoriamente con los requisitos académicos correspondientes para la realización del Examen de grado del programa de Doctorado en Ciencias de la Ingeniería.

DR. ABRAHAM ROGELIO MARTIN GARCÍA

COORDINADOR

POSGRADO EN CIENCIAS DE LA INGENIERÍA

## RESUMEN

En el presente trabajo se llevó a cabo el desarrollo progresivo de un modelo predictivo en tres dimensiones, que incluye los fenómenos de oxidación, expansión y fragmentación de las partículas de mata de cobre sólida, en un reactor industrial de conversión instantánea. El modelo incluye el transporte de momentum, calor y masa entre las partículas y la fase gaseosa, la cinética heterogénea de las reacciones de oxidación en flujo turbulento y el campo de radiación en el reactor.

El desarrollo del modelo incluyó tres etapas. En la primera de ellas se desarrolló un modelo cinético no isotérmico del proceso, incluyendo los efectos de expansión y fragmentación de las partículas. Una vez validado con datos experimentales obtenidos a nivel laboratorio, el modelo fue usado para estudiar la influencia de los fenómenos de expansión y fragmentación sobre la cantidad y composición química de los polvos, bajo condiciones similares a las de un horno industrial. En esta etapa se definió el concepto de índice de fragmentación, el cual permitió cuantificar la extensión de la fragmentación en la población de partículas. Los resultados indicaron que la generación o consumo de polvos es a su vez el resultado de una competencia dinámica entre la expansión y fragmentación de partículas grandes en la alimentación; además, la composición química de los polvos resultó ser, para propósitos prácticos, igual a la composición química promedio de la población total de partículas.

La segunda etapa consistió en analizar el efecto de la dispersión de energía radiante en la nube de partículas sobre el comportamiento del proceso. Se estudiaron como variables de respuesta a la temperatura del gas y de las partículas, velocidad del gas, azufre remanente y densidad numérica. Los resultados de las simulaciones mostraron que los efectos de la dispersión tuvieron un efecto significativo en los resultados de consumo de azufre, elevando a este en un 13 % respecto a un caso sin dispersión. De la misma forma, la dispersión de radiación afectó reduciendo hasta un 18.92 % la cantidad de energía intercambiada entre las partículas sólidas y las paredes del horno; así como un decremento del 5.5 % en la temperatura máxima alcanzada por las mismas. Se concluyó que, cuando la dispersión de radiación no fue considerada en las simulaciones, las reacciones químicas fueron retardadas debido a que la fuente de calentamiento provino únicamente de las paredes del horno. Por lo anterior, el no incluir al fenómeno de

dispersión de radiación conlleva a un error significativo en las temperaturas y cinéticas reportadas en modelos sin esta característica.

La tercera etapa involucró el acoplamiento del modelo cinético con el modelo tridimensional, así como la simulación del horno industrial completo, esto para predecir los campos de velocidad, temperatura y composición química de la fase gaseosa, además de su composición química, temperatura y trayectorias de las nubes de partículas. Las simulaciones se realizaron en condiciones típicas de operación de un horno industrial de conversión instantánea, considerando que la alimentación sólida está compuesta por tres tamaños iniciales: 50, 100 y 150  $\mu\text{m}$ . Los resultados mostraron que las partículas de 50  $\mu\text{m}$  se expandieron en mayor medida que los otros tamaños, alcanzando hasta cinco veces su tamaño inicial antes de empezar a fragmentarse. Sin embargo, solo un 12.4 % de sus partículas presentó fragmentación, la cual fue progresiva hasta que las partículas tocaron el baño fundido. El 27.09 % de las partículas de 100  $\mu\text{m}$  y 150  $\mu\text{m}$  presentó fragmentación, por lo que la generación de polvos provino en su mayoría de estos tamaños. De acuerdo a los resultados de esta investigación, para un reactor industrial, la cantidad neta de polvos presentes en el proceso proviene mayormente de la alimentación al proceso. Lo anterior contradice las ideas preconcebidas en la práctica industrial, en la cual se considera que en general los polvos son producidos por las reacciones químicas violentas. Los resultados anteriores para los tamaños de 50  $\mu\text{m}$  y 100  $\mu\text{m}$  concuerdan con observaciones experimentales sobre la morfología y distribución de tamaños de partículas en el receptáculo de un reactor a nivel laboratorio, las cuales mostraron que en general las partículas pequeñas en la alimentación tienden a expandirse, mientras que las partículas grandes se fragmentan al oxidarse.

## ABSTRACT

In this investigation, the progressive development of a three-dimensional predictive model was carried out; which includes the oxidation, expansion and fragmentation phenomena for solid copper matte particles, in a flash converting industrial reactor. The model includes the transport phenomena of momentum, heat and mass between the particles and the gas phase, as well the heterogeneous kinetics of the oxidation reactions in turbulent flow, like so the radiation field in the reactor.

The development of the model included three stages. In the first one, a non-isothermal kinetic model of the process was developed, including the effects of expansion and fragmentation of the particles. Once validated with experimental results, the model was then used to study the influence of the phenomena of expansion and fragmentation on the quantity and chemical composition of powders, on similar conditions for an industrial furnace. In this stage, the concept of *fragmentation index* was defined, which allowed to quantify the extent of fragmentation in the particle population. Results indicate that generation or consumption of powders is result of a dynamical competition between expansion and fragmentation phenomena of large particles in feed. In addition, chemical composition of powders is, for practical purposes, equal to average composition in population.

Second stage consisted of analyzing the effect of the dispersion of radiant energy in the particle cloud on the behavior of the process. Response variables were gas temperature, particle temperature, gas velocity, remaining sulfur and numerical density. Simulation results showed that the dispersion of radiant energy had a significant effect for the sulfur consumption, increasing it 13%, just as reducing up to 18.92% for the amount of energy exchanged between the solid particles and the furnace walls; as well as a decrease of 5.5% in the maximum temperature reached by them. It was concluded that, when the radiation dispersion was not considered in the simulations, the chemical reactions were delayed because the source of heating came only from furnace walls instead other particles due to scattering. It was concluded that to don't include the dispersion phenomenon leads to a significant error in the temperatures and kinetics reported in models without this characteristic.

The third stage involved the coupling of the kinetic model with the three-dimensional model and the simulation of the complete industrial furnace, to predict the fields of velocity, temperature and chemical composition of the gas phase, as well as the chemical composition, temperature and trajectories for particles clouds. The simulations were performed under typical conditions of operation of an industrial furnace for instantaneous conversion, considering that the solid feed is composed of only three initial sizes: 50, 100 and 150  $\mu\text{m}$ . The results showed that 50  $\mu\text{m}$  particles expanded to a greater extent than the other sizes, reaching up to five times their initial size before they began to fragment. However, only 12.4% of its particles showed fragmentation, which was progressive until the particles reached the molten bath. The 27.09% of the particles of 100  $\mu\text{m}$  and 150  $\mu\text{m}$  presented fragmentation, so that the generation of dust came mostly from these sizes. According to the results, for an industrial reactor, the net quantity of powders present in the process comes mainly from the feed to the process, which contradicts the preconceived ideas in the industrial practice, in which it is considered that in general the powders are produced by violent chemical reactions. The above results for the 50  $\mu\text{m}$  and 100  $\mu\text{m}$  sizes are in agreement with experimental observations on the morphology and particle size distribution in the laboratory receptacle of a reactor, which showed that in general the small particles in the feed tend to expand , while large particles fragment when oxidized.

---

## DEDICATORIA

Dedico este trabajo a mi familia.

---

## TABLA DE CONTENIDO

<b>I RESUMEN.....</b>	<b>IV</b>
<b>II ABSTRACT.....</b>	<b>VI</b>
<b>III DEDICATORIA.....</b>	<b>VIII</b>
<b>IV LISTA DE FIGURAS.....</b>	<b>XII</b>
<b>V LISTA DE TABLAS.....</b>	<b>XIV</b>
<b>VI NOMENCLATURA.....</b>	<b>XV</b>
<b>VII AGRADECIMIENTOS.....</b>	<b>XXIX</b>
<b>1 INTRODUCCIÓN Y OBJETIVOS.....</b>	<b>1</b>
<b>2 REVISIÓN BIBLIOGRÁFICA.....</b>	<b>6</b>
<b>3 METODOLOGÍA.....</b>	<b>24</b>
<b>3.1 Modelo de Fragmentación Composicional (MFC).....</b>	<b>26</b>
<b>3.2 Efecto de los fenómenos de expansión y fragmentación sobre la     composición y generación de polvos en condiciones de flujo     laminar.</b>	<b>34</b>
<b>3.3 Modelo tridimensional de un reactor de conversión instantánea...</b>	<b>42</b>
<b>3.3.1 Algoritmo general de solución del Flash3D.....</b>	<b>44</b>
<b>3.3.2 Efecto de la dispersión de la energía radiante sobre los         campos de temperatura, en un reactor de conversión         instantánea.</b>	<b>49</b>

---

3.4	Acoplamiento del MFC al modelo tridimensional de conversión instantánea.	53
3.5	Estudio tridimensional de la fragmentación de partículas sulfurosas en un reactor de conversión instantánea.	55
<b>4</b>	<b>RESULTADOS Y DISCUSIÓN.....</b>	<b>57</b>
4.1	Estudio del efecto de los fenómenos de expansión y fragmentación sobre la generación y composición química de las partículas de polvo.	63
4.1.1	Análisis de las características del polvo en reactor de conversión instantánea.	63
4.1.2	Tendencias generales en las características del polvo.	73
4.2	Estudio del efecto de la dispersión de energía radiante entre las partículas y las paredes de la cámara de reacción del reactor de conversión instantánea.	82
4.2.1	Temperatura de las partículas.....	82
4.2.2	Temperatura y velocidad del gas.....	85
4.2.3	Contenido de SO <sub>2</sub> en la corriente gaseosa a través de la cámara de reacción.	86
4.2.4	Azufre remanente en las partículas.....	87
4.2.5	Densidad numérica de las partículas.....	90
4.3	Estudio tridimensional de la fragmentación de partículas sulfurosas en un reactor de conversión instantánea.	95
4.3.1	Resultados del modelo de fragmentación sobre las nubes de partículas de 50 µm.	100
4.3.2	Resultados del modelo de fragmentación sobre las nubes de partículas de 100 µm.	102

---

<b>5</b>	<b>CONCLUSIONES Y RECOMENDACIONES.....</b>	<b>106</b>
<b>6</b>	<b>BIBLIOGRAFÍA.....</b>	<b>109</b>
<b>7</b>	<b>ANEXOS.....</b>	<b>114</b>

---

---

## LISTA DE FIGURAS

<b>Figura 1-1.</b> Proceso de extracción y purificación del cobre .....	<b>2</b>
<b>Figura 1-2.</b> Proceso de conversión instantánea para la producción de cobre (Perez-Tello et al., 2001b) .....	<b>3</b>
<b>Figura 2-1.</b> Modelo de reacción de partículas sulfurosas (Perez-Tello et al., 2001a) ...	<b>16</b>
<b>Figura 2-2.</b> Modelos simplificados de dispersión de radiación .....	<b>21</b>
<b>Figura 3-1.</b> Diagrama de bloques de la metodología.....	<b>26</b>
<b>Figura 3-2.</b> Representación esquemática del modelo de fragmentación composicional para la conversión instantánea de partículas sulfurosas de cobre.....	<b>27</b>
<b>Figura 3-3.</b> Representación esquemática de un horno de conversión instantánea para propósitos de modelación matemática .....	<b>43</b>
<b>Figura 3-4.</b> Algoritmo General de Solución, adaptado de (Perez-Tello et al., 2001a)..	<b>47</b>
<b>Figura 4-1.</b> Evolución de la temperatura de la partícula de mata de cobre durante su oxidación en la cámara de reacción.....	<b>58</b>
<b>Figura 4-2.</b> Comparativo entre las distribuciones de tamaños experimental y calculada reportado por (Parra-Sánchez et al, 2014) .....	<b>60</b>
<b>Figura 4-3.</b> Comparativo entre las distribuciones de tamaños experimental y calculada reportado por (Parra-Sánchez et al, 2014).....	<b>61</b>
<b>Figura 4-4.</b> Comparativo entre los valores experimentales y calculados de las fracciones de polvo en el receptáculo, para todas las corridas de la Tabla (3-1) .....	<b>62</b>
<b>Figura 4-5.</b> Perfiles del índice de fragmentación, fracción másica del polvo y generación del mismo para el caso A .....	<b>64</b>
<b>Figura 4-6.</b> Perfiles del índice de fragmentación, fracción másica del polvo y generación del mismo para el caso B .....	<b>68</b>
<b>Figura 4-7.</b> Perfiles del contenido promedio de azufre en las partículas de polvo para los casos A y B .....	<b>71</b>
<b>Figura 4-8.</b> Mapa de la generación de polvos respecto al índice de fragmentación para todas las corridas de la Tabla (4-1) .....	<b>74</b>
<b>Figura 4-9.</b> Correlación del contenido promedio de azufre en la población respecto al contenido promedio en las partículas de polvo para todas las corridas de la Tabla (4-1).....	<b>79</b>
<b>Figura 4-10.</b> Resultados de la simulación del PCI para la temperatura de las partículas .....	<b>84</b>

---

<b>Figura 4-11.</b> Resultados de la simulación del PCI para la temperatura de los gases del proceso .....	<b>86</b>
<b>Figura 4-12.</b> Resultados de la simulación del PCI para el contenido de SO <sub>2</sub> .....	<b>87</b>
<b>Figura 4-13.</b> Resultados de la simulación del PCI para el contenido de azufre remanente .....	<b>89</b>
<b>Figura 4-14.</b> Resultados de la simulación del PCI para la densidad numérica de las partículas .....	<b>91</b>
<b>Figura 4-15.</b> Azufre eliminado (●) y temperatura máxima (■) en las partículas respecto al calor intercambiado con las paredes del horno .....	<b>92</b>
<b>Figura 4-16.</b> Malla computacional empleada en la simulación del reactor industrial de conversión instantánea .....	<b>96</b>
<b>Figura 4-17.</b> Distribución de los puntos de inyección en la entrada superior de la cámara de reacción del PCI .....	<b>97</b>
<b>Figura 4-18.</b> Trayectorias de seis líneas de corriente de elementos de la corriente gaseosa que entran perpendicularmente a la cámara de reacción. Para partículas de 50 μm .....	<b>98</b>
<b>Figura 4-19.</b> Resultados de la distribución de las nubes de partículas y su temperatura, para un tamaño inicial de 50 μm .....	<b>99</b>
<b>Figura 4-20.</b> Evolución de las distribuciones de tamaños para una nube de partículas tamaño inicial de 50 μm .....	<b>101</b>
<b>Figura 4-21.</b> Evolución de las distribuciones de tamaños para una nube de partículas tamaño inicial de 100 μm .....	<b>103</b>
<b>Figura 4-22.</b> Contenido de polvos respecto al tiempo para partículas de 50 μm (■) y 100 μm (●).....	<b>104</b>

---

---

## LISTA DE TABLAS

<b>Tabla 2-1.</b> Estudios experimentales en procesos de oxidación instantánea de partículas de mata de cobre (1985-2018).....	<b>7</b>
<b>Tabla 2-2.</b> Modelos matemáticos en procesos de oxidación instantánea de partículas de mata de cobre (1985 -2018) .....	<b>12</b>
<b>Tabla 3-1.</b> Corridas de simulación y parámetros del MFC usados en los cálculos .....	<b>39</b>
<b>Tabla 3-2.</b> Parámetros usados en las simulaciones del MFC .....	<b>41</b>
<b>Tabla 3-3.</b> Ecuaciones de la fase gaseosa .....	<b>44</b>
<b>Tabla 3-4.</b> Ecuaciones de la fase partícula .....	<b>45</b>
<b>Tabla3-5.</b> Funciones de fase usadas en este estudio.....	<b>50</b>
<b>Tabla 3-6.</b> Parámetros de la simulación empleados en el Flash3D .....	<b>51</b>
<b>Tabla 3-7.</b> Casos a ser evaluados en el estudio del efecto de la dispersión de la energía radiante.....	<b>52</b>
<b>Tabla 4-1.</b> Resumen de resultados de los casos A y B.....	<b>70</b>
<b>Tabla 4-2.</b> Energía radiante intercambiada entre las paredes y las partículas .....	<b>92</b>

---

---

## NOMENCLATURA

### NOMENCLATURA PARA EL MODELO DE DISPERSIÓN DE RADIACIÓN

Símbolo	Unidades	Definición
$I$	W	Intensidad de la energía radiante.
$t$	s	Tiempo.
$k$	J K <sup>-1</sup>	Constante de Boltzmann, igual a 1.3807E-23 J K <sup>-1</sup>
$\sigma$	W m <sup>-2</sup> K <sup>-4</sup>	Constante de Stephan-Boltzmann, igual a 5.67E-8 W m <sup>-2</sup> K <sup>-4</sup>
$c$	m s <sup>-1</sup>	Velocidad de la luz en el vacío.
$s$	m	Longitud geométrica.
$\Phi$	sr <sup>-1</sup>	Función de fase para dispersión de radiación.
$\Omega$	sr	Ángulo sólido.
$\theta$	rad	Ángulo de dispersión.
$\beta$	rad	Ángulo de reflectancia.

---

---

## NOMENCLATURA PARA EL MODELO CINÉTICO

Símbolo	Unidades	Definición
<i>A</i>		Nomenclatura usada por simplicidad para representar al oxígeno.
<i>B</i>		Nomenclatura usada por simplicidad para representar al cobre.
<i>b</i>	1	Coefficiente estequiométrico en la reacción química para la mata de cobre.
<i>C</i>		Nomenclatura usada por simplicidad para representar a los óxidos.
<i>c</i>	1	Coefficiente estequiométrico en la reacción química para la capa de óxidos.
$C_A$	$\text{kgmol}^{-1}$	Concentración de oxígeno gaseoso.
$C_{Ab}$	$\text{kgmol}^{-1}$	Concentración de oxígeno gaseoso en el seno del fluido.
$C_{Ac}$	$\text{kgmol}^{-1}$	Concentración de oxígeno gaseoso en la superficie del núcleo sin reaccionar.
$C_{As}$	$\text{kgmol}^{-1}$	Concentración de oxígeno gaseoso en la capa de óxidos.
<i>D</i>		Nomenclatura usada por simplicidad para representar al $\text{SO}_2$ .
<i>d</i>	1	Coefficiente estequiométrico en la reacción química para el $\text{SO}_2$ .
$D_{AB}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	Difusividad molecular de oxígeno gaseoso en el nitrógeno.

---

$D_{Aef}$	$m^2 s^{-1}$	Difusividad efectiva del oxígeno en la costra de óxidos.
$h$	$\mu m s^{-1}$	Rapidez de crecimiento del radio de la partícula.
$k_m$	$m s^{-1}$	Coefficiente de transferencia de masa externo.
$M$	$kgmol^{-1}$	Peso molecular.
$n$	1	Número de moles.
$N_A _{r_c}$	$kgmol m^2 s^{-1}$	Flux de oxígeno en la superficie del núcleo.
$N_A _{r_p}$	$kgmol m^2 s^{-1}$	Flux de oxígeno en la superficie de la partícula.
$P$	atm	Presión absoluta.
$R_A _{r_c}$	$kgmol s^{-1}$	Rapidez de consumo de oxígeno en la superficie del núcleo.
$Re_p$	1	Número de Reynolds de la partícula.
$r_c$	m	Radio del núcleo.
$r_i$	m	Radio inicial de la partícula.
$r_p$	m	Radio de la partícula.
$S_c$	1	Número de Schmidt.
$S_h$	1	Número de Sherwood.
$T$	K	Temperatura absoluta.
$\langle U_g \rangle$	$m s^{-1}$	Velocidad promedio del gas.
$V$	$m^3$	Volumen.
$X$		Grado de conversión de la partícula.

---

$x$	$\mu\text{m}$	Diámetro de la partícula.
$y$	1	Coefficiente estequiométrico del sulfuro de hierro en la mata de cobre.

### Símbolos Griegos

$\Delta t$	s	Tiempo que tarda una partícula en llegar de una posición en el reactor a otra. Paso de integración.
$\varepsilon$	1	Porosidad de la partícula.
$\mu$	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$	Viscosidad del gas de proceso.
$\rho$	$\text{kg m}^{-3}$	Densidad másica aparente.
$\hat{\rho}$	$\text{kgmol m}^{-3}$	Densidad molar de las especies químicas.
$\sigma_{AB}$	Å	Diámetro de colisión. Parámetro empleado en la ecuación de Chapman-Enskog para determinar la difusividad molecular.
$\tau$	1	Tortuosidad.
$\Omega$	1	Integral de colisión. Parámetro empleado en la ecuación de Chapman-Enskog para determinar la difusividad molecular.

### Subíndices

A	Referente al oxígeno gaseoso.
B	Referente al seno del fluido del sistema.

---

B	Nitrógeno.
C	Referente al núcleo de la partícula de mata de cobre.
Eq	Referente al equilibrio.
G	Fase gaseosa.
I	Referente a las condiciones iniciales.
P	Referente a la partícula
S	Fase sólida.
X	Átomos de azufre dentro del sulfuro de hierro en la mata de cobre.

### **Superíndices**

0	Referente al tiempo inicial.
m	Referente al tiempo anterior.
m+1	Referente al tiempo actual.

## NOMENCLATURA PARA EL MODELO DE FRAGMENTACIÓN

Símbolo	Unidades	Definición
$C_3$	1	Factor de forma de las partículas.
$F_{20,a}$	1	Fracción en peso de polvos en la población de las partículas de la alimentación.
$F_{20,r}$	1	Fracción peso de polvos en la población de partículas en el receptáculo.
$f_{2f}$	1	Fracción de las partículas más pequeñas que logran fragmentarse.
$f_3$	$\mu\text{m}^{-1}$	Función de densidad másica calculada
$f_3^s$	$\mu\text{m}^{-1}$	Función de densidad másica para la especie s.
$f_i$	1	Fracción de partículas que se fragmentan, de tamaño $x_{i0}$ , en cualquier punto de la cámara de reacción.
$f_{ic}$	1	Factor de diámetro crítico del tamaño inicial $x_{i0}$ .
$f_{if}$	1	Fracción de partículas que logran fragmentarse del tamaño inicial $x_{i0}$ al llegar al receptáculo.
$f_{nf}$	1	Fracción de las partículas más grandes que logran fragmentarse.
$\overline{g_3}$	$\mu\text{m}^{-1}$	Promedio de la función de densidad másica experimental.

---

$g$	$\mu\text{m s}^{-1}$	Rapidez de expansión constante del diámetro de las partículas en la cámara de reacción.
$g_3$	$\mu\text{m}^{-1}$	Función de densidad másica experimental.
$k$	1	Constante de proporcionalidad para los cocientes de fragmentación.
$L$	m	Longitud del reactor.
$m_\alpha$	kg	Masa total de partículas en la alimentación.
$m_{i\delta k}^s$	kg	Masa de la especie $s$ en las partículas hijas de tamaño $x_k$ que se produjeron por la fragmentación de partículas de tamaño $x_\delta$ que provienen de partículas $x_{i0}$ de la alimentación.
$m_k^s$	kg	Masa de la especie $s$ en todas las partículas de tamaño $x_k$ .
$m_{lk}^s$	kg	Masa de la especie $s$ en las partículas hijas de tamaño $x_k$ que se produjeron por la expansión de todas las partículas de tamaño inicial $x_l$ .
$m_{\delta k}^s$	kg	Masa de la especie $s$ en las partículas hijas de tamaño $x_k$ que se produjeron por la expansión de todas las partículas de tamaño inicial $x_\delta$ .
$m_{i0}$	kg	Masa de partículas de tamaño $x_{i0}$ en la alimentación.
$m_{i\delta}$	kg	Masa de partículas de tamaño $x_{i0}$ en la alimentación que llegaron a un tamaño $x_\delta$ al momento de su fragmentación.

---

$m_{i\delta k}$	kg	Masa de partículas de tamaño $x_k$ que llegaron al receptáculo y que provienen de la fragmentación de partículas de tamaño $x_\delta$ que fueron alimentadas con un tamaño inicial $x_{i0}$ .
$m_k$	kg	Masa total de partículas hijas de tamaño $x_k$ .
$m_{lk}$	kg	Masa de partículas hijas de tamaño $x_k$ que resultaron de la expansión de partículas con un tamaño inicial $x_l$ .
$m^s$	kg	Masa de la especie $s$ en las partículas.
$m_{\delta k}$	kg	Masa de partículas hijas de tamaño $x_k$ que resultaron de la fragmentación de partículas madre con un tamaño $x_\delta$ .
$m_r$	kg	Masa total en el receptáculo.
$n_{i\delta}^0$	1	Número total de partículas hijas que produce una sola partícula madre de tamaño $x_\delta$ .
$n_{i\delta k}$	1	Número total de partículas hijas producidas de tamaño $x_k$ por todas las partículas que alcanzaron un tamaño $x_\delta$ al fragmentarse.
$n_{i\delta k}^0$	1	Número total de partículas hijas de tamaño $x_k$ que produce una sola partícula madre de tamaño $x_\delta$ .
$n$	1	Total de tamaños utilizados para representar la distribución de partículas para la discretización de tamaños.

---

$n_i$	1	Número total de partículas de tamaño $x_{i0}$ en la alimentación.
$n_{i\delta}$	1	Número de partículas con tamaño $x_{i0}$ en la alimentación y llegan al tamaño $x_\delta$ al momento de fragmentarse.
$\eta_f$	1	Índice de fragmentación definido en este trabajo como la relación entre los fenómenos de expansión y fragmentación.
$p$	$\mu\text{m}^{-1}$	Pendiente de la recta resultante de graficar $f_{if}$ contra $x_{i0}$ .
$r^2$	1	Parámetro de correlación.
$t_{ic}$	s	Tiempo que una partícula de tamaño $x_{i0}$ tarda en llegar a su tamaño crítico antes de fragmentarse.
$v$	$\text{m s}^{-1}$	Velocidad de desplazamiento de las partículas.
$W$	kg	Masa total de partículas en la alimentación
$x_{20}$	$\mu\text{m}$	Diámetro de la partícula más pequeña en la alimentación que se supone que puede fragmentarse.
$x_{i0}$	$\mu\text{m}$	Diámetro de la partícula en la alimentación.
$x_{ic}$	$\mu\text{m}$	Diámetro crítico que alcanza una partícula antes de fragmentarse.
$x_k$	$\mu\text{m}$	Diámetro de las partículas hijas producidas.

$x_{n0}$	$\mu\text{m}$	Diámetro de la partícula más grande en la alimentación que se supone no se expande.
$x_{\beta 0}$	$\mu\text{m}$	Diámetro de la partícula a partir de la cual $f_{2f}$ es diferente de cero cuando la pendiente de la gráfica $f_{if}$ contra $x_{i0}$ es positiva y es diferente de uno cuando la pendiente es negativa.
$x_{\delta}$	$\mu\text{m}$	Diámetro de la partícula en el momento de la fragmentación.
$x_{n0}$	$\mu\text{m}$	Diámetro de la partícula a partir de la cual $f_{2f}$ es diferente de cero cuando la pendiente de la gráfica $f_{if}$ contra $x_{i0}$ es positiva y es diferente de uno cuando la pendiente es negativa.

### Símbolos griegos

$\beta_{ik}$	1	Coeficiente de distribución de la masa de las partículas con tamaño $x_{i0}$ en la alimentación a las partículas con tamaño $x_k$ en el receptáculo.
$B_{ik}$	1	Coeficiente de distribución acumulativo de las partículas con tamaño $x_{i0}$ alimentadas en las partículas con tamaño $x_k$ en el receptáculo
$\Delta x_{i0}$	$\mu\text{m}$	Incremento en la discretización de tamaños.
$\gamma$	1	Parámetro de distribución.
$\lambda_{i\delta k}$	1	Fracción de partículas de tamaño $x_k$ que provienen de la fragmentación de partículas de tamaño $x_{\delta}$ y que entraron a la cámara de reacción con un tamaño $x_{i0}$ .

---

$\sigma_{ik}$	1	Coeficiente de contribución de las partículas con tamaño $x_{i0}$ en la alimentación en la masa de las partículas de tamaño $x_k$ en el receptáculo.
$\rho_i$	kg m <sup>-3</sup>	Densidad aparente de la partícula en la alimentación
$\rho_{i\delta}$	kg m <sup>-3</sup>	Densidad aparente de la partícula de tamaño $x_\delta$ en el momento de su fragmentación y proviene de una partícula de tamaño $x_{i0}$ en la alimentación.
$\tau$	s	Tiempo de residencia de las partículas en el reactor.
$\phi_{ik}$	1	Coeficiente de contribución acumulativo de las partículas con tamaño $x_{i0}$ en la alimentación en la masa de las partículas de tamaño $x_k$ en el receptáculo.
$\omega^s$	1	Fracción peso de la especie $s$ por fracción de tamaño.
$\omega_{i\delta}^s$	1	Fracción peso de la especie $s$ en las partículas de tamaño $x_\delta$ que provienen de una partícula de tamaño $x_{i0}$ en la alimentación.
$\omega_{i\delta k}^s$	1	Fracción peso de la especie $s$ en las partículas hijas de tamaño $x_k$ que provienen de la fragmentación de una partícula $x_\delta$ que entraron a la cámara de reacción con un tamaño $x_{i0}$ .
$\Omega^s$	1	Fracción peso de la especie $s$ en la población de partículas.

---

---

## Subíndices

0	Referido a condiciones de las partículas alimentadas.
1	Fracción de tamaño más pequeña de partícula en la población de partículas.
2	Segunda fracción de tamaño más pequeña en la población de partículas.
3	Referido a factor geométrico.
<i>a</i>	Referido a la alimentación.
<i>c</i>	Referido a condiciones críticas de la partícula.
<i>f</i>	Fragmentación.
<i>i</i>	<i>i-ésima</i> Fracción de tamaño presente en la alimentación.
<i>k</i>	<i>k-ésima</i> fracción de tamaño producido.
<i>l</i>	Referencia al tamaño inicial de partículas que no sufren fragmentación sólo expansión.
<i>n</i>	Fracción de tamaño más grande en la población de partículas.
<i>r</i>	Referente al receptáculo.
$\delta$	$\delta$ -ésima fracción de tamaño al momento de la fragmentación.

## Superíndices

---

*	Referencia a valores de los parámetros ajustables para la determinación de la pendiente de la recta resultante de graficar $f_{if}$ contra $x_{i0}$ .
0	Referencia a una partícula individual.
$a, b, c, a_1, b_1, c_1, a_2, b_2, c_2,$	Parámetros reportados por los autores a las diferentes condiciones experimentales probadas en un horno a nivel laboratorio.
$s$	Referencia a las especies químicas de la partícula.

### NOMENCLATURA PARA EL BALANCE DE ENERGÍA

Símbolo	Unidades	Definición
$Q$	$J s^{-1}$	Flujo de calor.
$H_r$	$J s^{-1}$	Flujo de calor debido a las reacciones exotérmicas.
$H_c$	$J kg^{-1}$	Entalpía de la partícula.
$h$	$W m^{-2} K$	Coefficiente convectivo.
$N_u$	1	Número de Nusselt.
$k$	$W m^{-1} K$	Conductividad térmica.
$d_p$	m	Diámetro de las partículas.
$S_{rp}$	$m^2$	Área expuesta por las partículas.

---

---

$S_{rc}$	$m^2$	Área expuesta por el núcleo de las partículas.
$N$	kgmol	Cantidad de materia.
$T_w$	K	Temperatura de las paredes del horno.
$T_p$	K	Temperatura de la partícula.
$R_A$	$kg\ s^{-1}$	Velocidad de consumo de oxígeno
$\sigma$	$W\ m^{-2}\ K^4$	Constante de Stephan Boltzmann

---

## **AGRADECIMIENTOS**

A mi asesor Manuel Pérez Tello por su tiempo y apoyo constante en esta investigación.

A mi familia que ha estado conmigo y me apoyado siempre.

A mis amigos del doctorado.

Al Consejo Nacional de Ciencia y Tecnología (CONACYT) por su apoyo económico.

## CAPÍTULO 1

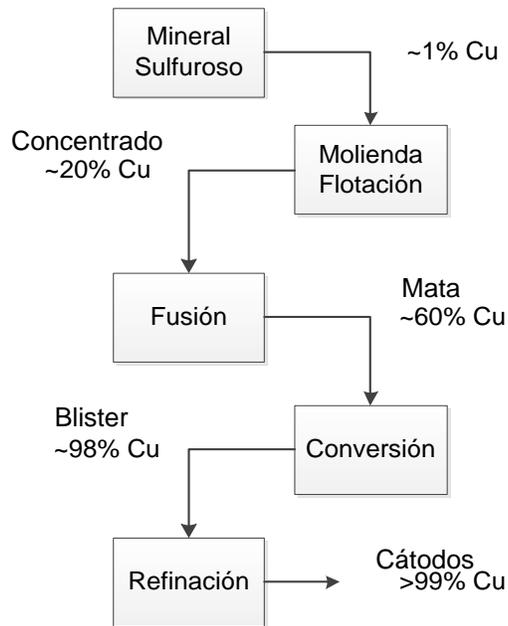
### INTRODUCCIÓN Y OBJETIVOS

El cobre (*Cu*) es uno de los metales más importantes para la humanidad. Su ductilidad, maleabilidad, conductividad eléctrica y térmica lo convierten en uno de los materiales ideales tanto para elementos básicos como equipos de comunicaciones. Se trata de un metal que suele encontrarse en la naturaleza en forma de minerales sulfurosos, tales como calcopirita ( $CuFeS_2$ ), bornita ( $Cu_5FeS_4$ ) y calcocita ( $Cu_2S$ ); y en menor medida en forma de óxidos, carbonatos y/o silicatos (Schlesinger et al., 2011a).

Los métodos de extracción de cobre se dividen en hidrometalúrgicos, que emplean soluciones acuosas a bajas temperaturas para la separación de los iones  $Cu^{+2}$  en el caso de óxidos o carbonatos; y los pirometalúrgicos, los cuales se realizan a altas temperaturas para fundir los minerales y extraer los metales valiosos.

La producción pirometalúrgica de cobre a partir de minerales primarios típicamente se lleva a cabo a través de las siguientes etapas, las cuales se muestran esquemáticamente en la Figura (1-1):

1. Procesamiento de los minerales sulfurosos de cobre para producir concentrado de cobre mediante flotación.
2. Fundición del concentrado de cobre a altas temperaturas para producir mata de cobre.
3. Conversión de la mata de cobre a altas temperaturas para producir cobre ampollado (conocido comúnmente como “blíster”).
4. Electro-refinación de cobre blíster para producir cátodos de cobre.

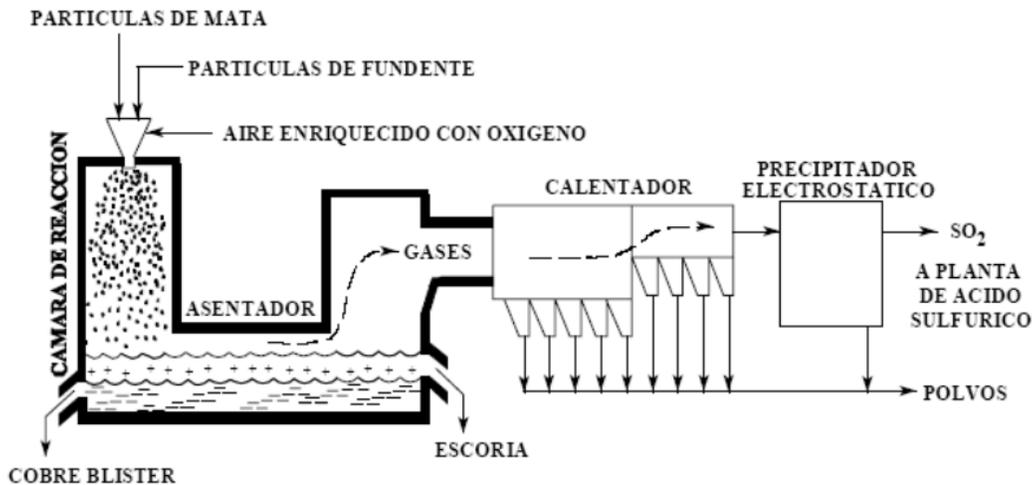


**Figura 1-1.** Proceso de extracción y purificación del cobre.

El proceso comienza con la voladura en minas, de donde las rocas son acarreadas a las etapas de trituración y molienda. El material molido, que contiene menos del 1% en peso de  $Cu$ , pasa a la planta de flotación donde se obtiene un concentrado con 30% – 40% de  $Cu$ . Esta es la materia prima para el proceso de fusión instantánea (PFI) (Schlesinger et al., 2011b). En el PFI se aprovecha el contenido de azufre de minerales como la calcopirita ( $CuFeS_2$ ) para promover reacciones exotérmicas que provocan la fundición de las partículas. El objetivo de los procesos de fusión es liberar al cobre de la presencia de elementos no deseados como el hierro y el azufre, y así conseguir la mata de cobre con un contenido alrededor del 70% de  $Cu$ . Durante el PFI también se producen escoria, polvos y gases de combustión concentrados en  $SO_2$ ; estos últimos pueden ser aprovechados para la producción de ácido sulfúrico (Schlesinger et al., 2011c).

La mata de cobre, que consta fundamentalmente de  $Cu_2S$  y  $FeS$  en estado fundido, se procesa en la etapa de conversión para producir cobre blíster con una pureza del 98 % de  $Cu$ . Este último es solidificado en forma de ánodos y enviado a la planta de refinación electrolítica para la obtención de  $Cu$  con una pureza superior al 99 % (Schlesinger et al., 2011d).

El presente trabajo se enfoca en el proceso de conversión instantánea (PCI) de matas sólidas de cobre, el cual se muestra en la Figura (1-2). La mata de cobre es una solución sólida no estequiométrica de  $Cu_2S$  y  $FeS$  en proporciones que varían de acuerdo al mineral de origen (Rosenqvist, 2004). Durante el proceso, las partículas sólidas finamente divididas de mata de cobre se oxidan en un reactor a temperaturas en el orden de los 1200 °C, en presencia de oxígeno gaseoso, para producir cobre fundido con una pureza de 98 % en peso.



**Figura 1-2.** Proceso de conversión instantánea para la producción de cobre (Perez-Tello et al., 2001b)

A la fecha existen pocos estudios sobre conversión instantánea reportados en literatura. La relevancia del PCI crea la necesidad de comprender los fenómenos que lo controlan en vías de su optimización. Estudios teóricos (Chaubal et al., 1989; Jiao, 1987; Perez-Tello et al., 2001a) y datos experimentales (Perez-Tello et al., 2001b; Suominen, 1991) sobre el PCI han sido reportados en la literatura; sin embargo, a pesar de la evidencia de fragmentación en los datos experimentales, no se han tomado en cuenta los cambios en las distribuciones de tamaños en las poblaciones de partículas en un modelo más incluyente; esto, es necesario porque la fragmentación es considerada como la principal fuente de producción de polvos en el proceso (Parra-Sánchez et al., 2014; Perez-Tello et al., 2008; Yli-Penttila, 1998), siendo el polvo un producto indeseable, como se explicará más adelante.

### **1.1 Justificación.**

Existe la necesidad de un modelo computacional que permita optimizar el PCI en términos de diversas funciones objetivo; entre ellas la producción y arrastre de polvo, mejorar el balance energético, predecir la posición de la llama de combustión, así como minimizar la pérdida de cobre en los gases y el escape de elementos menores como As y Bi. Hasta donde es del conocimiento del autor, una herramienta de tales características no ha sido reportada en la literatura. Se han logrado avances considerables en la descripción matemática de los fenómenos de turbulencia, tanto de la fase gaseosa como de la dispersión turbulenta de las partículas, el intercambio de momentum, calor y masa entre las partículas y el gas, y el intercambio de calor por radiación; sin embargo, en algunos aspectos como son el estudio de los fenómenos de expansión y fragmentación, y los posibles efectos de la dispersión de la radiación, el desarrollo es incipiente o escaso. Sobre esto último hay reportes contradictorios (Hahn and Sohn, 1990b; Varnas and Truelove, 1995).

### **1.2 Objetivo General.**

Desarrollar un modelo computacional que represente los fenómenos relevantes que ocurren en la cámara de reacción del PCI a escala industrial, que incluya la oxidación, expansión y fragmentación de las partículas.

### **1.3 Objetivos Específicos**

1. Incorporar un balance de energía al Modelo de Fragmentación Composicional (MFC) desarrollado por (Parra-Sánchez et al., 2014), para determinar las temperatura de las partículas.
2. Analizar mediante el MFC, la relación entre los fenómenos de expansión y fragmentación de partículas sulfurosas sobre la generación de polvos.
3. Acoplar el MFC al modelo tridimensional del reactor industrial reportado por (Perez-Tello et al., 2001a), para incorporar los efectos de la fragmentación.

4. Determinar el efecto de la dispersión de energía radiante sobre el calor intercambiado por radiación entre las partículas y las paredes de la cámara de reacción.
5. Simular el comportamiento del reactor industrial en condiciones típicas de operación.

## CAPÍTULO 2

### REVISIÓN BIBLIOGRÁFICA

A escala industrial, existen diversos tipos de reactores para la conversión de mata de cobre a cobre blíster: El reactor Noranda, el convertidor El Teniente, el convertidor Hoboken, y el mayormente usado convertidor Peirce-Smith. Éste último consiste en un cilindro horizontal, que opera por lotes, con una abertura que hace las veces de entrada y salida de material. El reactor Peirce-Smith ha sufrido pocos cambios en los últimos cien años; solo ha cambiado el diseño de los sistemas neumáticos de limpieza de las boquillas y el monitoreo de la temperatura (Pineda and Plascencia, 2016).

El advenimiento de mejoras tecnológicas, para el procesamiento pirometalúrgico del concentrado de cobre, llevó a la implementación del proceso instantáneo de conversión de la mata mostrado en la Figura (1-2). En contraste con la fusión instantánea del proceso Outokumpu-Flash-Smelting, desarrollado en 1945 (Vaarno et al., 2003), la conversión instantánea es una tecnología relativamente reciente. Desde que se reportó su disposición comercial en 1985, conocida entonces como Kennecott-Outokumpu-Flash-Converting, hasta el convertidor moderno de (Outotec, 2017), los cambios del proceso no han sido mayores (Kojo et al., 2000).

La oxidación de partículas sulfurosas a altas temperaturas en los hornos de fusión y conversión instantánea involucra cambios en la morfología, tamaño y composición química de las partículas. A lo largo de los años, diversos estudios se han realizado buscando describir y modelar estos fenómenos. Un resumen de los trabajos más relevantes al respecto se presenta a continuación.

## 2.1. Estudios Experimentales y Modelos Matemáticos de los Procesos de Oxidación Instantánea.

A continuación, se presenta un listado de las principales publicaciones sobre estudios experimentales de oxidación instantánea de mata sólida de cobre, en los últimos 30 años.

**Tabla 2-1.** Estudios experimentales en procesos de oxidación instantánea de partículas de mata de cobre (1985-2018).

Referencia	Contribución
(Jorgensen, 1983)	Midió la distribución de tamaños de partículas de concentrado de calcopirita, en un reactor a escala laboratorio, por medio de técnicas de análisis de imágenes.
(Asteljoki et al., 1985)	Reportaron la nueva tecnología de conversión instantánea y cómo ésta había sido puesta a prueba en una planta piloto.
(Kemori et al., 1988; Kimura et al., 1986)	Descubrieron que el tamaño promedio y la cantidad de azufre eliminado de una partícula sulfurosa se incrementan conforme esta cae por la cámara reacción de un horno.
(Hagni et al., 1988)	Estudiaron una serie de concentrados de diferentes especies mineralógicas sulfurosas en suspensión, bajo condiciones de fusión instantánea.
(Jokilaakso et al., 1991)	Experimentaron con cuatro fracciones de tamaño de concentrado de calcopirita. Sus resultados son acordes a los de (Jorgensen, 1983).

- (Shook, 1992) Presentaron un estudio sobre la llama en la fusión instantánea de concentrado de calcocita. Estudiaron los polvos asociados, e indicaron que la formación de los mismos obedece a la fragmentación y volatilización de las partículas. La fragmentación fue fuertemente afectada por la concentración del oxígeno, tamaño de la partícula y temperatura del horno. La oxidación no ocurrió en la flama sino después de esta.
- (Suominen, 1991; Suominen, 1994) Estudiaron experimentalmente a nivel laboratorio la oxidación de la mata de cobre. Indicaron que las matas con mayor contenido de cobre se fragmentan más en condiciones altamente oxidantes.
- (Riihilahti, 1997a; Riihilahti, 1998; Riihilahti, 1997b) Incluyó una extensa revisión de literatura sobre fragmentación de partículas a altas temperaturas. Analiza la oxidación de matas de cobre de 58 y 72% Cu.
- (Matousek, 1998) Estudió el mecanismo de oxidación en fusión y conversión instantánea. Mencionó que las reacciones obedecen a la relación de oxígeno empleada.
- (Perez-Tello et al., 1999) Se estudió la cinética de oxidación y se propuso un mecanismo para la reacción de partículas de mata de cobre mediante técnicas de análisis térmico.
- (Perez-Tello et al., 2001a) Se estudió la composición química, distribución de tamaño, morfología y mineralogía de partículas de mata de cobre oxidadas en un horno de conversión a nivel laboratorio.

- (Vaarno et al., 2003) Midieron experimentalmente la temperatura y el tamaño de partículas de concentrado de cobre usando un reactor de flujo laminar.
- (Stefanova and Trifonov, 2008) Estudiaron la distribución de tamaños de partículas calcopirita por medio de un analizador centrífugo.
- (Pérez-Tello et al., 2018) Realizaron un estudio para elucidar la evolución del tamaño y composición química de concentrado de cobre bajo condiciones simuladas de fusión instantánea.
- 

Entre los primeros reportes acerca de los procesos de conversión del cobre está el de (Asteljoki et al., 1985). Este autor explica el desarrollo de la tecnología de conversión instantánea de mata de cobre como un proceso continuo para obtener cobre blíster a partir de mata de cobre granulada. Enfatizó las virtudes de esta tecnología, como son la emisión de menores volúmenes de SO<sub>2</sub> y la separación de los procesos de fusión y conversión, lo que se tradujo en la simplificación de los procesos y menor inversión de capital.

A lo largo de las últimas décadas se han realizado extensos trabajos de experimentación sobre los procesos de fusión instantánea y en menor medida sobre conversión instantánea. El primer trabajo documentado al respecto fue el de (Jorgensen, 1983) quien midió la distribución de tamaños de partículas de concentrado de calcopirita en un reactor a escala laboratorio usando técnicas de análisis de imágenes. Sus resultados mostraron que, a temperaturas menores a 973 K y en presencia de aire atmosférico, el tamaño promedio de las partículas fue de 40 µm, independientemente del tamaño inicial de las mismas. En general, la fracción cribada de menor tamaño (<37 µm) mantuvo su tamaño promedio, mientras que las fracciones superiores tendieron a disminuir sus dimensiones promedio después de oxidarse.

Otros autores como (Hagni et al., 1988) reportaron estudios mineralógicos de concentrados de cobre donde las partículas fueron suspendidas y oxidadas en un reactor de escala laboratorio.

Los resultados indicaron que el tamaño de las partículas iniciales cambió en el rango de 20 a 50  $\mu\text{m}$ , mientras que las partículas reaccionantes estuvieron en el rango de 50 a 100  $\mu\text{m}$ , es decir, partículas significativamente mayores que las iniciales, lo que sugiere la expansión de éstas. La morfología de las partículas que reaccionaron fue mayoritariamente esférica.

Unos años más tarde, (Jokilaakso et al., 1991) experimentaron con cuatro fracciones de concentrado de calcopirita, con tamaños comprendidos entre 28 a 38  $\mu\text{m}$  y 62 a 74  $\mu\text{m}$ . Debido a que la cantidad de muestra recolectada durante las pruebas de oxidación no fue suficiente, no fue posible medir la distribución de tamaños de las partículas reaccionantes. Sin embargo, a través de microscopía electrónica de barrido (SEM) se obtuvieron imágenes de las muestras de las fracciones más finas las cuales claramente retuvieron su tamaño original. En contraste, las fracciones gruesas presentaron extensiva fragmentación. Para las partículas oxidadas a 973 K, el tamaño promedio estimado por los autores a través de las imágenes SEM estuvo en el rango de 30 a 60  $\mu\text{m}$ , lo que está de acuerdo a lo reportado anteriormente por (Jorgensen, 1983).

De acuerdo con (Shook, 1992; Shook et al., 1995), en un estudio sobre fusión instantánea, la formación de polvos asociada con la fusión instantánea de concentrados de cobre se debe a la ebullición y combustión de partículas de concentrado, siendo el primero el principal causante de la fragmentación de la partícula la cual podría posteriormente ocasionar la vaporización del cobre. Como resultado, el «polvo químico» recuperado de un reactor de fusión está compuesto de vapor condensado de cobre y fragmentos de partículas que explotaron. La tendencia de las partículas que sufrieron combustión para fragmentarse por este mecanismo es fuertemente afectada por la concentración del oxígeno, tamaño de la partícula y temperatura del horno.

A nivel experimental, (Riihilahti, 1997b; Suominen, 1991; Suominen, 1994) reportaron estudios de laboratorio para la oxidación de matas de cobre, estudiando sus mecanismos de reacción y un análisis riguroso sobre la literatura de la fragmentación de partículas sulfurosas a altas temperaturas.

(Pérez-Tello et al., 2001a) reportaron datos experimentales sobre la oxidación de partículas de mata de cobre de alto grado (72 % Cu), en un reactor a escala laboratorio. Los autores encontraron que las partículas más finas en la alimentación (<37  $\mu\text{m}$ ) tendieron a incrementar su tamaño promedio durante la oxidación y a reducir el número de partículas menores a 20  $\mu\text{m}$ .

Tales resultados difirieron notablemente respecto a otras fracciones de tamaño, las cuales incrementaron sus tamaños promedio al oxidarse, con una sustancial generación de polvos.

(Vaarno et al., 2003) usaron técnicas pirométricas con dos longitudes de onda para medir simultáneamente el tamaño y temperatura de partículas de concentrado de cobre durante su oxidación en un reactor de flujo laminar. Sus resultados mostraron que tanto las partículas finas como las más gruesas respecto a los tamaños de alimentación, eran producidas en el reactor si la concentración de oxígeno se elevaba.

(Stefanova and Trifonov, 2008) midieron las distribuciones de tamaño de partículas de calcopirita antes y después de ser oxidadas por medio de un analizador centrifugo. Los autores reportaron que los tamaños iniciales de partículas, de 5  $\mu\text{m}$  a 80  $\mu\text{m}$ , crecieron hasta el rango de 5  $\mu\text{m}$  a 95  $\mu\text{m}$ . Otras partículas dentro del rango de 35  $\mu\text{m}$  a 65  $\mu\text{m}$ , que fueron dominantes en la población inicial, redujeron su número sustancialmente después de oxidarse, mientras que las de 5  $\mu\text{m}$  se incrementaron en los productos de reacción. Los autores atribuyeron tales observaciones a la fragmentación de las partículas iniciales por el choque térmico y disociación. Por otra parte, nuevas partículas de 80  $\mu\text{m}$  aparecieron en los productos de reacción, lo que puede deberse –sugirieron– a las colisiones y fusión de gotas calientes.

Por último, (Pérez-Tello et al., 2018) reportaron la evolución del tamaño y la composición química de partículas de concentrado de cobre oxidadas en condiciones de fusión instantánea. El estudio incluyó a las distribuciones de tamaños, composición química y morfología en un reactor de escala laboratorio. Los resultados mostraron que la historia de la partícula a través de la cámara de reacción tiene una fuerte dependencia a su tamaño inicial; como es caso de las partículas menores a 45  $\mu\text{m}$  que se fundían rápido, formando gotas que después presentaban coalescencia con otras gotas; mientras que partículas mayores a 45  $\mu\text{m}$  no evidenciaron interacción partícula-partícula, manteniendo o decreciendo su tamaño una vez reaccionadas. Sus resultados ayudaron a discernir la ruta de reacción de las partículas y reconocer los fenómenos de fragmentación y coalescencia en el proceso.

## **2.2 Estudios de Modelación Matemática de los Procesos de Oxidación Instantánea.**

**Tabla 2-2.** Modelos matemáticos en procesos de oxidación instantánea de partículas de mata de cobre (1985-2018).

Referencia	Contribución
(Kim, 1986)	Primer modelo cualitativo de fragmentación. Sugirió la existencia de dos mecanismos de fragmentación.
(Peterson, 1986)	Reportó un modelo de soluciones de semejanza para la fragmentación de partículas en diferentes tasas de esquemas de fragmentación.
(Jiao, 1987)	Desarrolló del primer modelo cinético de oxidación. No presentó verificación con datos experimentales.
(Hahn and Sohn, 1990a; Hahn and Sohn, 1990b)	Modelaron matemáticamente el proceso de fusión instantánea para concentrados de cobre. El modelo se verificó con datos experimentales. También hicieron un estudio cualitativo de la transferencia de calor en la cámara de reacción.
(Varnas and Truelove, 1995)	Modelaron matemáticamente la fusión instantánea para determinar la exactitud de soluciones propuestas para la función de fase en dispersión de radiación.
(Yli-Penttila, 1998)	Estudió los mecanismos de reacción de partículas de mata de cobre simulando condiciones de oxidación instantánea.
(Ahokainen and Jokilaakso, 1998)	Publicaron un modelo matemático para simular las reacciones de oxidación de partículas de calcopirita considerando las relaciones de transporte de momentum, calor y masa en un horno de fusión instantánea.

- 
- (Degterov and Pelton, 1999) Reportaron una base de datos termodinámicos que puede emplearse en la predicción del equilibrio mata-escoria-cobre-gas. Realizaron una validación del modelo.
- (Perez-Tello et al., 2001b) Propusieron un modelo matemático tridimensional para representar el proceso de conversión instantánea. El modelo fue validado con datos experimentales.
- (Pérez-Tello et al., 2002a) Desarrollaron correlaciones matemáticas para representar las distribuciones de tamaños de las partículas antes y después de la oxidación en un horno de conversión a nivel laboratorio.
- (Vaarno et al., 2003) Presentaron un modelo matemático y computacional basado en el trabajo de (Ahokainen and Jokilaakso, 1998) para fusión y conversión instantánea, usando software comercial. Considera flujo laminar, resuelve los campos de flujo, transporte de calor y combustión de las partículas.
- (Perez-Tello et al., 2008) Presentaron el primer modelo matemático predictivo de la expansión y fragmentación de partículas sulfurosas en condiciones de conversión instantánea.
- (George-Kennedy D., 2005; Kojo et al., 2000; Kojo et al., 2009; Moskalyk and Alfantazi, 2003) Realizaron una investigación histórica de la evolución de los procesos pirometalúrgicos y las tecnologías de fusión y conversión instantáneas.
- (Swinbourne and Kho, 2012) Presentaron un modelo termodinámico computacional para los elementos menores (Pb, As, Bi y Cd) para conversión instantánea. El modelo fue validado con datos experimentales.

---

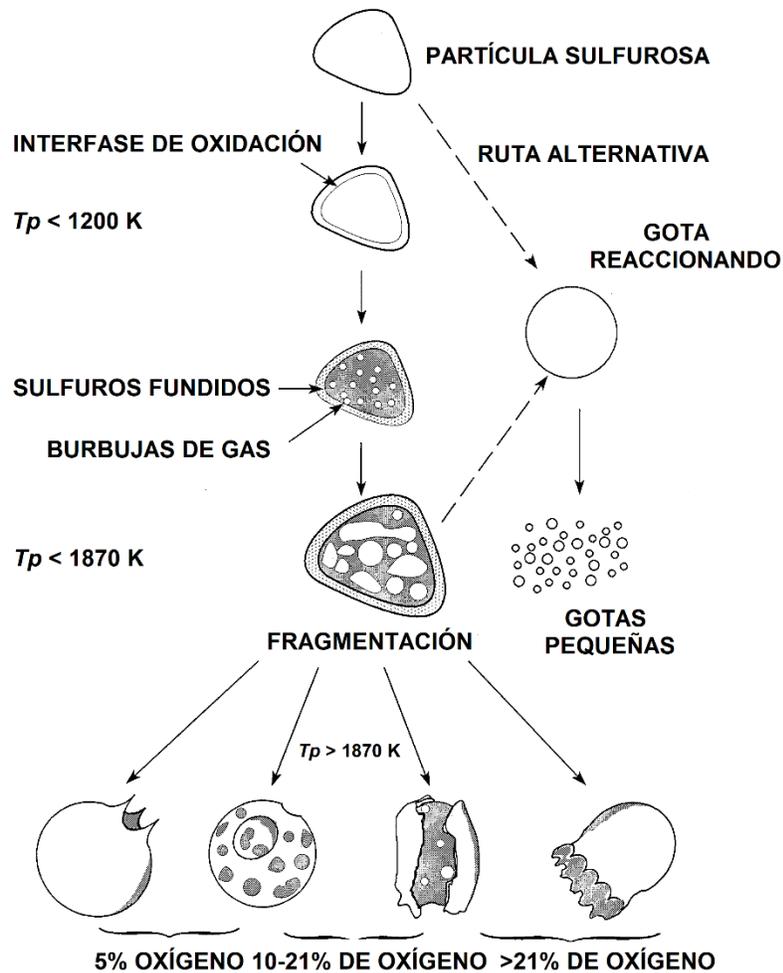
(Parra-Sánchez et al., 2014)	Crearon el primer modelo de fragmentación composicional para la oxidación de partículas de mata de cobre en condiciones de conversión instantánea.
(Jarosz et al., 2016)	Modelaron teóricamente y de tres formas distintas las etapas de fusión y conversión instantánea. No reportaron validación del modelo.
(Taskinen, 2017)	Denotaron la importancia de las herramientas de simulación computacional en el entendimiento y mejora de las operaciones pirometalúrgicas.

---

La primera representación de la trayectoria de reacción de partículas sulfurosas en condiciones de fusión instantánea fue propuesto por Kim y Themelis (Kim, 1986) y posteriormente modificado por (Jokilaakso et al., 1991; Suominen, 1994) y se muestra en la Figura 2-1. En dicha figura se observan: (1) Partículas sólidas con capas de óxidos de hierro y cobre rodeando un núcleo de sulfuros, lo que sugiere un esquema de reacción de acuerdo al modelo de núcleo decreciente; (2) partículas parcialmente fundidas junto a gotas de cobre elemental en su núcleo y capas de óxidos de hierro y cobre alrededor de este; (3) partículas esféricas totalmente fundidas con diferentes fases de óxidos, un núcleo sulfuroso e impurezas; (4) partículas fragmentadas con los óxidos de hierro y cobre como componentes mayores. (Suominen, 1994) Trabajaron con partículas de mata de cobre y sugirieron que estas partículas reaccionan a una temperatura mayor de las partículas de concentrado. Las partículas inicialmente no porosas entran a la cámara de reacción y son rápidamente dispersadas y calentadas por el gas de proceso y la radiación de las paredes. Después de la ignición las partículas comienzan a oxidarse y formar una capa porosa de óxidos que rodea al núcleo sin reaccionar, mientras que el dióxido de azufre que abandona a la partícula se integra a la corriente gaseosa. Debido a que se trata de reacciones exotérmicas, una gran cantidad de calor es liberado incrementando la temperatura de la partícula hasta que el núcleo se funde. Pequeñas burbujas de  $SO_2$  gaseoso son producidas en el núcleo fundido a medida que continúa reaccionando con el oxígeno que atraviesa la costra

porosa. Las burbujas se acumulan haciendo presión, lo que hace que la partícula se expanda e incremente su tamaño. Si la presión interna del gas supera la tensión superficial de la partícula ésta se rompe, lo que origina la fragmentación y liberación de numerosas partículas sólidas y gotas de material fundido que son arrastradas por la corriente gaseosa. El modelo fue desarrollado con base en las reacciones cinéticas y las ecuaciones de conservación de masa, momento y energía térmica.

Un poco después (Peterson, 1986) reportó un modelo de soluciones de semejanza para partículas de carbón en diferentes tasas de fragmentación, donde se analizaron los mecanismos que, a juicio de los autores, pueden influir en las distribuciones de tamaños de las partículas además de la fragmentación, como pueden ser los procesos de coagulación de las partículas (agregación/aglomeración), condensación/evaporación, nucleación, fuentes y sumideros. Consideró además a la fragmentación como el fenómeno dominante, como una forma de simplificar el balance de poblaciones de partículas en la solución numérica de las ecuaciones involucradas. También (Jiao, 1987) trabajó con modelos cinéticos y de fragmentación pero sin datos experimentales que los verificasen.



**Figura 2-1.** Modelo de reacción de partículas sulfurosas (Perez-Tello et al., 2001a).

(Degterov and Pelton, 1999) Calcularon y tabularon a través de un modelo matemático, las propiedades en equilibrio para las fases de mata, escoria y cobre fundido. El modelo reprodujo, dentro del error experimental, las entalpías y actividades del cobre y azufre en la mata sólida y fundida.

Un modelo predictivo para la expansión y fragmentación de las partículas de mata de cobre, oxidadas en condiciones de conversión instantánea, fue reportado por (Perez-Tello et al., 2008). Con él, se encontró que la formación de partículas de polvo era dependiente del tiempo de residencia de la población de partículas. Hasta donde es del conocimiento del autor, este fue el

primer modelo matemático para representar la expansión y fragmentación de partículas sulfurosas en condiciones de conversión instantánea y fue desarrollado usando un enfoque del tipo Lagrangiano. El modelo mostró concordancia razonable con los datos experimentales obtenidos en un reactor a escala laboratorio bajo un amplio rango de condiciones experimentales. La excepción fue la fracción de tamaños finos, menores a 20  $\mu\text{m}$ , donde se obtuvo la mayor discrepancia. El modelo fue posteriormente revisado por (Parra-Sánchez et al., 2014), quienes incorporaron un modelo cinético de las reacciones de oxidación en condiciones no isotérmicas. El modelo fue capaz de calcular la cantidad de polvo en la población de partículas además de su composición química y distribución de tamaños en la cámara de reacción. Las predicciones del segundo modelo mostraron buena concordancia con los datos experimentales, en particular en la región de tamaños correspondiente al polvo. Los resultados indicaron que el tiempo de residencia de las partículas es un factor importante en la generación de polvos y que el tamaño de las partículas en la alimentación tiene un efecto significativo sobre su composición química y rapidez de reacción. Dependiendo de las condiciones de operación, se encontró que las partículas de polvo se consumen o se generan en el horno. Se definieron los coeficientes de distribución y contribución acumulativos los cuales sirven para analizar los fenómenos de fragmentación y su relación con la generación de partículas finas en el horno.

Aunque éstos dos últimos estudios han permitido avanzar en el conocimiento del proceso, no consideraron condiciones de turbulencia al ser desarrollados para condiciones de flujo laminar en un horno a nivel laboratorio.

A lo largo de los años también hubo quienes se dedicaron a hacer estudios sobre el desarrollo y evolución en los procesos de oxidación de minerales sulfurosos (George-Kennedy D., 2005; Kojo et al., 2000; Kojo et al., 2009; Matousek, 1998; Moskalyk and Alfantazi, 2003); mientras que otros crearon modelos matemáticos del PCI, para explicar la distribución de elementos, como es el caso de (Swinbourne and Kho, 2012); o más recientemente (Jarosz et al., 2016) quienes emplearon técnicas de meta-modelado para la optimización teórica de los procesos de fusión y conversión instantánea, pero sin reportar validación de sus resultados. También está el caso de (Taskinen, 2017) quien de forma general, explica la importancia de los modelos y simulaciones computacionales usadas en procesos pirometalúrgicos, y que forman valiosas herramientas para hacer frente a los problemas operacionales y ambientales, y a los retos futuros, como serían la escasez de combustibles fósiles y en general la optimización del proceso.

La fragmentación de las partículas sulfurosas es generalmente aceptada como la mayor fuente de polvos en los procesos de fusión y conversión instantánea (Yli-Penttila, 1998). En el presente trabajo, se considera como polvo a todas las partículas con tamaños menores a 20  $\mu\text{m}$ , independientemente de su composición química. En un horno de conversión instantánea los polvos son indeseables porque ocasionan problemas operacionales en la salida del proceso obstruyendo las tuberías y equipos posteriores, además de representar un peligro ambiental potencial ya que pueden fácilmente escapar a la atmósfera representando un foco de contaminación por partículas que afecta a la salud de los trabajadores y poblaciones cercanas. El origen de estos polvos es la fragmentación de las partículas de mata durante su oxidación, y su posterior arrastre por los gases de combustión (Parra-Sánchez et al., 2014; Perez-Tello et al., 2008; Yli-Penttila, 1998).

Los perfiles de temperatura de partículas individuales presentados por (Ahokainen and Jokilaakso, 1998) están en concordancia con los resultados de (Kim, 1986), de acuerdo a un modelo desarrollado en base a su trabajo. En este caso se tuvieron las dificultades por las enormes cantidades de calor liberado por unas reacciones heterogéneas extremadamente rápidas; así como la alta temperatura del gas. Lo anterior dificultó el acoplamiento entre las fases gaseosa y de partículas. El modelo presentado incluyó el cálculo de las concentraciones de oxígeno y azufre en la cámara de reacción, las distribuciones de temperaturas y trayectorias de las partículas.

Fueron los trabajos de (Perez-Tello et al., 2001a; Perez-Tello et al., 2001b) los que elucidaron de mejor forma al PCI. En el primer trabajo se estudió la composición química, distribución de tamaños, morfología y mineralogía de la mata de cobre en un horno de conversión instantánea a escala laboratorio. Sus resultados permitieron validar con concordancia razonable, al segundo estudio, donde se presentó el primer modelo matemático y computacional, en tres dimensiones, para el PCI. Sus resultados computacionales mostraron que la mayoría de las reacciones ocurrieron entre los 40 cm y 60 cm debajo del quemador.

Un poco después, (Pérez-Tello et al., 2002) estudiaron las correlaciones de tamaños de las partículas respecto a las entradas y salidas al PCI; los resultados sugirieron un potencial uso de los mismos para la modelación de la generación de polvos dentro del proceso de un reactor a escala industrial.

Un nuevo modelo computacional, usando software comercial, trajeron (Vaarno et al., 2003) quienes estudiaron la cámara de reacción y el quemador, en hornos de escala comercial, validando su modelo con datos experimentales. Usaron la temperatura y el tamaño de las partículas como variables de respuesta, y a la concentración de oxígeno como variable de operación. Los autores señalaron la importancia del desarrollo de modelos posteriores que permitieran conocer la trayectoria de las partículas, interrelaciones partícula-partícula y partícula-paredes. También denotaron la importancia del estudio del comportamiento radiativo en la cámara, aprovechando el desarrollo creciente de la capacidad de cómputo. Este último punto se discute a continuación.

## 2.2 Estudios sobre dispersión de energía radiante por partículas suspendidas en un gas.

La ecuación de transferencia de energía radiante (RTE, por sus siglas en inglés), es un balance de energía radiativa que describe la intensidad de un campo de energía que pasa a través de un recinto volumétrico. Dicha ecuación es función de la localización, dirección y variables espectrales, como pueden ser el número de onda (el recíproco de la longitud de onda). La RTE es una función compleja, puesto que es una ecuación integro-diferencial para cada dirección y debe resolverse en cada ángulo sólido definido alrededor del volumen de estudio.

Para obtener el flux neto radiativo que incide en la superficie de un objeto, se deben sumar las contribuciones de todas las posibles direcciones y números de onda presentes; por lo tanto, integrando la RTE considerando todas las contribuciones (conducción, convección, dispersión), se llega a la totalidad de conservación de energía radiativa que, posteriormente, al combinarla con un balance para todos los tipos de energías presentes conduce a una expresión para la conservación total de energía.

$$\frac{1}{c} \frac{\partial I_\eta}{\partial t} + \frac{\partial I_\eta}{\partial s} = k_\eta I_{b\eta} - k_\eta I_\eta - \sigma_{s\eta} I_\eta + \frac{\sigma_{s\eta}}{4\pi} \int (I_\eta(\hat{s}_i) \Phi_\eta(\hat{s}_i, \hat{s}) d\Omega_i)_{4\pi} \quad (2-1)$$

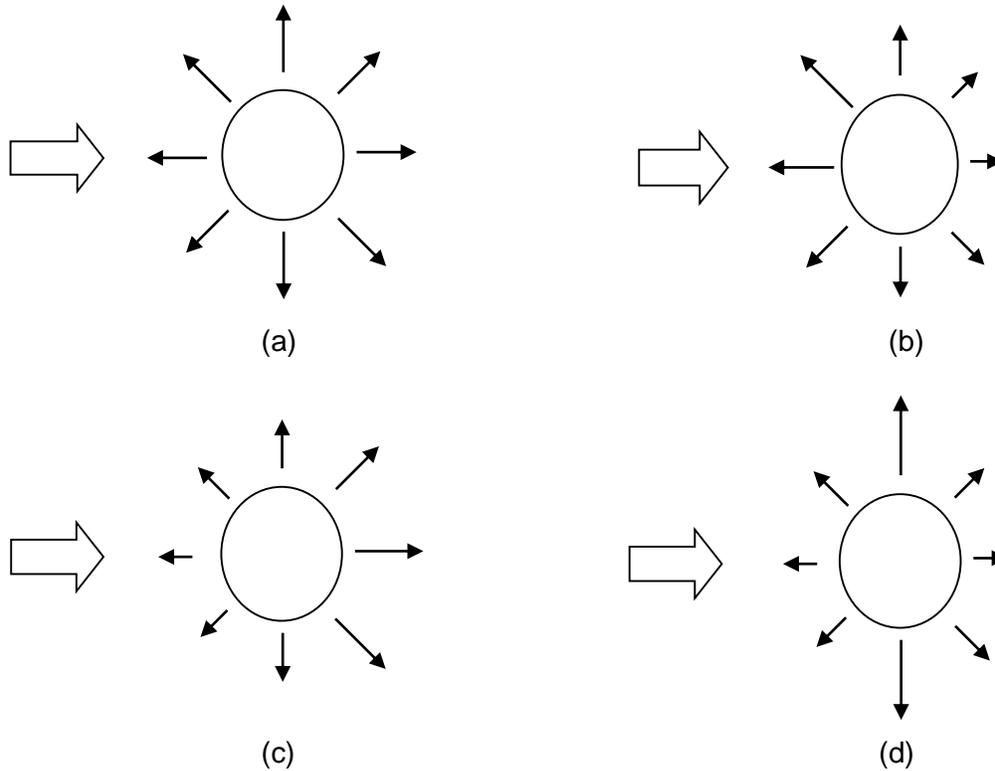
Una forma típica de la RTE se muestra en la Ecuación (2-1) donde el lado izquierdo muestra los cambios en la intensidad de radiación a una determinada longitud de onda ( $\eta$ ), viajando a la velocidad de la luz ( $c$ ) y considerando su aportación en el tiempo ( $t$ ) y espacio ( $s$ ). Al último término de la derecha se le conoce como función de fase y calcula la cantidad de energía radiante

dispersada, de acuerdo al modelo considerado. Dicho término puede ser reescrito de la forma  $p(\theta)$ . En la ecuación de transferencia (2-1), todas las cantidades pueden variar con la ubicación espacial ( $s$ ), tiempo ( $t$ ) y longitud de onda ( $\eta$ ), mientras que la función de fase  $p(\theta)$ , también depende de la dirección ( $\hat{s}, \hat{s}_i$ ).

La función de fase está compuesta por la función de dispersión  $\Phi_\eta(\hat{s}_i, \hat{s})$ , que permite calcular la probabilidad de que un rayo proveniente de una dirección  $\hat{s}_i$  sea dispersado a otra dirección  $\hat{s}$ . Luego, se calcula el producto de dicha probabilidad por la intensidad de radiación en la región de penetración  $I_\eta(\hat{s}_i)$ ; y posteriormente es evaluada a través del ángulo sólido ( $d\Omega_i$ ).

La dispersión de la radiación es un aspecto importante en muchos procesos de combustión del carbón, la fusión y conversión instantánea. La dispersión actúa como un distribuidor de energía radiante en el horno y por lo tanto puede afectar el comportamiento de las reacciones químicas, esto es porque las partículas necesitan el campo de radiación para iniciar su ignición, hacer fusión o combustión y con ello emitir a su vez energía radiante en otras direcciones.

La dispersión de energía radiante por partículas suspendidas en un gas se calcula a partir de la denominada función de fase, que es una expresión que indica la probabilidad de que un rayo proveniente de una dirección sea dispersado en otra; por lo tanto muestra una distribución angular de la intensidad de radiación dispersada por una partícula bajo una longitud de onda dada (Modest, 2013). Como se observa en la Figura (2-2), la forma de dicha función establece si la radiación se dispersa uniformemente en todas direcciones (dispersión isotrópica,  $p(\theta) = 1$ ) o de manera preferente en alguna dirección: Hacia adelante, hacia atrás o lateralmente en relación al haz de radiación incidente a la partícula.



**Figura 2-2.** Modelos simplificados de dispersión de radiación, (a) dispersión isotrópica, (b) dispersión hacia adelante, (c) dispersión hacia atrás, y (d) dispersión lateral. La flecha indica la entrada de radiación incidente.

Un modelo de función de fase es el llamado de grandes esferas difusas (2-2), cuya solución es predominante para valores pronunciados hacia atrás de la partícula.

$$p(\theta) = \frac{8}{3\pi} * (\sin\theta - \theta * \cos\theta) \quad (2-2)$$

Un modelo alternativo es el de Henyey-Greenstein (2-3), que considera a un factor asimétrico  $g$ , el cual es el coseno promediado del ángulo de dispersión  $\Theta$  para una superficie esférica; además del ángulo polar  $\beta$  de dispersión al punto de incidencia de la energía radiante. La diferencia entre  $\Theta$  y  $\beta$  radica en su dirección, mientras que  $\Theta$  es un ángulo con el que se transmite la energía por la parte posterior de la partícula,  $\beta$  es el ángulo de reflectancia hacia el frente de la misma.

El modelo de Henyey-Greenstein puede ajustarse para darle mayor predominancia a la dispersión no isotrópica hacia adelante o hacia atrás, pero es mayormente usado en el primer caso puesto que arroja valores pronunciados en esa dirección (Roos et al., 2016).

$$p(\beta) = \frac{1}{4\pi} * \frac{1-g^2}{[1+g^2-2g*\cos(\beta)]^{3/2}} \quad (2-3)$$

La dispersión de la radiación es un fenómeno que ha recibido poca atención en la literatura. Los trabajos de (Hahn and Sohn, 1990b) son un antecedente directo a esta investigación. La dispersión de radiación en un reactor de fusión instantánea fue modelada utilizando la función de fase de grandes esferas difusas, ecuación (2-1). Además, revisaron los efectos de la dispersión de la radiación considerando dispersión isotrópica, dispersión no isotrópica y ausencia de dispersión. Sus resultados mostraron que el mecanismo predominante de transferencia de calor en la cámara de reacción fue la radiación entre las paredes del horno y entre las partículas; por lo tanto, considerar a la dispersión de radiación en los cálculos de futuros modelos, para esta clase de procesos, debe ser una prioridad.

Otra investigación relevante fue la de (Varnas and Truelove, 1995), quienes estudiaron la exactitud de tres soluciones aproximadas de la función de fase al modelar matemáticamente la fusión instantánea de concentrados de cobre en hornos cilíndricos verticales. Las soluciones investigadas fueron (1) El método 4-flux de Spalding, (2) la aproximación  $P_1$  con armónicos esféricos, y (3) el Modelo de Ordenadas Discretas  $S_4$ . Sus resultados mostraron que el Modelo de Ordenadas Discretas es el que mejores resultados arrojó para la transferencia de calor por energía radiante, y que existe una elevada dependencia en la elección del modelo de radiación y la predicción de la temperatura en el horno. Sin embargo, los autores encontraron que la inclusión del efecto de dispersión no tuvo un efecto significativo en sus resultados, lo que contrasta con lo reportado por (Hahn and Sohn, 1990b).

(Wu et al., 2017) presentaron un modelo para la combustión de partículas pulverizadas de carbón, en donde se consideraron las interacciones radiativas entre los sólidos y los productos de la reacción:  $CO_2$ ,  $H_2O$  y  $CO$ . Experimentaron con tres tamaños de partículas en un horno de laboratorio:  $0.3 \mu m$ ,  $30.7 \mu m$  y  $>70 \mu m$ , entrando a  $1510 K$  a la cámara de reacción; siendo

condiciones muy similares a las de conversión instantánea. A través de un modelo de dispersión isotrópica, descubrieron que la radiación afectó considerablemente a la evolución de las partículas de carbón conforme estas reaccionaron, siendo este el mecanismo dominante de transferencia de calor para partículas de tamaños medios a mayores una vez salieron del quemador. Los autores recalcaron la importancia de llevar a cabo más estudios donde se consideren condiciones no isotrópicas de dispersión de radiación.

La función de fase de Largas Esferas Difusas se usa como modelo no isotrópico y se usa para representar un comportamiento “hacia atrás” en la dispersión de la radiación incipiente; además de ser independiente de la reflectancia de los materiales. Como ejemplo de estudios donde esta función esté presente, son los trabajos de (Roos et al., 2016), quienes desarrollaron una técnica numérica de discretización para resolver el modelo matemático de las funciones de fase, presentando sus resultados sobre el modelo de una gran esfera difusa reflectante.

En resumen, la revisión de literatura muestra los avances y resultados en los trabajos experimentales y de modelación matemática y computacional de los procesos de fusión y conversión instantánea en las últimas décadas. La comprensión de los procesos gobernantes del comportamiento de estos sistemas aún no es completa. Por medio del acoplamiento del Modelo de Fragmentación Composicional con un modelo en tres dimensiones de un reactor industrial, este trabajo busca demostrar el efecto y relación entre los fenómenos de dispersión de energía radiante, fragmentación y expansión de las partículas para el PCI, y así contribuir con ello a la optimización del proceso.

## CAPÍTULO 3

### METODOLOGÍA

Para alcanzar el objetivo general de este trabajo, se llevó a cabo la metodología mostrada esquemáticamente en la Figura (3-1).

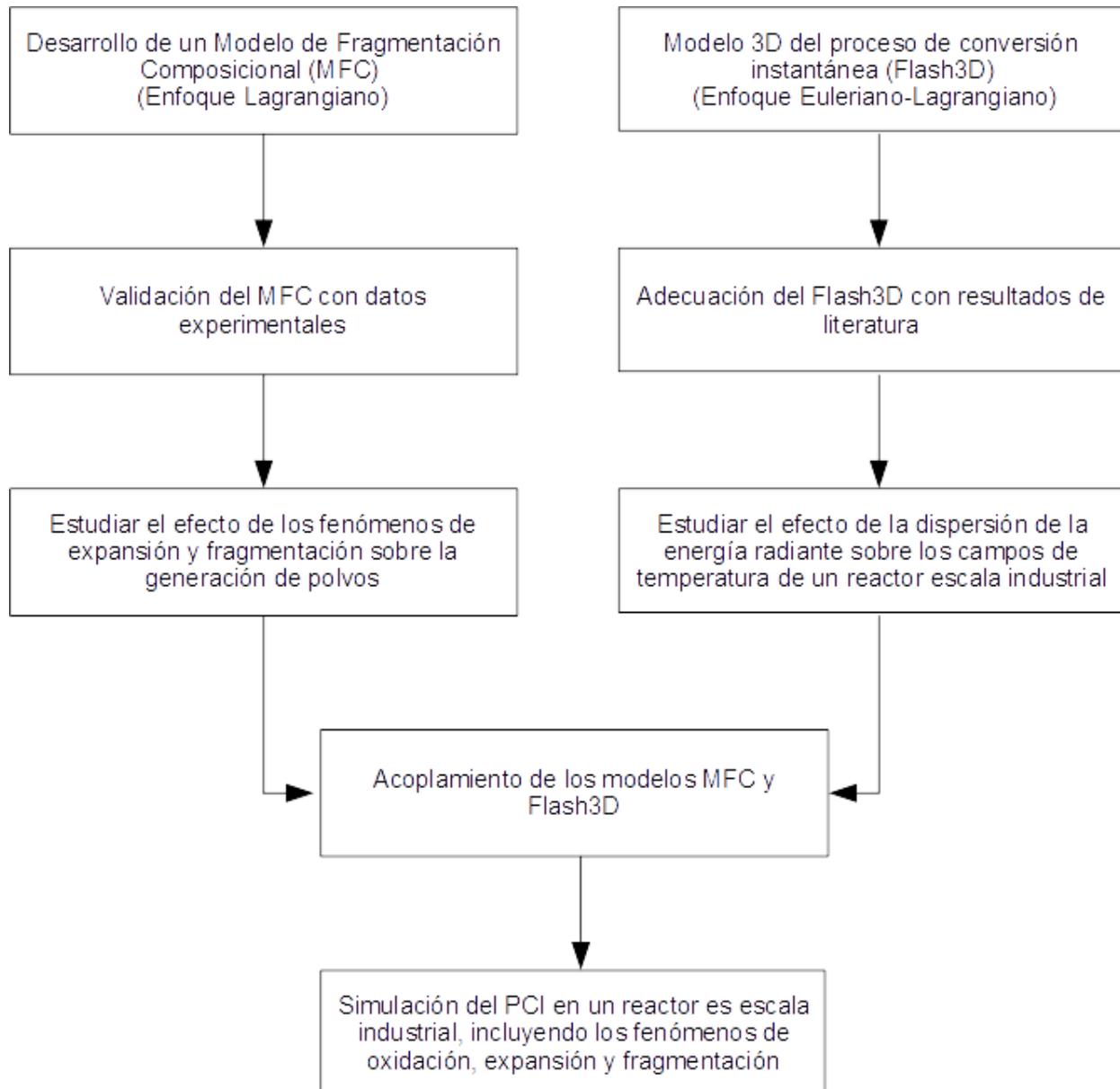
Debido a la complejidad del problema a resolver, se plantearon una serie de etapas sucesivas con el fin de familiarizarse con los diversos fenómenos que ocurren en la cámara de reacción del proceso de conversión instantánea de manera individual. Con este propósito, se desarrollaron y/o adaptaron los módulos computacionales correspondientes, y para garantizar su correcto funcionamiento, y evaluar su capacidad como herramienta predictiva, dichos módulos se utilizaron de manera independiente para analizar aspectos específicos del proceso, previamente a su etapa de acoplamiento en el modelo computacional tridimensional. Consecuentemente, la metodología involucró las siguientes etapas:

1. Desarrollo de un Modelo de Fragmentación Composicional (MFC) en base al modelo isotérmico desarrollado por (Parra-Sánchez, 2009) para determinar las distribuciones de tamaños, composición química y temperaturas de las partículas individuales a lo largo de su trayectoria de reacción (modelo Lagrangiano).
2. Validación del MFC con los datos experimentales reportados por Pérez-Tello et al. (2001) en términos de la distribución de tamaño y fracción de azufre eliminado de las partículas en un reactor de conversión instantánea a nivel laboratorio.
3. Una vez validado, utilización del MFC para analizar cuantitativamente los fenómenos de expansión y fragmentación sobre la composición y cantidad de polvo generado durante el

proceso de conversión instantánea considerando condiciones simplificadas de flujo laminar. Esta etapa concluye el desarrollo y prueba del MFC previo a su etapa de acoplamiento con el modelo tridimensional desarrollado por Pérez-Tello et al. (2001).

4. Calibración del modelo matemático desarrollado por Pérez-Tello et al. (2001) para el proceso de conversión instantánea. Dicho modelo es de carácter tridimensional, en régimen estacionario y toma en cuenta un régimen turbulento y la cinética de las reacciones heterogéneas de las partículas; así como el transporte de momentum, calor y masa entre las fases sólida y gaseosa. Para la fase sólida, el modelo supone que las partículas mantienen su tamaño original a lo largo de su trayectoria de reacción. El objetivo de esta etapa es conocer la estructura y funcionamiento del código fuente. Con este propósito, se reproducirán los resultados reportados por los autores (Parra-Sánchez, 2009; Perez-Tello et al., 2008; Perez-Tello et al., 2001a).
5. Estudio de la dispersión de radiación sobre los campos de temperatura del gas y las partículas utilizando el modelo matemático de la etapa cuatro. Puesto que el cálculo de la dispersión de energía radiante podría contribuir significativamente al tiempo de cómputo en una simulación típica, esta etapa tiene por objetivo determinar si dicho fenómeno afectaría los resultados de temperaturas y composiciones químicas de las fases sólida y gaseosa en un reactor industrial.
6. Acoplamiento del MFC al modelo tridimensional de Pérez-Tello et al. (2001a).
7. Simulación análisis de resultados de un horno de conversión instantánea a nivel industrial considerando los efectos de oxidación, expansión y fragmentación de las partículas.

Descripciones detalladas de las etapas 1 y 2 fueron publicados en la literatura (Parra-Sánchez, 2009), así como los de la etapa 3 (Duarte-Ruiz et al., 2016). Por tal motivo, dichas fases son cubiertas en este documento de manera resumida. Así mismo, los detalles de la etapa 4 se omiten en vista de constituir un paso preliminar en el desarrollo del presente trabajo.

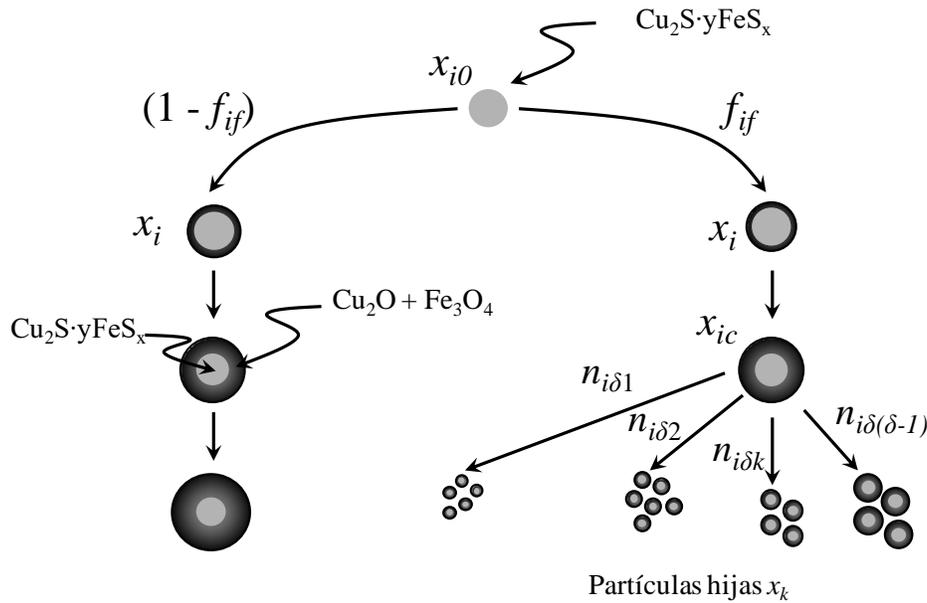


**Figura 3-1.** Diagrama de bloques de la metodología seguida en este trabajo.

### 3.1 Modelo de Fragmentación Composicional (MFC).

Para el desarrollo del MFC se tuvo como punto de partida el modelo cinético y de fragmentación propuesto por (Parra-Sánchez, 2009) para partículas de temperatura constante. En el presente trabajo, se incorporó el cálculo de la temperatura de las partículas y se recalcularon los

parámetros del modelo para lograr una representación realista de la trayectoria de las partículas en la cámara de reacción, en términos de las distribuciones de tamaños y composición química, de acuerdo a los datos experimentales de (Perez-Tello, 1999; Perez-Tello et al., 2001b; Riihilahti, 1998).



**Figura 3-2.** Representación esquemática del modelo de fragmentación composicional para la conversión instantánea de partículas sólidas sulfurosas (Parra-Sánchez et al., 2014)

La Figura (3-2) muestra un diagrama esquemático del modelo de fragmentación composicional. En éste se considera a una partícula de tamaño inicial  $x_{i0}$  que, debido a las reacciones de oxidación, aumenta su tamaño a una rapidez de crecimiento constante  $g$ , de acuerdo a la relación:

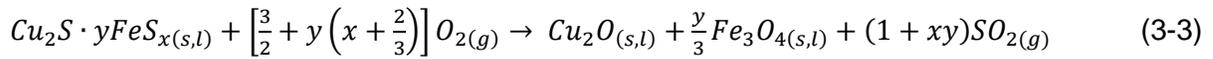
$$x_i = x_{i0} + gt \quad i = 1, n \quad (3-1)$$

Donde  $i$  representa el  $i$ -ésimo tamaño en la alimentación compuesta por  $n$  tamaños. Al alcanzar el tamaño crítico  $x_{ic}$  se inicia la fragmentación de la partícula. Debido a condiciones de turbulencia, las partículas idénticas podrían llevar trayectorias distintas, por lo que algunas presentarían fragmentación y otras no. Se define  $f_{if}$  como la fracción masa del  $i$ -ésimo tamaño

en la alimentación que logra fragmentarse al tiempo  $t$ . Por lo tanto  $(1 - f_{if})$  representa la fracción masa de dicho tamaño inicial que solo exhibe expansión y continúa su vuelo en la cámara de reacción. Al fragmentarse, cada partícula produce partículas “hijas” de tamaños  $x_k$  y masa  $m_k$ . El modelo supone que la composición química y densidad de las partículas hijas son iguales a las de la partícula madre que las originó. La distribución de tamaños al tiempo  $t$  se define como:

$$f_3(x_k) = \frac{m_k}{(\sum_{k=1}^n m_k) \Delta x_k} \quad (3-2)$$

Donde los símbolos se encuentran definidos en la nomenclatura. A lo largo de la trayectoria de las partículas se supone que la siguiente reacción se lleva a cabo:



Cuando la partícula se encuentra sólida, la reacción (3-5) se supone controlada por la transferencia de masa del oxígeno gaseoso hacia la superficie de la partícula y la difusión a través de los poros de la capa de óxidos. Luego, cuando la partícula se funde, se supone control por transferencia de masa del oxígeno hacia la superficie de la gota fundida. En base a las anteriores suposiciones se calcula la composición de partículas individuales de cada  $i$ -ésimo tamaño en la alimentación de acuerdo a:

$$\rho_{i\delta} C_3 x_\delta^3 \omega_{i\delta}^s = \sum_{k=1}^{\delta-1} n_{i\delta k}^0 \rho_{i\delta k} C_3 x_k^3 \omega_{i\delta k}^s \quad (3-4)$$

A lo largo de su trayectoria, las propiedades de la partícula individual se almacenan en una base de datos como función del tiempo. A partir de dichos balances, es posible calcular la composición de la población completa  $\Omega^S$  de acuerdo a la siguiente expresión:

$$\Omega^S = \frac{\sum_{k=1}^n m_k^s}{\sum_n m_k} \quad (3-5)$$

Donde  $\Omega^S$  es la composición promedio de la especie  $S$  en la población de partículas, en fracción masa. Tras la fragmentación de una partícula madre, se supone que las partículas hijas continúan su vuelo por la cámara de reacción sin reaccionar subsecuentemente.

La contribución del presente trabajo al MFC, es la inclusión del balance de energía en las partículas, cuyo propósito es calcular su temperatura local, y con ello establecer el paso

controlante en las reacciones de oxidación. Asimismo, el valor de la temperatura  $T_p$  determina el estado físico de una parte o toda la partícula de acuerdo a la Figura (3-2). Debido a que el punto de fusión de la mata de cobre  $T_s$  es inferior al de los óxidos producidos  $T_o$  a lo largo de la trayectoria de las partículas, es posible identificar los siguientes casos:

- (a) La partícula se encuentra totalmente sólida ( $T_p < T_s$ ).
- (b) El núcleo de sulfuros está parcial o totalmente fundido y es rodeado por una capa sólida de óxidos ( $T_p = T_s$ ).
- (c) El núcleo de sulfuros se encuentra totalmente fundido y la capa de óxidos lo está parcialmente ( $T_p = T_o$ ).
- (d) La partícula completa se encuentra fundida; es decir, es una gota ( $T_p > T_o$ ).

Un caso particular ocurre cuando la reacción de oxidación (3-3) se lleva a cabo por completo y no se genera más calor en la partícula. En tal caso, la partícula mantendrá su composición final y su temperatura irá descendiendo hasta alcanzar el equilibrio térmico entre el gas y las paredes del reactor. Antes de que la partícula se funda, se asume que la oxidación ocurre en una delgada interface entre el núcleo de mata sin reaccionar y la capa de óxidos, de acuerdo a un esquema de núcleo sin reaccionar. En esta etapa, tanto la transferencia de masa como la difusión del oxígeno gaseoso a través de la capa de óxidos se asumen que controlan la velocidad de consumo de oxígeno. Al resolver la ecuación de continuidad para el oxígeno dentro de la capa de óxidos, se obtiene la siguiente expresión para la velocidad de consumo de oxígeno en la interface mata-producto:

$$R_A = \frac{A_c r_p^2 (C_{Ab} - C_{Aeq})}{r_c^2 \left[ \frac{1}{k_m} + \frac{r_p (r_p - r_c)}{r_c D_{Aeff}} \right]} \quad (3-8)$$

En el cual  $C_{Aeq} = 0$ , porque la reacción se considera irreversible. Debido a que  $r_p$ ,  $r_c$ ,  $k_m$  y  $D_{Aeff}$  son dependientes del tiempo en la ecuación (3-8), entonces  $R_A$  también lo es. El radio de la partícula  $r_p$  varía con el tiempo de acuerdo a la ecuación (3-3), en la que  $x_i = 2r_p$  y  $x_{i0} = 2r_i$ . El coeficiente de transferencia de masa  $k_m$  se obtiene de la siguiente expresión:

$$S_h = 2 + 0.6 Re_p^{1/2} Sc^{1/3} \quad (3-9)$$

Donde los Números de Reynolds, Sherwood y Schmidt se calculan a través de:

$$Sh = \frac{2r_p k_m}{D_{AB}} \quad (3-10)$$

$$N_{Re} = \frac{2r_p v_g \rho_g}{\mu_g} \quad (3-11)$$

$$Sc = \frac{\mu_g}{\rho_g D_{AB}} \quad (3-12)$$

Para el cálculo de estos números, todas las propiedades se tomaron a la temperatura del gas  $T_g$ . La difusividad del oxígeno en la fase gaseosa fue computada de acuerdo a la ecuación de Chapman-Enskog (Bird et al., 2007), considerando al gas como una mezcla binaria de oxígeno-nitrógeno. La difusividad efectiva del oxígeno dentro de la capa porosa de óxidos  $D_{Aeff}$  fue computada a la temperatura de la partícula por medio de la siguiente expresión:

$$D_{Aeff} = D_{AB} \frac{\psi}{\tau} \quad (3-13)$$

Donde  $\psi$  y  $\tau$  son la porosidad y tortuosidad de la capa de óxidos, respectivamente. Debido a que se considera que la partícula comienza a expandirse apenas entra a la cámara de reacción, la porosidad de la costra porosa  $\psi$  se incrementa conforme avanza la reacción. Por otra parte, la tortuosidad de la capa de óxidos  $\tau$  se considera constante a través de la trayectoria de la partícula.

Basándose en la estequiometría de la reacción (3-3), la velocidad de reducción del núcleo de mata sin reaccionar está dada por:

$$\frac{dr_c}{dt} = - \frac{bR_A}{\rho_B A_c} \quad (3-14)$$

Esta expresión se resuelve numéricamente para calcular el radio del núcleo de la partícula  $r_c$  como una función del tiempo  $t$ . Una vez  $r_c$  es conocida, la cantidad de mata sin reaccionar presente en la partícula fue computada a partir de la densidad molar de la mata  $\rho_B$  y del volumen del núcleo sin reaccionar  $(4/3)\pi r_c^3$ . Las cantidades de las especies oxidadas son obtenidas por medio de la estequiometría de la reacción (3-3). Por su parte, la porosidad de la capa de óxidos se calcula con la siguiente expresión:

$$\psi = 1 - \frac{n_{Cu_2O} / \rho_{Cu_2O} - n_{Fe_3O_4} / \rho_{Fe_3O_4}}{(4/3)\pi(r_p^3 - r_c^3)} \quad (3-15)$$

Las ecuaciones (3-14) y (3-15) se asumen como válidas a lo largo de la capa de óxidos de la partícula mientras esta permanece sólida. Cuando la capa de óxidos finalmente se funde por completo, la reacción (3-3) se considera ahora controlada por la transferencia de masa del oxígeno desde el seno del gas hasta la superficie de la gota reaccionante. Bajo tales condiciones, la velocidad de consumo de oxígeno se calcula de acuerdo a la siguiente expresión:

$$R_A = A_p k_m (C_{Ab} - C_{Aeq}) f_s \quad (3-16)$$

La solución numérica de las ecuaciones (3-8) a la (3-15) provee la composición química de las partículas individuales y la masa de la partícula,  $m_p$ . Una vez computadas la masa y composición química de las partículas, la temperatura fue calculada simultáneamente por medio del siguiente balance de energía.

$$\frac{d(m_p h_p)}{dt} = A_p \varepsilon \sigma (T_w^4 - T_p^4) + h A_p (T_g - T_p) + (-\Delta H_R) R_A \quad (3-17)$$

donde todos los símbolos fueron previamente definidos en la nomenclatura. La ecuación (3-17) establece que, la acumulación de energía térmica dentro de la partícula es debido al intercambio de calor entre la partícula y las paredes del horno por radiación; convección entre las partículas y el gas, y la generación de calor por las reacciones exotérmicas de oxidación. Por simplicidad, se tomó  $T_w = T_g = constante$ , por lo tanto, fueron asumidas condiciones de fusión en suspensión. Una vez conocida la masa de la partícula  $m_p$ , la solución numérica de la ecuación (3-17) provee los valores de la entalpía específica  $h_p$  a lo largo de la trayectoria de la partícula. Calculada la entalpía, la temperatura de la partícula puede ser a su vez calculada por un procedimiento iterativo que involucra a la composición de la misma y las entalpías de las especies individuales que la conforman. Los detalles del algoritmo numérico mencionado pueden consultarse en (Perez-Tello et al., 2001a).

El MFC se resuelve numéricamente con la especificación de los siguientes datos: Distribución de tamaños en la alimentación, composición química, propiedades de las partículas (densidad, capacidad calorífica, emisividad térmica y velocidad), y temperatura de entrada. Adicionalmente se requieren los siguientes parámetros:

- $g$  = Rapidez de expansión,  $\mu\text{m/s}$ .
- $\gamma$  = Distribución de fragmentos, adimensional.
- $f_c$  = Factor de diámetro crítico, adimensional.
- $f_{2f}$  = Fracción de las partículas más pequeñas en la alimentación que se fragmentan.
- $f_{nf}$  = Fracción de las partículas más grandes en la alimentación que se fragmentan.
- $\tau$  = Tortuosidad de la capa de óxidos, adimensional.

La solución numérica del MFC se basa fundamentalmente en dos suposiciones acerca de las partículas hijas producidas tras la fragmentación: (1) su densidad y composición química son iguales a las de la partícula madre que las originó, y (2) una vez producidas, no continúan su oxidación en la cámara de reacción. En base a lo anterior, las propiedades de todas las partículas presentes en el reactor, en cualquier posición, pueden determinarse a partir de la cinética de las partículas individuales en ausencia de fragmentación. Por lo tanto, el modelo se resuelve en dos etapas sucesivas. En la primera etapa se calcula la composición y temperatura de las partículas individuales a lo largo de su trayectoria de reacción y dicha información se almacena en una base de datos como función del tiempo. En dichos cálculos se resuelven el modelo cinético y el balance de energía, suponiendo que las partículas solo experimentan oxidación y expansión. Una vez que la base de datos se ha completado para todos los tamaños presentes inicialmente en la alimentación, la segunda etapa la consiste en resolver el modelo de fragmentación. Mediante éste se calcula la distribución de tamaños y composición química de la población a lo largo del reactor. Para dichos cálculos, el tamaño, composición, temperatura y densidad de las partículas se interpolan a partir de la base de datos construida en la etapa previa.

Se hace notar que el MFC posee seis parámetros ajustables: cinco de ellos corresponden al modelo de fragmentación ( $g, f_c, \gamma, f_{2f}$  y  $f_{nf}$ ) y uno al modelo cinético ( $\tau$ ). La obtención de dichos parámetros para cada condición experimental reportada por Parra (2009) se llevó a cabo iterativamente usando el método Simplex de optimización multivariable (Nelder and Mead, 1965). Típicamente, la convergencia se alcanzó en 400 iteraciones.

La validación del MFC incluye la comparación de sus predicciones con los datos experimentales disponibles en términos de: (a) la distribución de tamaños en el receptáculo y (b) la fracción de azufre remanente en la población de partículas a lo largo del eje central del reactor a nivel

laboratorio (Parra-Sánchez, 2009). De este modo, el modelo se valida tanto en la parte de distribución de tamaños como en lo relativo a la rapidez global de oxidación de la población.

### 3.2 Efecto de los Fenómenos de Expansión y Fragmentación sobre la Composición y Generación de Polvos en Condiciones de Flujo Laminar.

Una vez integrado el balance de energía al modelo cinético, el MFC se pone en marcha en el estudio de las emisiones de polvos y el origen de estos. Para clarificar los efectos de la expansión y la fragmentación sobre la generación y composición química de las partículas de polvo presentes en el reactor de conversión instantánea, se introdujo un *índice de fragmentación* que representa a la relación de los fenómenos de expansión y fragmentación durante el proceso.

La distribución de tamaños de una población de partículas al tiempo  $t$  se maneja con la función de densidad másica discretizada  $f_3(x_i)$ , definida matemáticamente como:

$$f_3(x_i) = \frac{m_i}{(\sum_{i=1}^N m_i)(\Delta x_i)} \quad i = 1, N \quad (3-18)$$

donde  $x_i$  es el tamaño medio de las partículas contenido en la  $i$ -ésima fracción de tamaño;  $\Delta x_i$  es el tamaño del intervalo;  $m_i$  es la masa de las partículas en la  $i$ -ésima fracción de tamaño;  $N$  es el número de fracciones de tamaño en la población al tiempo  $t$ ; y la sumatoria en el denominador del lado derecho representa la masa total de la población de partículas. En esta notación,  $x_1$  y  $x_N$  representan, respectivamente, a los tamaños más pequeño y más grande en la población. De la ecuación (3-18), la fracción másica de la población de partículas que corresponden a la región de polvos al tiempo  $t$  está dada por:

$$F_d = \sum_{i=1}^d f_3(x_i)(\Delta x_i) \quad (3-19)$$

donde  $d$  es el intervalo de tamaños para el cual  $x_d = 20 \mu m$ . Esta cantidad es definida como la masa de todas las partículas dentro del rango de  $0 \mu m - 20 \mu m$ , dividida por la masa de la población. Para una operación de conversión instantánea, es conveniente definir el cambio en la fracción de polvos en la población de partículas que provienen de la alimentación como sigue:

$$\Delta F_d = F_d - F_{d,f} \quad (3-20)$$

donde el subíndice  $f$  se refiere a la alimentación al reactor. El símbolo  $\Delta F_d$  representa el cambio en la proporción de polvo en la población de partículas al tiempo  $t$  con respecto al valor en la alimentación. Esta cantidad puede ser positiva, negativa o cero. Un valor positivo indica que la

proporción de polvo en la población se incrementó respecto a su valor original en la alimentación. Valores negativos indican a su vez que la proporción de polvos se redujo respecto a su cantidad original en la alimentación. Finalmente,  $\Delta F_d$  es cero cuando la proporción de polvos en la población de partículas permaneció sin cambios respecto a su valor original en la alimentación.

Debido a que las partículas de polvo pueden estar presentes en la alimentación y en los productos de reacción, la masa generada de polvos respecto a la masa de la alimentación en un punto del reactor  $G_d$  es definida como:

$$G_d = \frac{F_{d,p}m_p - F_{d,f}m_f}{m_f} \quad (3-21)$$

donde los subíndices  $p$  y  $f$  representan los productos de reacción y la alimentación, respectivamente, y  $m$  es la masa de la población de partículas especificada por los subíndices. El numerador es la masa neta de polvo producida en un punto del reactor. Así,  $G_d$  representa la masa neta de polvo generado por unidad de masa de sólido alimentado. Es de notar que la ecuación (3-21) se reduce a la ecuación (3-20) para el caso especial ( $m_p = m_f$ ). Por lo tanto, cuando la masa de la población de partículas no presenta cambios durante el vuelo en la cámara de reacción, el cambio en el contenido de polvos  $\Delta F_d$  también representa la cantidad de polvo generado en el reactor por unidad de masa de sólido alimentado. En general,  $m_p$  es diferente a  $m_f$  porque la estequiometría de las reacciones de oxidación involucran cambios en la masa de las partículas reaccionantes. Se hace notar que  $G_d$  definida por la ecuación (3-21) puede también tomar valores positivos, negativos o cero. Valores positivos indican que la generación neta de polvos ocurrió en el reactor. Los valores negativos se relacionan con un consumo neto de los polvos ocurrido dentro del reactor. A su vez, el caso especial cuando  $G_d = 0$  indica que no hubo generación o consumo de polvos en el reactor en un punto dado.

En el presente trabajo se definió el *índice de fragmentación*  $n_f$  para representar la medida en la cual la fragmentación ha ocurrido dentro de la población total de partículas. Esta cantidad es definida como la fracción de la masa sólida total alimentada al reactor que experimentó fragmentación al tiempo  $t$ . En cuanto a las características de la población de partículas en el MFC, la definición anterior conduce a la siguiente expresión:

$$n_f = \sum_{i=1}^n f_3(x_{i0})(\Delta x_i) f_i \quad i = 1, n \quad (3-22)$$

donde  $f_3(x_{i0})$  y  $n$  son, respectivamente, la función de densidad de masa y el número de fracciones de tamaño de la población de partículas en la alimentación, y  $f_i$  es la fracción másica del  $i$ -ésimo tamaño en la alimentación que sufre fragmentación al tiempo  $t$  en el reactor. Se observa que  $n < N$  debido a que el fenómeno de expansión incrementa el número de tamaños en la población. Los valores de  $f_i$  se calculan con el MFC una vez que los datos de entrada para una corrida dada son especificados. Durante el vuelo, aquellas partículas en la alimentación que no presentan fragmentación al tiempo  $t$  se supone que experimentan expansión. Por lo tanto, la cantidad  $(1 - n_f)$  representa la fracción másica de la alimentación sólida que experimenta expansión hasta tiempo  $t$  sin fragmentarse.

El índice de fragmentación definido por la ecuación (3-20) puede tomar valores entre cero y la unidad. Cuando  $n_f = 0$ , no ha ocurrido fragmentación alguna, y la población se compone de las partículas iniciales de la alimentación que son sometidas a expansión. Del mismo modo, cuando  $n_f = 1$ , toda la población se compone de fragmentos. El caso particular:  $n_f = 0.5$  indica que la mitad de la alimentación sólida que entró al reactor sufrió fragmentación al tiempo  $t$ , mientras que la otra mitad experimentó expansión sin fragmentarse. Por lo tanto, el valor de  $n_f = 0.5$  establece el límite del predominio de los fenómenos de expansión y fragmentación en la población completa. Como resultado, cuando  $n_f$  está en el rango  $0 < n_f < 0.5$ , la expansión de la partícula prevalece. Del mismo modo, cuando  $0.5 < n_f < 1$ , la fragmentación de partículas prevalece. Se hace notar que el predominio de uno de ellos no implica que el otro no se presente en la población. El índice de fragmentación es un indicador global de la prevalencia de los fenómenos de expansión y fragmentación en la población global de partículas.

Además de los cambios de tamaño experimentados por las partículas, es de interés investigar la composición química de las partículas de polvo durante su vuelo por la cámara de reacción. En este trabajo, el contenido de azufre se usa para representar la composición química de las partículas, suponiendo que la oxidación de S, Cu y Fe se produce de acuerdo a la estequiometría de la reacción (3-5). El contenido promedio de azufre contenido en el polvo se representa como  $\langle \omega_s \rangle_d$  y se calculó al tiempo  $t$  con:

$$\langle \omega_s \rangle_d = \frac{\sum_{i=1}^d \omega_{s,i} f_3(x_i) (\Delta x_i)}{\sum_{i=1}^d f_3(x_i) (\Delta x_i)} \quad (3-23)$$

Donde  $\omega_{s,i}$  es la fracción masa de azufre en una partícula con tamaño  $x_i$ , y otros símbolos han sido definidos previamente. Las cantidades  $f_3(x_i)$  y  $\omega_{s,i}$ , en la ecuación (3-23) son valores instantáneos. La primera se calculó de la ecuación (3-18) a lo largo de la trayectoria de la nube de partículas, mientras que la segunda fue calculada resolviendo, la ecuación de rapidez de oxidación y el balance de masa para el azufre en las partículas individuales que viajan a través del reactor. En la presente formulación, la fragmentación fue considerada para producir partículas hijas con la misma densidad aparente y composición química que la partícula madre. También se considera que las partículas hijas no reaccionan más a través del reactor, por lo que su tamaño y composición química permanecen invariables a lo largo de la cámara de reacción. Debido a que se desconocen los mecanismos que controlan la fragmentación de partículas, estas suposiciones fueron hechas por simplicidad matemática y pueden ser modificadas en el futuro cuando nueva evidencia experimental sea disponible. Durante los cálculos, las propiedades de las partículas que reaccionan tales como la masa, densidad aparente y composición química se almacenan en una base datos durante su viaje a través del horno. Esta información se utiliza para calcular las propiedades de las partículas en el reactor en cualquier momento.

Se hace notar que el símbolo  $\langle w_s \rangle_d$  en la ecuación (3-23) es definido como la masa de azufre contenida en todas las partículas con tamaños en el rango de 0 a 20  $\mu\text{m}$  dividida entre la masa de todas las partículas, de manera que representa una concentración promedio del contenido de azufre. Esta cantidad puede ser obtenida experimentalmente por medio del tamizado de una muestra de las partículas de una ubicación dada en el reactor, y analizando su composición química. Similarmente, el contenido promedio de azufre en la población de partículas  $\langle \omega_s \rangle$  puede obtenerse haciendo las sumatorias del lado derecho en la ecuación (3-23) para todos los tamaños de la población,  $N$ . Basándose en la definición de función de densidad dada en la ecuación (3-18), el denominador en el lado derecho de la ecuación (3-23) se hace igual a la unidad, y

$$\langle \omega_s \rangle = \sum_{i=1}^N \omega_{s,i} f_3(x_i) (\Delta x_i) \quad (3-24)$$

El símbolo  $\langle \omega_s \rangle$  representa la masa de azufre contenido en las partículas en la población, dividida por la masa de toda la población. Las ecuaciones (3-23) y (3-24) permiten la comparación entre el contenido de azufre promedio de partículas de polvo, y el de la población en cualquier posición a lo largo del reactor.

El principal objetivo de esta parte de la investigación fue aclarar el papel de los fenómenos de expansión y fragmentación sobre las características generales de las partículas de polvo en un reactor de conversión instantánea bajo una variedad de condiciones de operación. La Tabla (3-1) muestra las corridas de la simulación consideradas en este estudio, así como los parámetros del MFC usados en los cálculos (Parra-Sánchez et al., 2014). Las condiciones de operación mostradas en dicha tabla corresponden a todos los experimentos realizados en el reactor de conversión instantánea a escala laboratorio en la Universidad de Utah (Perez-Tello, 1999; Perez-Tello et al., 2001b; Riihilahti, 1998).

Para la discusión posterior, las corridas 17 y 20 fueron etiquetadas como casos A y B, respectivamente. En ambas corridas, la alimentación de sólidos consistió en material sin cribar formado por partículas de mata de cobre de una amplia variedad de tamaños; es decir, se trata de la alimentación típica a un reactor industrial. Detalles sobre las distribuciones de tamaños de todas las fracciones mostradas en la Tabla (3-1), y su representación por una serie de expresiones empíricas se encuentran disponibles en la literatura (Pérez-Tello et al., 2002b).

**Tabla 3-1.** Corridas de simulación y parámetros del MFC usados en los cálculos.

Corrida No.	Fracción de tamaño en la alimentación, $\mu\text{m}$	Relación oxigeno-mata, $\text{kg O}_2/\text{kg mata}$	Concentración $\text{O}_2$ en el gas de proceso, vol. %	$g$ , $\mu\text{m/s}$	$-\gamma$	$f_{2f}$	$f_{nf}$	$f_c$	$\tau$
1	<37	0.25	70	57	2.41	0.66	-0.06	1.1	800
2	<37	0.33	70	18	2.37	0.87	-1.62	1.0	950
3	<37	0.25	100	55	2.54	0.83	-0.15	1.2	1100
4	<37	0.33	100	55	2.70	0.80	-0.42	1.3	1000
5	37-74	0.25	70	18	2.27	0.22	1.15	1.1	800
6	37-74	0.33	70	38	2.51	0.60	0.91	1.2	700
7	37-74	0.25	100	19	2.33	0.31	0.81	1.1	1100
8	37-74	0.33	100	40	2.53	0.81	0.51	1.2	1000
9	74-105	0.25	70	6	2.62	0.24	0.63	1.0	550
10	74-105	0.33	70	17	2.56	0.39	1.03	1.1	600
11	74-105	0.25	100	6	2.48	0.03	1.08	1.0	750
12	74-105	0.33	100	26	2.66	0.60	0.70	1.1	775
13	105-149	0.25	70	5	2.76	-0.22	1.27	1.0	400
14	105-149	0.33	70	13	2.62	0.45	0.74	1.0	450
15	105-149	0.25	100	6	2.66	0.17	0.99	1.0	600
16	105-149	0.33	100	12	2.81	0.15	1.12	1.0	700
17 (A)	<149	0.25	70	58	2.36	-0.02	1.45	1.0	600
18	<149	0.33	70	47	2.75	-0.06	1.75	1.1	600
19	<149	0.25	100	60	2.73	0.21	0.99	1.2	800
20 (B)	<149	0.33	100	51	2.64	0.43	1.11	1.2	800

En este documento, los casos (A) y (B) son mostrados como ejemplos de las capacidades del modelo para proveer de información detallada para el análisis de un reactor de conversión instantánea. El caso A corresponde a la operación típica en condiciones donde la cantidad de oxígeno suministrado al reactor fue el estequiométrico. De esta forma se logra oxidar todo el azufre presente en las partículas y formar dióxido de azufre, así como todo el hierro y transformarlo en magnetita. También, la concentración de oxígeno en el gas de proceso fue fijado en 70 % en volumen. En contraste, el caso B representa las condiciones de oxidación más severas utilizadas en los experimentos (Perez-Tello, 1999; Perez-Tello et al., 2001a; Riihilahti, 1997) en los cuales el oxígeno suministrado al reactor fue mayor que su cantidad estequiométrica, usando oxígeno puro.

La siguiente Tabla (3-2), muestra los parámetros que fueron mantenidos constantes en todas las corridas de la simulación vistos en la Tabla (3-1). Estos incluyen las características del reactor, así como los datos de entrada para resolver la ecuación de rapidez de oxidación de las partículas individuales. Las distribuciones de tamaño en la alimentación (Pérez-Tello et al., 2002a) y la población de partículas a lo largo del reactor fueron representadas fijando los valores de  $n=200$  y  $N=410$ , respectivamente. Con tal información, el MFC fue resuelto de acuerdo al procedimiento descrito en la sección anterior (Parra-Sánchez et al., 2014). Para rastrear las características del polvo y de la población de partículas, se consideraron 20 puntos equidistantes a lo largo del reactor, y sus resultados numéricos fueron suavizados para propósitos gráficos. La primera ubicación a una distancia axial igual a cero corresponde a la entrada a la cámara de reacción, mientras que la última corresponde a la parte final del reactor. Los resultados se discuten en el capítulo 4 y la descripción completa se presenta en el Anexo II.

**Tabla 3.2.** Parámetros usados en las simulaciones del MFC.

Parámetro	Valor
Longitud de reactor	2 m
Presión del sistema	87.1 kPa
Relación de temperaturas: pared del horno/gas	1350 K (1077 °C)
Velocidad de la partícula	2.3 m/s
Temperatura inicial de partícula	298 K (25 °C)
Temperatura de reacción incidente	800 K (527 °C)
Punto de fusión del núcleo sin reacción	1155 K (882 °C)
Punto de fusión de la capa de óxidos.	1473 K (1200 °C)
Densidad molar de mata	31.6 kmol/m <sup>3</sup>
Densidad molar de Cu <sub>2</sub> O	37.7 kmol/m <sup>3</sup>
Densidad molar de Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	22.4 kmol/m <sup>3</sup>
Emisividad de partícula	0.85
Calor de reacción	400+600*y kJ/mol de mata
FeS <sub>x</sub> a Cu <sub>2</sub> S relación molar, y	0.14
S a Fe relación de masa atómica, x	0.93
Paso de tiempo para resolver el modelo cinético	10 <sup>-5</sup> s

### 3.3 Modelo Tridimensional de un Reactor de Conversión Instantánea.

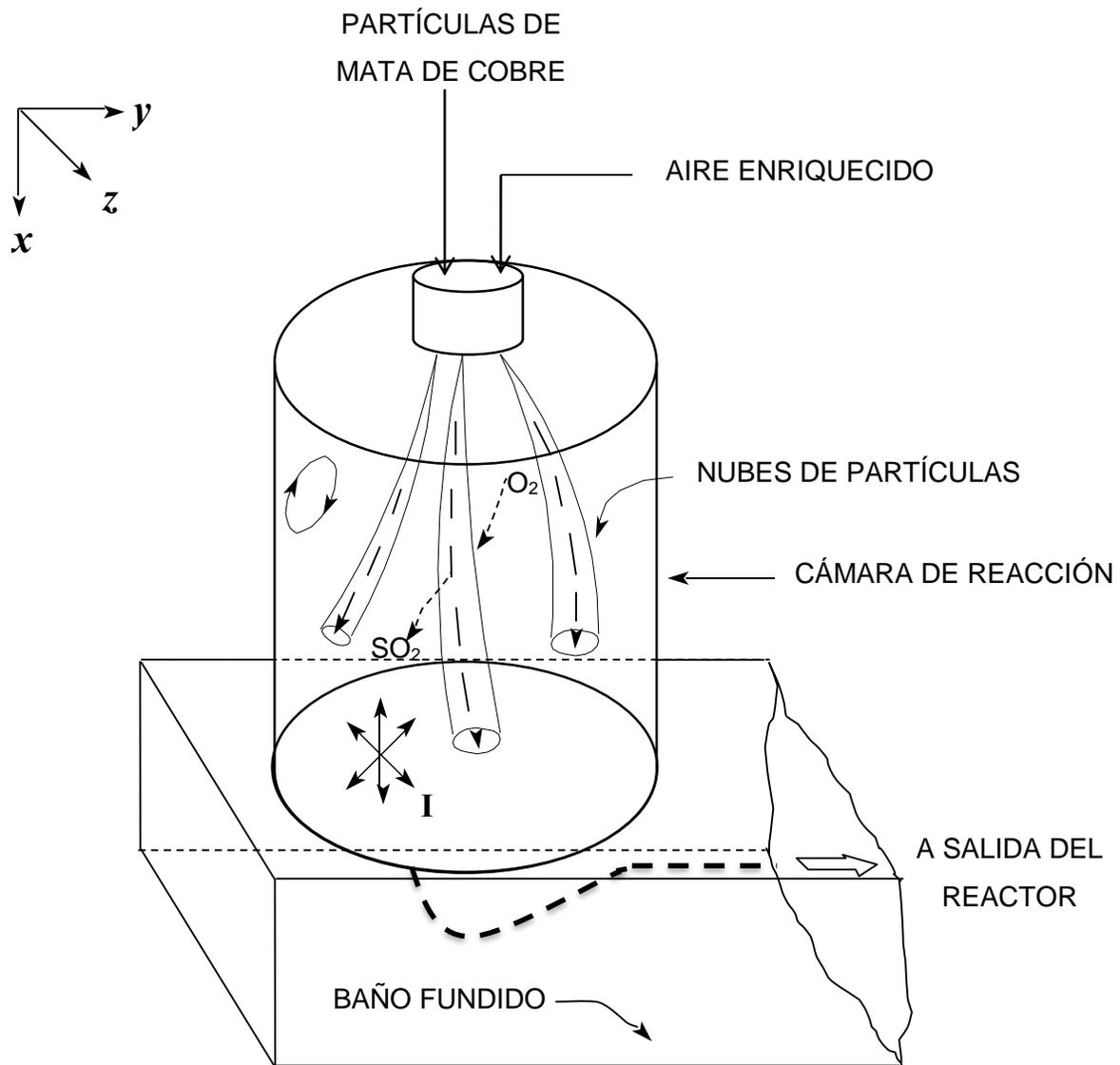
El objetivo principal del desarrollo del MFC, descrito en las secciones anteriores, fue su posterior incorporación al modelo tridimensional de conversión instantánea desarrollado por (Perez-Tello et al., 2001a), en el cual los cambios de tamaño experimentados por las partículas no fueron considerados en la formulación. En el presente apartado se hace una breve descripción de dicho modelo computacional, con el fin de establecer las bases para el acoplamiento de ambos modelos, lo cual se describe en la sección 3.3.1. El punto de partida del modelo tridimensional se muestra esquemáticamente en la Figura (3-3), en el cual se considera que las partículas de mata sólida de cobre entran por la parte central superior de la cámara de reacción, siendo ésta la corriente primaria. Las partículas se dispersan de forma radial y cerca del quemador se juntan con una corriente secundaria de gas enriquecido en oxígeno. Después de esto, se forma una corriente turbulenta que desciende por el horno, a la vez que las partículas se calientan al punto de iniciar las reacciones heterogéneas. En seguida las partículas oxidadas caen a un baño fundido mientras que la corriente de  $\text{SO}_2$  y polvos continúan su viaje por el reactor hasta salir hacia la caldera. El proceso se considera en régimen estacionario. Los fenómenos que ocurren en la región turbulenta implican el uso de ecuaciones de conservación para el transporte de masa, momentum y energía en cada fase. Debido a lo anterior y para su resolución se deben calcular propiedades promediadas. En la presente formulación se usó el promedio de Favre para las ecuaciones de la fase gaseosa, el cual se define como:

$$\bar{\phi} = \frac{1}{\bar{\rho}} \int_0^t \rho(t)\phi(t) dt \quad (3-25)$$

donde  $\bar{\phi}$  es el promedio de Favre de la propiedad;  $\phi$  es una variable generalizada o propiedad turbulenta dependiente en fase gaseosa;  $\rho$  es la densidad y  $\bar{\rho}$  la densidad molar.

Para resolver las ecuaciones de movimiento de la fase partícula se usa un promedio probabilístico, el cual representa al evento más recurrente que tiene lugar en fluctuaciones aleatorias. Para N realizaciones de un experimento, cada uno resultando un valor de  $\phi_k$  en la *k-ésima* realización, el promedio es:

$$\langle \phi \rangle = \frac{\sum_{k=1}^N \phi_k}{N} \quad (3-26)$$



**Figura 3-3.** Representación esquemática de un horno de conversión instantánea para propósitos de modelación matemática (Perez-Tello et al., 2001a).

### 3.3.1 Algoritmo General de Solución del Flash3D.

El código computacional está dividido en dos módulos: El primero resuelve la fase gaseosa y el modelo de radiación utilizando un enfoque Euleriano. El segundo se encarga de resolver las ecuaciones de la fase partícula utilizando un enfoque Lagrangiano.

**Tabla 3-3.** Ecuaciones de la Fase Gaseosa

$\frac{\partial}{\partial x}(\bar{\rho}_g \bar{u}_g \phi) + \frac{\partial}{\partial y}(\bar{\rho}_g \bar{v}_g \phi) + \frac{\partial}{\partial z}(\bar{\rho}_g \bar{w}_g \phi) - \frac{\partial}{\partial x}(\Gamma_\phi \frac{\partial \phi}{\partial x}) - \frac{\partial}{\partial y}(\Gamma_\phi \frac{\partial \phi}{\partial y}) - \frac{\partial}{\partial z}(\Gamma_\phi \frac{\partial \phi}{\partial z}) = S^\phi$				
Ecuación	$\phi$	$\Gamma_\phi$	$S^\phi$	
Continuidad	1	0	$S_p^m$	[1]
Momentum en x	$\bar{u}_g$	$\mu_e$	$-\frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x}(\mu_e \frac{\partial \bar{u}_g}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y}(\mu_e \frac{\partial \bar{v}_g}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial z}(\mu_e \frac{\partial \bar{w}_g}{\partial x}) \dots$	[2]
Momentum en y	$\bar{v}_g$	$\mu_e$	$-\frac{\partial p}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial x}(\mu_e \frac{\partial \bar{u}_g}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial y}(\mu_e \frac{\partial \bar{v}_g}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z}(\mu_e \frac{\partial \bar{w}_g}{\partial y}) \dots$	[3]
Momentum en z	$\bar{w}_g$	$\mu_e$	$-\frac{\partial p}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial x}(\mu_e \frac{\partial \bar{u}_g}{\partial z}) + \frac{\partial}{\partial y}(\mu_e \frac{\partial \bar{v}_g}{\partial z}) + \frac{\partial}{\partial z}(\mu_e \frac{\partial \bar{w}_g}{\partial z}) \dots$	[4]
Energía cinética turbulenta	$k$	$\mu_e / \sigma_k$	$-\frac{2}{3} \frac{\partial}{\partial x}(\bar{\rho}_g k) + \bar{\rho}_g g_x + S_p^u$	[5]
Velocidad de disipación	$\varepsilon$	$\mu_e / \sigma_\varepsilon$	$-\frac{2}{3} \frac{\partial}{\partial y}(\bar{\rho}_g k) + \bar{\rho}_g g_y + S_p^v$	[6]
Fración másica de azufre	$f$	$\mu_e / \sigma_f$	$-\frac{2}{3} \frac{\partial}{\partial z}(\bar{\rho}_g k) + \bar{\rho}_g g_z + S_p^w$	[7]
Razón de oxígeno reaccionado	$\eta$	$\mu_e / \sigma_\eta$	$G - \bar{\rho}_g \varepsilon$	[8]
Entalpía	$\bar{h}_g$	$\mu_e / \sigma_h$	$(\varepsilon/k)(C_1 G - C_2 \bar{\rho}_g \varepsilon)$	[9]
			$S_p^f$	[7]
			$S_p^\eta$	[8]
			$Q_{rp}^h + Q_{rg}^h + \bar{u}_g \frac{\partial p}{\partial x} + \bar{v}_g \frac{\partial p}{\partial y} + \bar{w}_g \frac{\partial p}{\partial z} + S_p^h$	[9]
dónde:				
			$G = \mu_t \left\{ 2 \left[ \left( \frac{\partial \bar{u}_g}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial \bar{v}_g}{\partial y} \right)^2 + \left( \frac{\partial \bar{w}_g}{\partial z} \right)^2 \right] + \left( \frac{\partial \bar{u}_g}{\partial y} + \frac{\partial \bar{v}_g}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial \bar{u}_g}{\partial z} + \frac{\partial \bar{w}_g}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial \bar{v}_g}{\partial z} + \frac{\partial \bar{w}_g}{\partial y} \right)^2 \right\}$	[10]
			$\mu_e = \mu_t + \mu_l$	[11]
			$\mu_t = C_\mu \bar{\rho}_g k^2 / \varepsilon$	[12]
			$S_p^m = S_p^f - S_p^\eta$	[13]

**Tabla 3-4.** Ecuaciones de la Fase Partícula

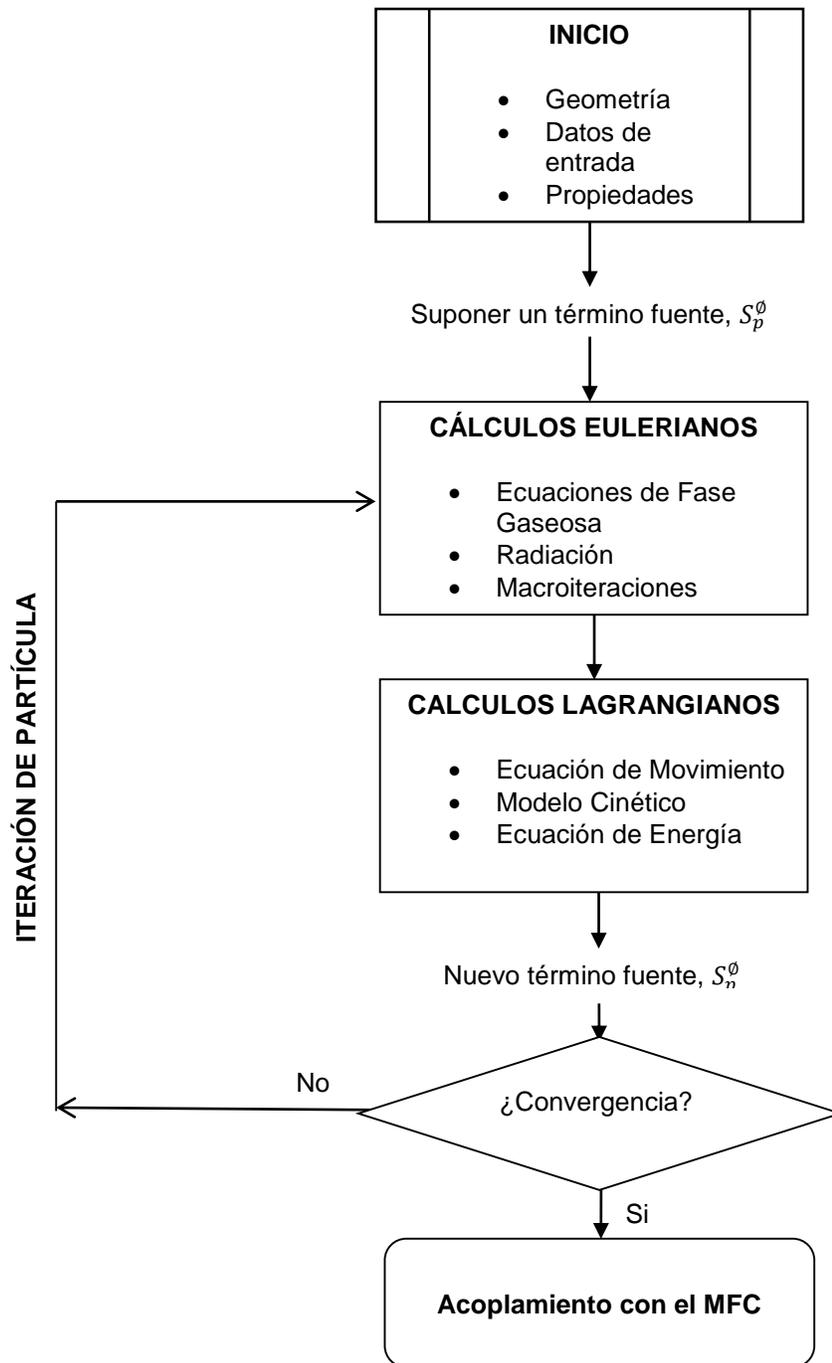
Movimiento	$m_p \frac{d\langle \mathbf{V} \rangle}{dt} = m_p \frac{3}{4} C_D \frac{\rho_g}{\rho_p} \frac{1}{d_p} \cdot \langle \mathbf{U} \rangle - \langle \mathbf{V} \rangle \cdot (\langle \mathbf{U} \rangle - \langle \mathbf{V} \rangle) + (m_p - m_g) \mathbf{g}$	[1]
Dispersión de partículas (modelo de nubes)	$\sigma_{ii}^2(t) = 2 \int_0^t \langle u_i'^2(t_1) \rangle \int_0^{t_1} R_{ii}^p(\tau) d\tau dt_1$	[2]
Balace de masa por especie	$\frac{dn_i}{dt} = \sum_{j=1}^{j=q} R_{i,j}^r - R_i^v$	[3]
Energía	$\frac{d}{dt} (m_p h_p) = H_r + Q_{rp} - Q_p - H_v$	[4]

Cada módulo está dividido en subrutinas. Un programa maestro controla el algoritmo completo, el cual se muestra esquemáticamente en la Figura (3-4). Los datos de entrada para una corrida de simulación se almacenan en una serie de archivos que son leídos por el código. Un archivo de texto provee los detalles para la geometría del horno y sus dimensiones; un archivo de datos principal contiene las especificaciones de las corrientes gaseosa y de partículas, la elección de las condiciones de frontera para las ecuaciones del gas y la radiación, los parámetros para el modelo de nubes de partículas, y las propiedades cinéticas y termoquímicas de las partículas. Otros archivos contienen la información termodinámica de las especies en la fase gaseosa y las velocidades de entrada del gas. Si se trata de una corrida de reinicio, el programa busca en los archivos la tabla de propiedades, un archivo de reinicio para las ecuaciones de la fase gaseosa y un archivo binario que contiene los términos fuente de las nubes de partículas.

Para una simulación que inicia de cero, se hace una primera aproximación de los términos fuente,  $S_p^\phi$ , tomando valores arbitrarios del grado de las reacciones de conversión, y luego distribuyendo los términos fuente a través de todo el dominio computacional.

Una vez los términos fuente son generados, las ecuaciones Eulerianas son resueltas. Durante los cálculos Eulerianos, los términos fuente no cambian. Las ecuaciones de la fase gaseosa de la Tabla (3-3) y radiación se resuelven iterativamente una a la vez. Cada iteración que involucra la convergencia de una ecuación Euleriana específica. A esto se le llama una *micro-iteración*. Un paso del algoritmo en el cual todas las ecuaciones de la fase gaseosa son resueltas se le conoce como una *macro-iteración*. Debido a que las ecuaciones del gas y la radiación están acopladas, se necesitan de cientos a miles de *macro-iteraciones* para estabilizar las ecuaciones Eulerianas.

Cuando éstas están razonablemente convergidas, se activa la parte Lagrangiana del código para resolver nuevamente las ecuaciones de la fase partícula mostradas en la Tabla (3-4).



**Figura 3-4.** Algoritmo General de Solución, adaptado de (Perez-Tello et al., 2001a).

En los cálculos Lagrangianos se resuelven la ecuación de movimiento de la partícula, modelo cinético, y la ecuación de energía, para cada nube de partículas que entra al dominio de flujo.

Todas las ecuaciones Lagrangianas se resuelven a la vez en la misma subrutina, y conforme avanzan, se calculan nuevos términos fuente para todas las ecuaciones de la fase gaseosa.

Un ciclo del algoritmo en el cual convergen los cálculos Eulerianos mientras que los cálculos Lagrangianos generan nuevos términos fuente, es llamada una iteración de partícula. La convergencia total se alcanza cuando los términos fuente no cambian sustancialmente de una iteración de partícula a la siguiente, y los cálculos Eulerianos convergen inmediatamente no obstante la llegada de nuevos términos fuente por parte de los cálculos Lagrangianos. Si no se ha alcanzado la convergencia total, los nuevos términos fuente son sobre-relajados, y se hace una nueva iteración de partícula. Típicamente se necesitan de cientos de iteraciones de partícula para alcanzar la convergencia.

Los resultados de las simulaciones computacionales consisten de una serie de archivos binarios o en formato de texto simple. Estos archivos resultantes son post-procesados usando un software de visualización de datos. Para este estudio se usó el programa de visualización *FieldView*<sup>TM</sup> (Intelligent-Light, 2013) para generar las ilustraciones tridimensionales que se discuten en el Capítulo 4.

Con el fin de verificar la operación apropiada del código computacional original, inicialmente, se reprodujeron los resultados reportados por Perez-Tello et al. (2001).

### 3.3.2 Efecto de la Dispersión de la Energía Radiante sobre los Campos de Temperatura en un Reactor de Conversión Instantánea.

En este apartado se aplica el modelo computacional *Flash3D* para simular la cámara de reacción de un horno industrial de conversión instantánea. El modelo incluye la transferencia de momentum, calor y masa en tres dimensiones y la cinética heterogénea de las reacciones de oxidación de las partículas en la cámara de reacción en condiciones de turbulencia. La fase gaseosa se trata desde un enfoque Euleriano, se resuelven la ecuación de continuidad global, las ecuaciones de continuidad para el oxígeno y el dióxido de azufre, la ecuación de energía y las ecuaciones de energía cinética turbulenta y su rapidez de disipación. Separadamente se resuelve el campo de radiación en el interior del horno. La fase partícula se trata de acuerdo a un enfoque Lagrangiano; se resuelven la ecuación de movimiento, energía, y las expresiones que describen la cinética de las reacciones de oxidación de las partículas. La dispersión turbulenta de partículas se describe mediante el modelo de nubes de partículas de (Baxter and Smith, 1993). Las ecuaciones que describen ambas fases se acoplan a través de términos fuente en las ecuaciones de la fase gaseosa, los cuales se actualizan periódicamente hasta alcanzar la convergencia por un procedimiento iterativo. La solución numérica se realiza con el método de volumen finito. Los resultados computacionales incluyen a los campos de velocidad, temperatura, concentración de  $O_2$ ,  $SO_2$  y grado de turbulencia de la fase gaseosa en el interior del reactor. Para las nubes de partículas se determinan sus trayectorias dentro de la cámara de reacción, densidad de partículas, composición química y temperatura.

La dispersión de la radiación incidente sobre las partículas es un tema de interés en el estudio del horno de conversión instantánea. La forma en que las partículas dispersan la energía proveniente de las paredes del horno y de otras partículas. Como se comentó antes, la dispersión de la radiación puede ser descrita mediante la función de fase. Con el fin de evaluar este fenómeno, en el presente trabajo se consideran las funciones de fase mostradas en la Tabla (3-5).

Un punto de interés en esta área es determinar si la dispersión de la energía radiante en la cámara de reacción, por efecto de la nube de partículas, puede afectar el balance térmico del horno y/o el grado de conversión global de las reacciones de oxidación. Este es un punto que ha recibido poca atención en la literatura. Algunos autores (Hahn and Sohn, 1990; Varnas and

Truelove, 1995) han llegado a conclusiones contradictorias. Con el fin de esclarecer este punto, se realizarán simulaciones en condiciones típicas de operación de un horno industrial, en ausencia y presencia de dispersión de la energía radiante y se comparan las predicciones del modelo computacional.

**Tabla 3-5.** Funciones de Fase Usadas en este Estudio.

Modelo	Ecuación
Sin dispersión	$\Phi = 0$
Lineal isotrópico	$\Phi = 1$
Henyey-Greenstein	$\Phi(\theta) = \frac{1 - g^2}{[1 + g^2 - 2 * g * \cos(\theta)]^{3/2}}$
Largas esferas difusas	$\Phi(\theta) = \left(\frac{8}{3\pi}\right) * (\sin(\theta) - \theta * \cos(\theta))$

En la Tabla (3-6) se muestran los parámetros a usarse en las simulaciones; estas se realizaron en condiciones típicas de operación del horno de conversión instantánea, que corresponden a los casos 17(A) y 20(B) que se muestran en la Tabla (3-1) y se compararon los resultados obtenidos en términos de los campos de temperatura de la fase gaseosa y las partículas, así como la cantidad neta de energía radiante intercambiada.

**Tabla 3-6.** Parámetros de la simulación empleados en el Flash3D.

<b>Parámetro</b>	<b>Valor</b>
Geometría del reactor*:	
Diámetro de la cámara de reacción, m	4.25
Longitud de la cámara de reacción, m	6.5
Distancia entre el baño fundido y la cámara, m	1.0
Temperaturas de las paredes:	
Pared superior, K	1570
Pared lateral, K	1570
Baño fundido, K	1620
Emisividad Superficial	0.85
Corriente de partículas:	
Temperatura de entrada, K	298
Velocidad de entrada, m s <sup>-1</sup>	30§
Densidad de las partículas, kg m <sup>-3</sup>	5400
Número de puntos de inyección	6
Número de tamaños de partícula	400
Corriente de gaseosa	
Temperatura de entrada, K	298
Temperatura de salida, K	1570‡
Velocidad de entrada, m s <sup>-1</sup>	46§
Presión, kPa	86.1
Intensidad turbulenta	0.1§

\*Adaptado de (George-Kennedy D., 2005)

‡Sólo para cálculos de radiación

§Estimado

En la Tabla (3-7) se observan los casos a evaluarse: En el primero (1) se desprecia la dispersión de la energía radiante por las partículas; en el siguiente (2) se considera una dispersión de radiación isotrópica, mientras que en los dos siguientes la dispersión de la energía radiante se representa mediante las funciones de fase no isotrópicas: Hacia adelante con (3) Henyey-Greenstein y hacia atrás (4) con el modelo de largas esferas difusas, respectivamente.

Las variables de respuesta en las simulaciones involucran a las partículas y el gas del proceso, y son comparadas por separado. En el caso de las partículas se toman sus trayectorias dentro de la cámara de reacción, la temperatura, composición química tal como el azufre remanente, la densidad numérica (número de partículas por unidad de volumen) y el grado de conversión. Para el gas, las variables a evaluar incluyen su temperatura, concentración de  $SO_2$  y velocidad.

Una variable de respuesta relevante, relacionada a la dispersión de energía radiante, es la cantidad total de calor intercambiado por radiación entre las partículas y las paredes del horno, la cual en el presente trabajo se designa como  $Q_{rp}$ . La comparación de este valor con respecto al caso donde la dispersión es despreciable proporciona una medida cuantitativa de este fenómeno. Si ambos valores son cercanos, el efecto dispersivo de acuerdo a la función de fase considerada sería despreciable. Por el contrario, si ambos valores son diferentes, el efecto dispersivo en la dirección considerada por la función de fase podría ser significativo.

**Tabla 3-7.** Casos a ser evaluados en el estudio del efecto de la dispersión de energía radiante.

<b>Número de caso y dirección</b>	<b>Modelo empleado</b>
(1) Sin dispersión de radiación	Ninguno
(2) Dispersión lateral, delantera y trasera	Isotrópico
(3) Dispersión predominantemente delantera	Henyey-Greenstein
(4) Dispersión predominantemente trasera	Largas Esferas Difusas

### 3.4. Acoplamiento del MFC al Modelo Tridimensional de Conversión Instantánea

Durante el desarrollo del presente trabajo, se evidenció que la principal dificultad para incorporar los cambios de tamaño de partícula al modelo tridimensional existente es realizar el acoplamiento entre las ecuaciones que describen las fases gaseosa y sólida en el reactor. Lo anterior se debe a: (a) la alta densidad de la suspensión sólido-gas, en términos de masa de partículas por unidad de volumen de suspensión, lo que ocasiona un alto consumo de tiempo computacional para lograr la convergencia de acuerdo al algoritmo mostrado en la Figura (3-4), y (b) la necesidad de limitar el número de tamaños de partículas a lo largo de la trayectoria de las nubes con el fin de lograr la convergencia en tiempos de cómputo razonables.

Desde el punto de vista numérico, lo anterior implica que los términos que representan el intercambio de momentum, calor y masa entre ambas fases ( $S_p$ ) deben calcularse a lo largo de la trayectoria de las partículas en la cámara de reacción. Computacionalmente, esto último se realiza partiendo de una posición de inyección fija en la entrada del reactor (“semilla”) y resolviendo las ecuaciones de cambio para una nube de partículas idénticas (misma composición y tamaño inicial) desde su entrada al reactor y hasta que alcanza las paredes del horno o el baño fundido. Dicho cálculo se repite para cada tamaño de partícula en la alimentación ( $n_p$ ) y punto de inyección en la entrada del reactor ( $n_e$ ). La rigurosidad del acoplamiento se incrementa con el número de trayectorias calculadas y los tamaños considerados en la alimentación. Lo anterior implica que la solución de las ecuaciones de la fase sólida requiere el cálculo de ( $n_p * n_e$ ) trayectorias independientes a lo largo del reactor.

Debido a la complejidad inherente que involucra incorporar los fenómenos de cambios de tamaño al modelo computacional disponible, y a las limitaciones numéricas mencionadas anteriormente, en el presente trabajo se opta por realizar una primera aproximación por medio del acoplamiento del MFC al modelo tridimensional en una sola dirección. Dicha aproximación consiste en las siguientes etapas:

1. La simplificación del modelo cinético, incluido originalmente en el modelo tridimensional (Perez-Tello, 1999; Perez-Tello et al., 2001a), considerando la reacción global del MFC, reacción (3-3). Esta simplificación no introduce cambios significativos en los resultados

del modelo cinético y en cambio reduce considerablemente el tiempo de cómputo durante el cálculo de las trayectorias de las nubes de partículas.

2. La incorporación del fenómeno de expansión de las partículas como parte del modelo cinético en el modelo tridimensional, ya que originalmente éste considera partículas de tamaño constante.
3. Una vez realizados los cambios anteriores, se llevó a cabo la simulación del reactor industrial de acuerdo a la secuencia mostrada en la Figura (3-4). Al alcanzarse la convergencia, se almacenan en una base de datos las trayectorias (posición) y propiedades de cada nube de partículas, así como las condiciones (temperatura y composición) de la fase gaseosa a lo largo de cada trayectoria en función del tiempo.
4. La base de datos del paso anterior se lleva al MFC y se recalcula la distribución de tamaños a lo largo de la trayectoria de cada nube de partículas.

Se hace notar que el enfoque anterior implica el acoplamiento en una dirección (sólido-gas). El acoplamiento en ambas direcciones requería la realización de cambios drásticos al código fuente, cuya extensión demanda un tiempo superior al de la presente investigación.

### 3.5. Estudio Tridimensional De La Fragmentación De Partículas Sulfurosas En Un Reactor De Conversión Instantánea.

El desarrollo del Modelo de Fragmentación Composicional (MFC) y su adecuación para condiciones no isotérmicas, así como su posterior validación con datos experimentales, supone un avance significativo en el entendimiento de los fenómenos de expansión y fragmentación en el PCI. Posteriormente, su aplicación en la comprensión del origen y composición de los polvos supondrá una confirmación de su capacidad y utilidad. A la par de ello, el modelo tridimensional para el PCI (Flash3D), conlleva el uso de la dinámica de fluidos computacional para la comprensión de las distribuciones de tamaño, estequiometría y energías presentes en la oxidación de partículas sulfurosas, en su caída por la cámara de reacción. El Flash3D debe ser adecuado para incluir el fenómeno de expansión y posteriormente usarse en la determinación de los efectos de la dispersión de energía radiante entre las partículas, para que de forma similar al estudio de polvos usando el MFC, Flash3D confirme su capacidad y utilidad.

Una vez realizado el acoplamiento en una dirección del MFC y Flash3D, como se describe en la sección anterior, se procede a llevar con las simulaciones computacionales, empleando los mismos parámetros de la Tabla (3-6) de la simulación del horno industrial, y el procedimiento descrito en la Figura (3-5). Al alcanzar la convergencia en los términos fuente para las fases gaseosa y de partículas, de las bases de datos de resultados se extrae la información sobre la cinética de las partículas y la posición de estas. Se hace notar que los resultados que arroja el modelo computacional sobre la posición y trayectoria de las nubes de partículas no es explícita, por lo que se debe hacer un tratamiento numérico para separar la información para cada nube de partículas.

La Figura (4-15) muestra la malla computacional a utilizarse. La malla es de tipo estructurada e incluye la geometría del horno de conversión instantánea, el espacio sobre el baño fundido y la chimenea. Es importante mencionar que en esta figura solo se muestran los nodos estructurales de las paredes del horno. La simulación computacional hace uso de 224,232 celdas de campo de flujo, interiores en la figura, para evaluar en cada uno las distintas aproximaciones sucesivas antes mencionadas hasta llegar a la convergencia. En la parte superior se definieron seis puntos de inyección para el cálculo de las trayectorias de las nubes de partículas.

Por simplicidad, la alimentación de partículas al reactor se representó por tres tamaños: 50, 100 y 150  $\mu\text{m}$ , las cuales se introducen por los puntos de inyección, formando un total de 18 nubes. De esta forma, con la información individualizada de las nubes y los datos cinéticos que arroja el modelo, se crean las bases de datos cinético-posicionales de cada nube. Dicha información se lleva al MFC para llevar a cabo los cálculos de fragmentación de acuerdo a los parámetros de la Tabla (3-6), para determinar la distribución de tamaños a lo largo de la trayectoria de las nubes.

Para la visualización de los resultados de los cálculos se hace uso del software *Fieldview*<sup>TM</sup> (Intelligent-Light, 2013), en su versión 15.

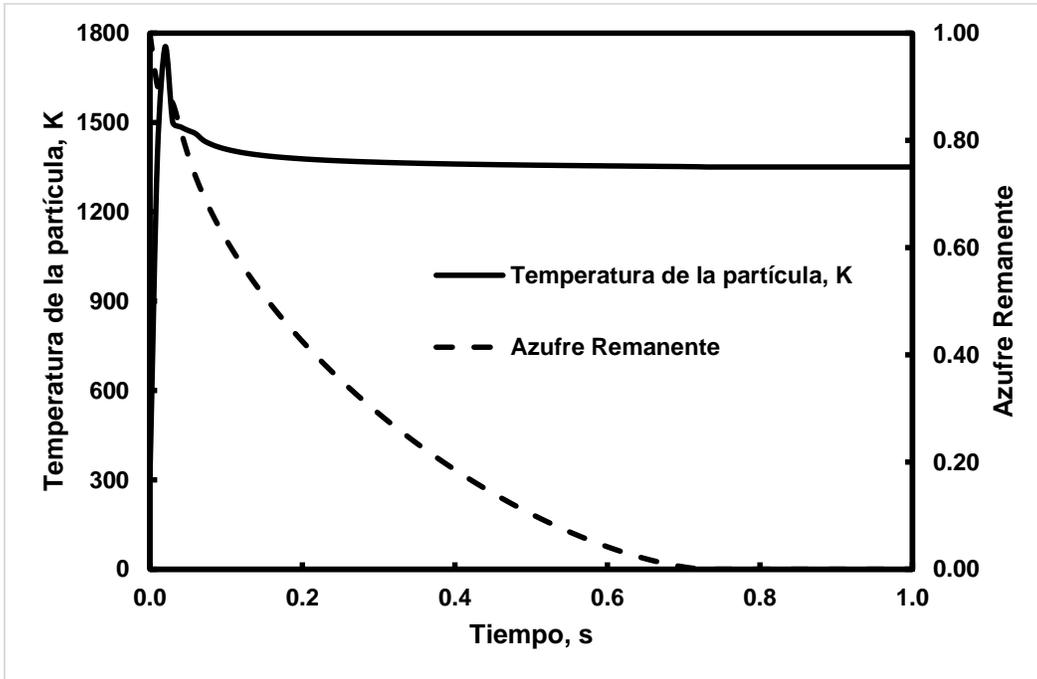
## CAPÍTULO 4

### RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En la presente sección se discuten los resultados de este trabajo en el orden en que se describió la metodología en el Capítulo 3.

La incorporación del balance de energía al Modelo de Fragmentación Composicional (MFC), descrito en la Sección 3.1, fue un avance importante hacia la mejora en la precisión del mismo; esto, debido a que los cambios físicos durante las reacciones exotérmicas heterogéneas fueron estimados a partir de los cambios en la temperatura que correspondieron a dichos estados.

La Figura (4-1) muestra un ejemplo de la evolución de la temperatura de una partícula de un tamaño inicial de 9  $\mu\text{m}$ , conforme esta desciende por la cámara de reacción del horno de conversión instantánea bajo condiciones de flujo laminar. La partícula entró a 298 K y se expuso a un gas con 70% de  $\text{O}_2$  a una temperatura constante de 1350 K. En el eje vertical derecho se presenta también a la fracción de azufre total que es consumido, lo cual es un indicador del avance de la reacción química respecto al tiempo.

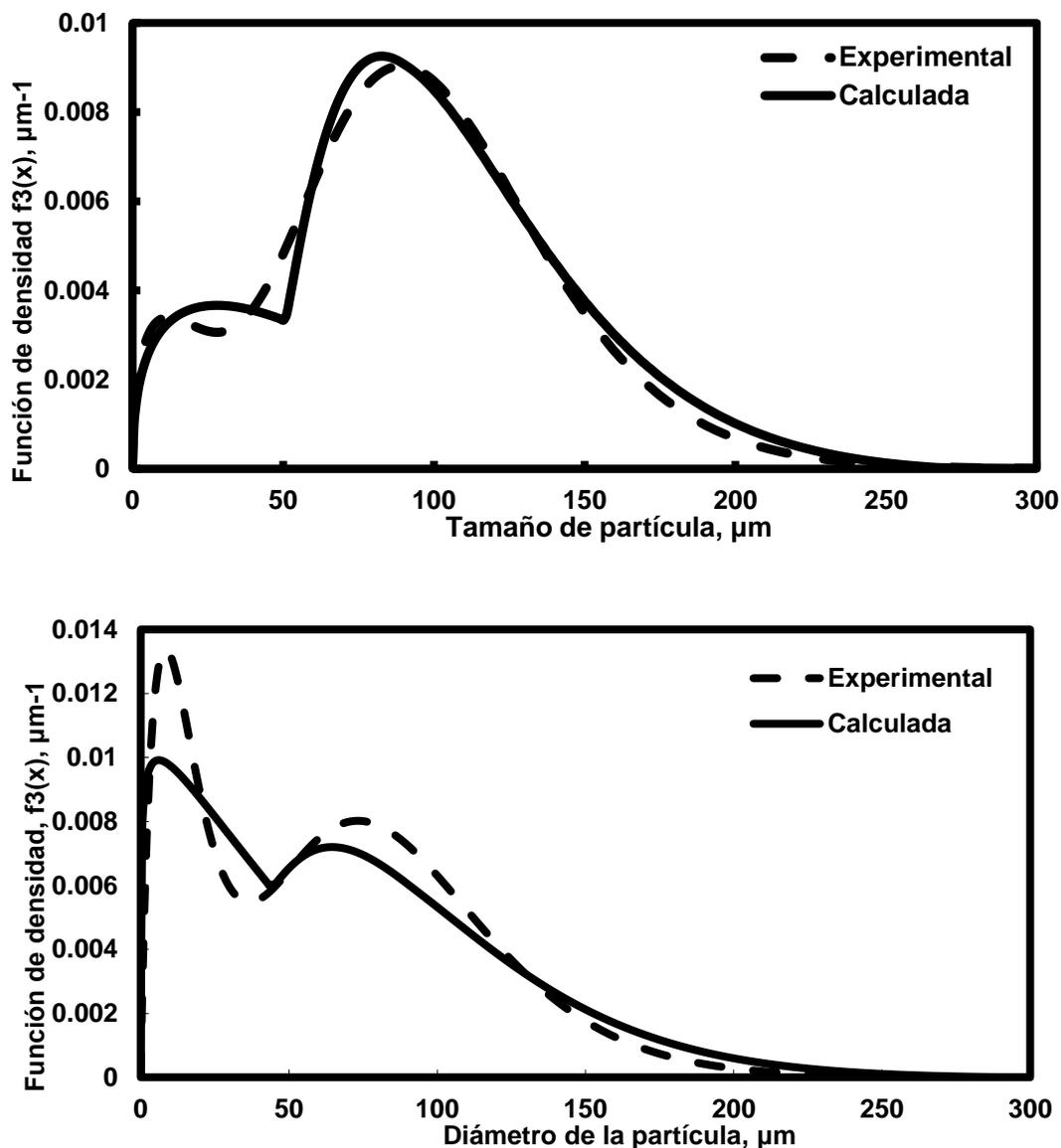


**Figura 4-1.** Evolución de la temperatura de una partícula de mata de cobre durante su oxidación en la cámara de reacción. La partícula es de un tamaño inicial de  $9 \mu\text{m}$ , con una temperatura inicial de  $298 \text{ K}$ , de  $1350 \text{ K}$  para el gas con  $70 \% \text{ O}_2$ , en condiciones de flujo laminar, a  $1 \text{ atmósfera}$  de presión.

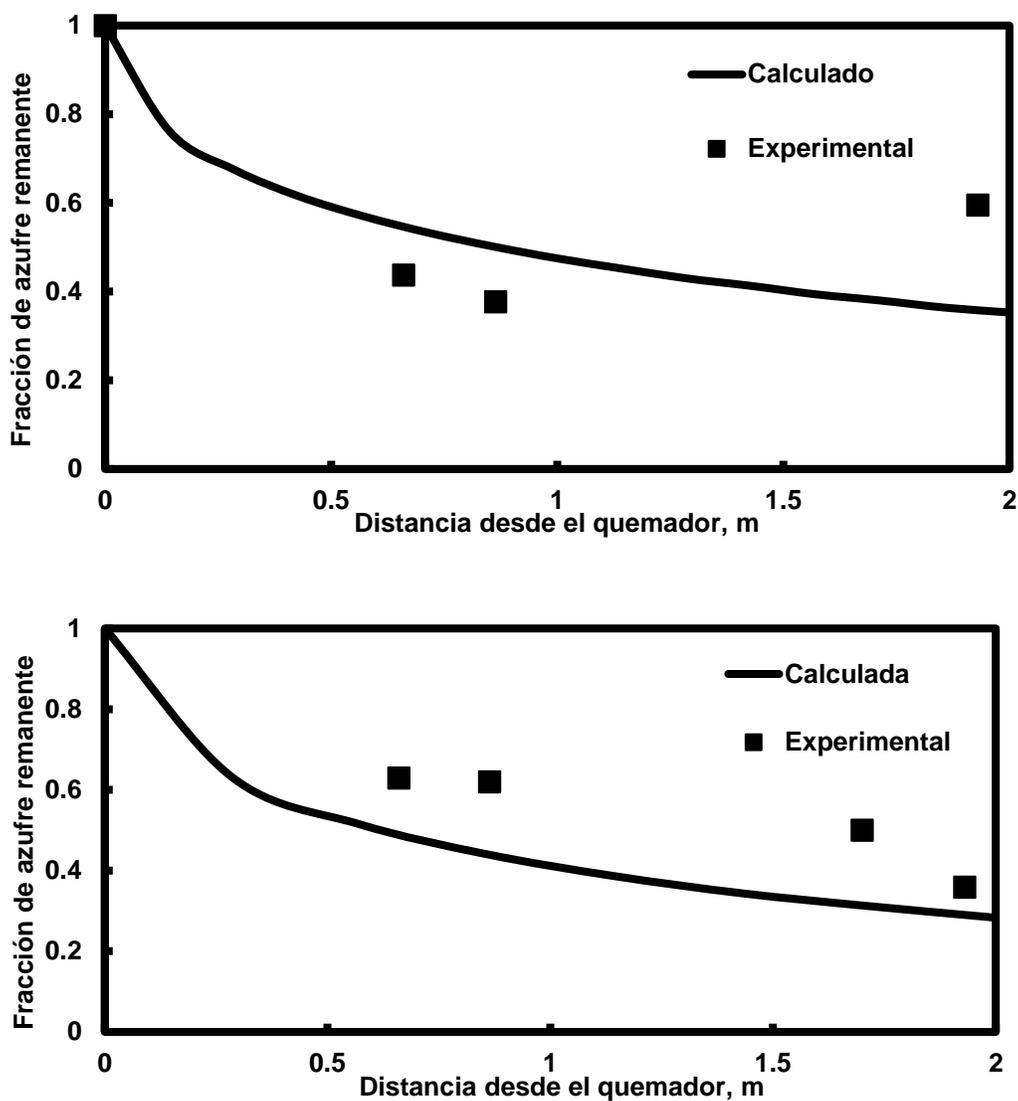
Al ponerse en contacto la partícula sólida con la corriente enriquecida en  $\text{O}_2$ , se observó como la temperatura de esta aumentó en una relación aproximadamente lineal con el tiempo, mientras la partícula permanecía sólida. Se necesitaron  $0.004$  segundos para alcanzar la temperatura de reacción incipiente de  $800 \text{ K}$ , donde la partícula empezó a formar la capa de óxidos externa. El calor generado por la oxidación, sumado a la aportación de energía radiante de las paredes del horno, produjeron el aumento de la temperatura de la partícula hasta  $1155 \text{ K}$ , que corresponde a la temperatura de fusión de la mata. En este momento el núcleo de sulfuros comenzó a fundirse; la fusión completa del núcleo llevó  $0.01$  segundos y en este momento la partícula poseía una capa sólida de óxidos y un núcleo de mata totalmente fundida. En  $0.02$  segundos la capa de óxidos se fundió a los  $1473 \text{ K}$  y continuó calentándose hasta alcanzar una temperatura máxima de  $1753 \text{ K}$  en estado completamente líquido. La ignición de la mata en el quemador llevó  $0.03$  segundos, mientras que el contenido de azufre en la partícula se terminó a los  $0.7$  segundos de iniciado el proceso. Por lo tanto, la velocidad de reacción se vio favorecida mientras la partícula se

fundía, exponiendo a los sulfuros a la corriente gaseosa, siendo posteriormente reducida conforme aparecieron las costras porosas de óxidos que llegaron a controlar la reacción al mismo tiempo que la difusión en el seno del gas. Debido a que el tiempo de residencia de la partícula en el reactor se estimó en 1.1 segundos, una vez consumido el azufre y durante el resto del tiempo de caída de la partícula, esta cedió calor a sus alrededores (gas y paredes del reactor) hasta alcanzar el equilibrio térmico con éstos, llegando una temperatura constante de 1350 K a partir de los 0.73 segundos; siendo la partícula ahora, físicamente, una gota fundida de óxidos.

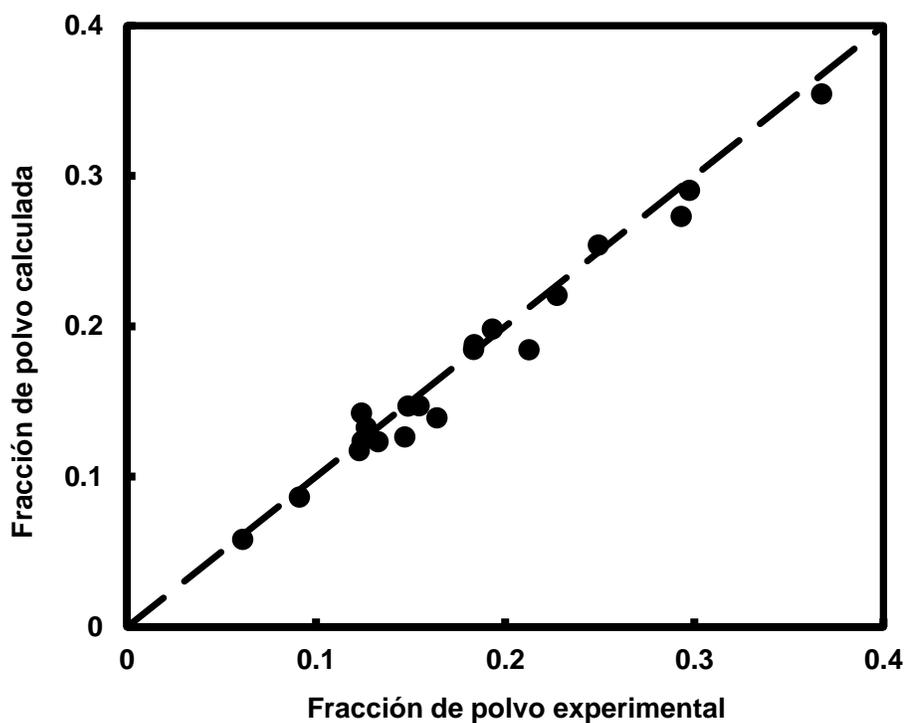
A continuación, se muestran los resultados de validación del MFC reportados por (Parra-Sánchez et al., 2014) que corresponden a los casos A y B de la Tabla (3-1). La comparación se hace entre los datos experimentales de distribución de tamaños en el receptáculo de un reactor de flujo laminar por (Perez-Tello et al., 2001b) y las predicciones realizadas en este trabajo. En la Figuras (4-2) se observan concordancias razonables entre los valores predichos y los experimentales tanto para el caso A, logrando una correlación del 98.6 %; como para el caso B, alcanzando en este caso un 93.9 % de acercamiento entre los datos experimentales y los calculados por el presente modelo.



**Figura 4-2.** Comparativo entre las distribuciones de tamaños experimental y calculada reportado por (Parra-Sánchez et al., 2014). Los datos corresponden a las corridas **(a) Experimento 17**, Condiciones Experimentales:  $<149\mu\text{m}$ , Relación Oxígeno-Mata  $0.25\text{kg O}_2/\text{kg mata}$ ,  $70\% \text{O}_2$  en Gas de Proceso; y **(b) Experimento 20**, Condiciones Experimentales:  $<149\mu\text{m}$ , Relación Oxígeno-Mata  $0.33 \text{kg O}_2/\text{kg mata}$ ,  $100\% \text{O}_2$  en Gas de Proceso;



**Figura 4-3.** Comparativo entre las distribuciones de tamaños experimental y calculada reportado por (Parra-Sánchez et al., 2014). Los datos corresponden a las corridas **(a) Experimento 17**, Condiciones Experimentales:  $<149\mu\text{m}$ , Relación Oxígeno-Mata  $0.25\text{kg O}_2 / \text{kg mata}$ ,  $70\% \text{O}_2$  en Gas de Proceso; y **(b) Experimento 20**, Condiciones Experimentales:  $<149\mu\text{m}$ , Relación Oxígeno-Mata  $0.33 \text{kg O}_2 / \text{kg mata}$ ,  $100\% \text{O}_2$  en Gas de Proceso;



**Figura 4-4** Comparativo entre los valores experimentales y calculados de las fracciones de polvo en el receptáculo, para todas las corridas de la Tabla (3-1). Tomado de (Parra-Sánchez et al., 2014)

En cuanto al contenido de azufre en las partículas, en las Figuras (4-3) se comparan los resultados computacionales con los datos experimentales de los casos A y B, Tabla (3-1). Se observa una concordancia razonable de acuerdo a la evolución del contenido de azufre conforme este se consumió en el avance de la reacción y la nube de partículas recorrió el horno. La Figura (4-4) muestra que la mayoría de los puntos están muy cercanos a la línea de 45°, lo cual indica que la cantidad de polvo calculado en el receptáculo concuerda razonablemente con los datos experimentales. Se observa además que la mayoría de los puntos están por debajo de la línea de 45°, lo cual indica que el modelo tiende a subestimar la cantidad de polvo. El error más pequeño en el cálculo de la cantidad de polvo en el receptáculo fue de un -0.3 %, y el máximo de -15 %; el promedio de error se determinó en

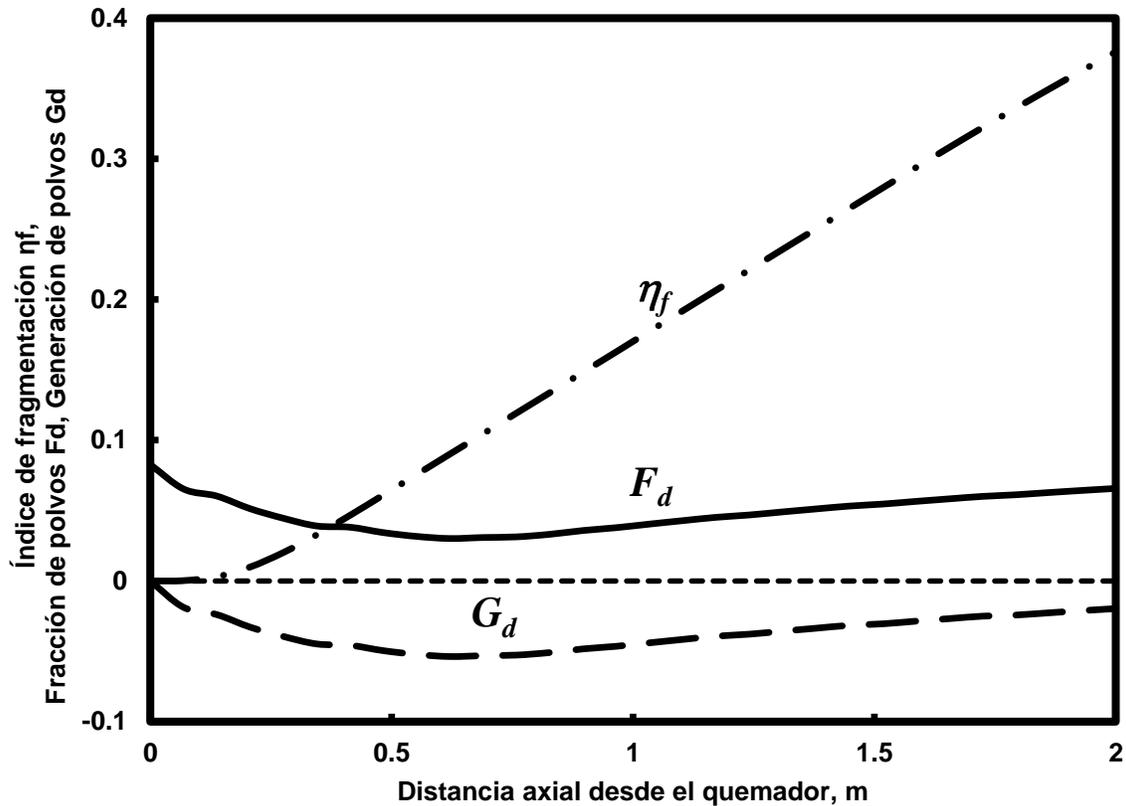
5.3%. Una discusión extensa de estos resultados se presenta en el Anexo I y en (Parra-Sánchez et al., 2014).

#### **4.1 Estudio del efecto de los fenómenos de expansión y fragmentación sobre la generación y composición química de las partículas de polvo.**

Para propósitos de la presente discusión, cualquier partícula en el rango de 0 a 20  $\mu\text{m}$  es referida como polvo. Partículas con tamaños mayores a 20  $\mu\text{m}$  son nombradas partículas grandes. En ambos casos, las definiciones no hacen distinción de la composición química ni el estado físico de las partículas.

##### **4.1.1 Análisis de las características del polvo en reactor de conversión instantánea.**

La Figura (4-5) muestra los valores del índice de fragmentación  $n_f$ , la fracción másica del polvo  $F_d$ , y la generación de polvo  $G_d$  como funciones de la longitud del reactor para el caso A, que corresponde a la corrida 17 de la Tabla (3-1). La línea punteada en el valor de cero de la ordenada se usa para separar las regiones en las que  $G_d$  pueda tomar valores positivos o negativos, tal como lo define la Ecuación (3-21). Es de notar que el índice de fragmentación  $n_f$  permanece cercano a cero dentro de los primeros 0.14 m a partir del quemador. Por lo tanto, en esta región todas las partículas que entran al reactor comenzaron a expandirse, pero no se han fragmentado. La fragmentación inicia más allá de los 0.14 m y ocurre continuamente en la población de partículas, como lo indica el índice de fragmentación, el cual aumenta de forma aproximadamente lineal con la distancia axial.



**Figura 4-5.** Perfiles del índice de fragmentación, fracción másica del polvo y generación del mismo para el caso A.

Al mismo tiempo, aproximadamente el 38% ( $n_f = 0.38$ ) de la población de partículas que alcanzó la salida del reactor presentó fragmentación, mientras que el 62% restante sólo experimentó expansión sin fragmentarse. Estos resultados pueden contradecir las ideas preconcebidas en la práctica industrial, en la cual en general se supone que la fragmentación de las partículas predomina en el reactor de conversión instantánea. Durante la operación industrial, un indeterminado número de partículas que han reaccionado pero que no alcanzaron a llegar al baño fundido son arrastradas por los gases de salida hacia la caldera y precipitador electrostático, donde estas podrían continuar oxidándose y posiblemente llegar a la fragmentación. El presente análisis se enfoca en la cámara de reacción, por lo que todas las transformaciones que ocurran fuera de esta no son consideradas.

Una característica significativa en la Figura (4-5) es el hecho de que más allá de los 0.14 m, el valor del índice de fragmentación se incrementó en su mayoría de forma lineal con la distancia axial a lo largo del reactor. El análisis de un número de simulaciones bajo una variedad de condiciones experimentales mostró que la forma de la gráfica,  $n_f$  contra distancia axial, depende fuertemente de la rapidez de fragmentación dentro de la población de partículas. Por lo tanto, a mayor rapidez de fragmentación, mayor el valor de la pendiente de  $n_f$  vs distancia y mayor la curvatura de la gráfica. La Figura (4-5) también indica que, para propósitos prácticos, una vez que la fragmentación se inició en la población de partículas, su rapidez fue mayormente uniforme. Como se discutirá más adelante, esta es una de las mayores diferencias observadas con el caso B.

Respecto al comportamiento de la fracción de polvo en la población de partículas, se observa que  $F_d$  presenta un mínimo. Se hace notar que  $F_d$  es el valor local que representa la proporción de polvos en la suspensión partículas-gas (Ecuación 3-19). Por lo tanto, no representa la cantidad neta de polvo en la población de partículas. Esta última está dada por el producto:  $F_{d,p} m_p$ , y su comportamiento puede ser diferente del mostrado por  $F_d$  debido a la reducción de la masa total de la fase sólida  $m_p$  tras la oxidación. A partir de la Ecuación (3-20) el comportamiento de la cantidad de polvo en la población  $F_{d,p} m_p$ , es el mismo que el polvo generado  $G_d$ , el cual se discute más adelante.

La Figura (4-5) también muestra que la alimentación al reactor contenía 8 % en peso de polvo ( $Fd = 0.08$ ). Conforme la población de partículas viajó a través de la cámara de reacción, el valor de  $Fd$  disminuyó a un mínimo de 3 % ( $Fd = 0.03$ ) a 0.62 m de la punta del quemador debido a la expansión, para después incrementarse hasta alcanzar el valor final de 6 % ( $Fd = 0.06$ ) en la salida del reactor. La presencia de un mínimo en el valor de  $Fd$  a lo largo del reactor puede explicarse en términos de la competencia entre la rapidez de expansión de las partículas de polvo en la alimentación y la rapidez de fragmentación de las partículas grandes en la población para producir polvo. Al entrar en la cámara de reacción, las partículas de polvo en la alimentación comienzan su oxidación y una capa de óxidos comienza a formarse alrededor del núcleo sólido de mata. Cuando el núcleo de sulfuros se funde, la oxidación continua produce burbujas de gas de dióxido de azufre que coalescen y se acumulan dentro de la partícula, aumentando la presión interna (Jokilaakso,

1991). El gas dentro de la partícula empuja a la capa de óxidos, produciendo la expansión de la partícula. Aunque la expansión ocurre también en las partículas grandes de la alimentación, éstas normalmente caen en el baño fundido y no causan los mismos problemas que las partículas de polvo.

Con respecto a la Figura (4-5), esta situación prevaleció dentro de los primeros 0.14 m, mientras la fragmentación en la población aún no era significativa, como lo demuestran los valores del índice de fragmentación. Debido a que las partículas de polvo en la alimentación que se expandieron a tamaños mayores, no fueron reemplazadas por nuevas partículas producidas por la fragmentación de partículas grandes, se presentó la disminución de la fracción de masa de polvo en la población. Tan pronto las partículas viajaron más allá de 0.14 m, la rapidez de oxidación de la población total de partículas se incrementó, así como también la rapidez de fragmentación de las partículas reaccionantes. Como resultado, la rapidez de expansión de las partículas de polvo en la alimentación que reaccionaron en esos lugares, fueron gradualmente compensadas por la rapidez de fragmentación de las partículas que produjeron fragmentos de polvo. Cuando la rapidez de ambos fenómenos se hizo igual, el valor de  $F_d$  alcanzó un mínimo. En el presente caso, tal situación ocurrió en los 0.62 m desde la punta del quemador. Más allá de ese lugar, la rapidez de fragmentación de las partículas grandes productoras de polvo superó la rapidez de expansión de las partículas de polvo en la alimentación y el valor de  $F_d$  se incrementó a lo largo del reactor hasta que la población de partículas alcanzó la salida del reactor. Como resultado, en la última parte de la longitud del reactor, el polvo fue producido localmente.

La discusión anterior indica que el reactor de conversión instantáneo puede analizarse como dos secciones en serie. En la primera sección próxima a la entrada del reactor, la rapidez de expansión de las partículas de polvo prevaleció, y la cantidad de polvo disminuyó. Más abajo del reactor, como las reacciones de oxidación fueron violentas, prevaleció la rapidez de formación de fragmentos de polvo y hubo producción neta de polvo. En el presente caso, la longitud de la sección neta de producción de polvo (1.38 m) fue mayor que la longitud de la sección neta de consumo de polvo (0.62 m). La presencia de dos secciones en el reactor de conversión instantánea no contradice el comportamiento del índice de fragmentación que se muestra en la Figura (4-5), que indica que la expansión de partículas prevaleció a lo largo del reactor ( $0 < n_f < 0.5$ ). Esto es porque  $n_f$  representa la

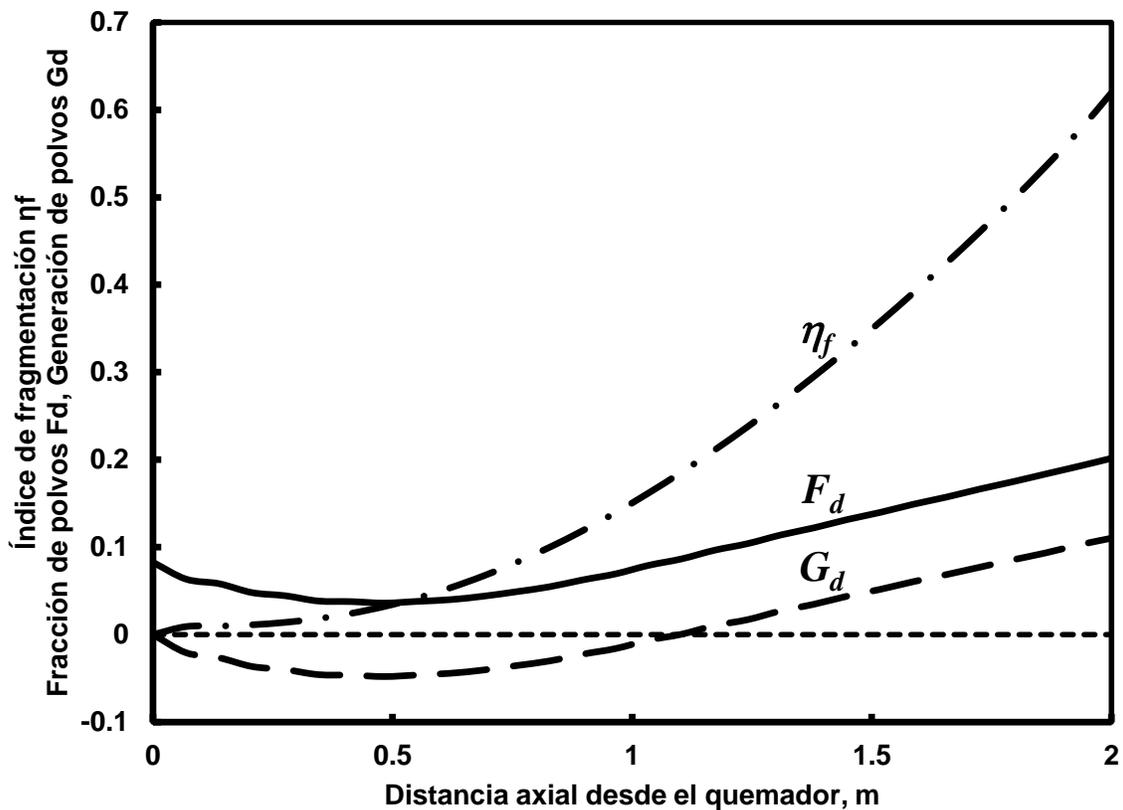
fragmentación en partículas de cualquier tamaño, no sólo del polvo, mientras que el análisis anterior se centró en el intervalo de 0 a 20  $\mu\text{m}$ . Por tanto, se concluye que el índice de fragmentación por sí solo no puede usarse para inferir el comportamiento de las partículas de polvo en el reactor de conversión instantánea.

Finalmente, la Figura (4-5) muestra los valores de la generación neta de polvo  $G_d$  calculada mediante la Ecuación (3-21) en función de la distancia axial. La forma de esta grafica es similar a la de  $F_d$  discutida previamente. Esto era de esperarse porque la Ecuación (3-21) se reduce a la Ecuación (3-20) cuando la masa de la población de la partícula no cambia de forma significativa a lo largo del reactor, es decir,  $m_p \approx m_f$ . Este es de hecho el caso de la Reacción (3-5), que disminuye el peso de una partícula reaccionante a 90 % de su valor inicial. Debido a que las partículas en la población no reaccionaron uniformemente, y algunas de ellas experimentaron fragmentación antes de que se oxidaran por completo, en el presente caso, la suposición:  $m_p \approx m_f$  es una aproximación razonable a la situación real en el reactor.

La Figura (4-5) muestra que  $G_d$  tomó valores negativos a lo largo del reactor, con un mínimo de  $G_d = -0.5$ . Por lo tanto, el efecto neto del reactor de conversión instantáneo fue reducir la cantidad de polvo en la población. Debido a que en la salida del reactor  $G_d = -0.02$ , la reducción en la cantidad de polvo representa el 2 % de la alimentación sólida. Esto puede parecer contradictorio por la presencia de una sección de producción de polvo más allá de 0.62 m, como fue discutido anteriormente. Mientras que en la sección de generación de polvo este fue producido por la fragmentación de las partículas grandes, la rapidez a la que se produjo dicho polvo no fue suficiente para superar la cantidad de polvo que entró al reactor. Como resultado, aún en la sección de generación de polvo del reactor, la cantidad de polvo en la población de partículas fue menor a la cantidad de polvo en la alimentación. En este punto deben subrayarse las diferencias en el significado físico de los valores de  $G_d$  y  $F_d$ . Mientras que  $G_d$  es un indicador global de la generación de polvo por unidad de masa de alimentación sólida hasta una determinada posición en el reactor,  $F_d$  indica la proporción local de polvo en la población de partículas.

La discusión anterior puede extenderse a los resultados para el caso B que se muestran en la Figura (4-6). En contraste con el comportamiento mostrado en la Figura (4-5), en el caso

B el índice de fragmentación tuvo valores mayores a cero inmediatamente después de la entrada al reactor, aumentado gradualmente dentro de los primeros 0.35 m y aumentado más rápidamente en forma no lineal hasta el valor final de  $n_f = 0.62$  a la salida del reactor. Por lo tanto, la población de partículas comenzó la fragmentación inmediatamente al entrar al reactor, y conforme viajaba su rapidez de fragmentación se incrementó. Debido a que la forma de  $n_f$  se relaciona con la rapidez de oxidación, en el caso B la Reacción (3-5) fue más violenta que en el caso A. Como resultado, a la salida del reactor el 62 % de la alimentación sólida experimentó fragmentación. Los grados de expansión y fragmentación fueron iguales ( $n_f = 0.5$ ) a 1.8 m desde la entrada superior del horno.



**Figura 4-6.** Perfiles del índice de fragmentación, fracción másica del polvo y generación del mismo para el caso B.

Por lo tanto, la expansión de partículas prevaleció dentro de los primeros 1.8 m, mientras que la fragmentación lo hizo dentro de los últimos 0.2 m. Se hace notar que las condiciones

de oxidación establecidas para el caso B son poco probables de utilizar en la práctica industrial. La Figura (4-6) muestra que, a pesar de las condiciones tan extremas, la expansión de la partícula prevaleció sobre el 90% de la longitud del reactor.

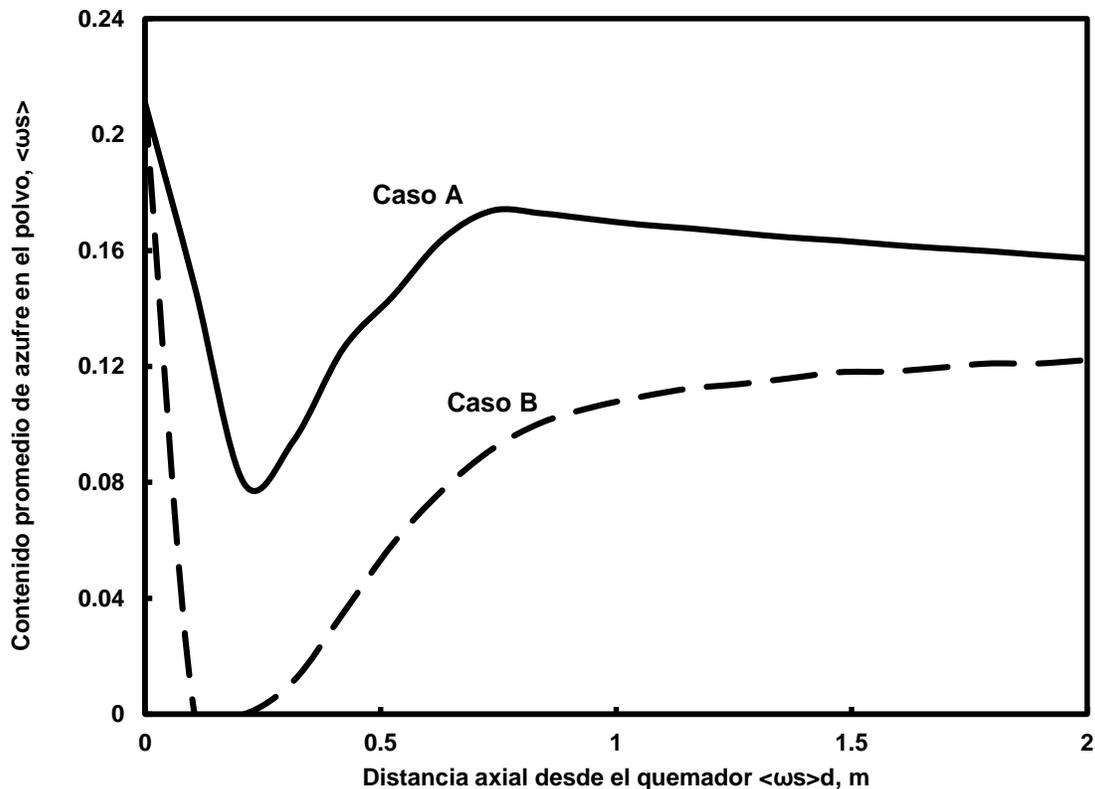
Acerca del comportamiento de  $F_d$ , la Figura (4-6) muestra una tendencia similar a la Figura (4-5): Un mínimo ( $F_d = 0.04$ ) se observa a 0.48 m desde la entrada al reactor, después de lo cual el valor de  $F_d$  se incrementó de manera constante hasta el valor final  $F_d = 0.2$  en la salida del reactor. Este resultado en particular difiere de forma notable del caso A, el cual mostró la tendencia opuesta. En el caso B, el polvo fue consumido dentro de los primeros 0.48 m, mientras que el polvo fue producido dentro de los últimos 1.52 m. Cabe señalar que este último resultado fue de similar magnitud que el caso A (1.38 m) a pesar de que las condiciones oxidantes fueron diferentes. Por lo tanto, la longitud de la sección de producción de polvo fue poco sensible a las condiciones de operación. En contraste, la Figura (4-6) muestra que tanto  $F_d$  como  $G_d$  fueron fuertemente dependientes de las condiciones de operación. La forma general de  $G_d$  en la Figura (4-5) es similar a la de  $F_d$  con un mínimo de  $G_d = 0.05$  a 0.48 m. Una característica importante en este gráfico es que  $G_d$  pasó de valores negativos a positivos a 1.1 m de la entrada del reactor. Por lo tanto, dentro de los primeros 1.1 m hubo un consumo neto de polvo, mientras que más abajo, se presentó la generación neta de polvo en el reactor. A la salida del reactor, la generación de polvo representó 11 % de la alimentación sólida.

Aunque los valores de  $F_d$  y  $G_d$  en los casos A y B mostraron un mínimo a lo largo de la longitud del reactor, tal comportamiento no fue una regla en general. Un resumen de los resultados relevantes de las Figuras (4-5) y (4-6) se muestran en la Tabla (4-1), en la que la última fila muestra la evaluación global basada en los valores de  $n_f$  y  $G_d$  en la salida del reactor. Según estos criterios, el caso A se puede clasificar como una operación de expansión predominante con consumo neto de polvo. Del mismo modo, el caso B se trata de una operación de fragmentación predominante, con generación neta de polvo.

Tabla 4-1. Resumen de resultados de los casos A y B.

Característica	Ubicación/Condición	Caso A	Caso B
$\eta_f$	Salida del reactor	0.38	0.62
$F_d$	Salida del reactor	0.06	0.2
$G_d$	Salida del reactor	-0.02	0.11
$\min(F_d)$	Mínimo	0.03	0.04
$\min(G_d)$	Mínimo	-0.05	-0.05
Longitud de predominancia de expansión, m	$0 \leq \eta_f \leq 0.5$	2	1.8
Longitud de predominancia de fragmentación, m	$0.5 \leq \eta_f \leq 1$	0	0.2
Longitud de sección de consumo de polvo, m	$F_f > F_d > \min(F_d)$	0.62	0.48
Longitud de sección de producción de polvo, m	$\min(F_d) < F_d \leq F_d(\text{Salida})$	1.38	1.52
Longitud de consumo neto de polvo, m	$G_d < 0$	2	1.1
Longitud de generación neta de polvo, m	$G_d > 0$	0	0.9
Evaluación global	Salida del reactor	Expansión predominante y Consumo neto de polvo	Fragmentación predominante y Generación neta de polvo

Un tema relevante sobre el funcionamiento de un reactor de conversión instantánea es determinar la composición química del polvo. La Figura (4-6) muestra el contenido de azufre promedio en partículas de polvo a lo largo del reactor para los casos A y B. Dichos valores se calcularon con la Ecuación (3-23). Debido a que la composición química de las partículas iniciales fue uniforme, el contenido promedio de azufre en el polvo es igual a la de la alimentación de la entrada del reactor. Al entrar a la cámara de reacción, la población de partículas inició la oxidación, produciendo un mínimo en la concentración de azufre dentro de los primeros 0.21 m.



**Figura 4-7.** Perfiles del contenido promedio de azufre en las partículas de polvo para los casos A y B.

De acuerdo a la Tabla (4-1), en estos lugares la expansión de partículas fue el fenómeno predominante en la población en ambos casos, y la fragmentación fue incipiente. Por lo

tanto, en los primeros 0.21 m, el polvo consistió principalmente de partículas en la alimentación que experimentaron oxidación y expansión. Debido a su alta reactividad, el contenido promedio de azufre en el polvo disminuyó drásticamente al entrar en la cámara de reacción. En el caso A, el valor de  $\langle \omega_s \rangle_d$  disminuyó a 8 %, mientras que en el caso B todo el azufre en el polvo alimentado fue eliminado cuando las partículas alcanzaron 0.1 m debajo del quemador. Por lo tanto, el valor de  $\langle \omega_s \rangle_d$  fue cero en el intervalo de 0.1 m a 0.21 m. En estos lugares, no hubo producción significativa de polvo como resultado de la fragmentación.

El contenido promedio de azufre en el polvo en el mínimo que se muestra en la Figura (4-7) es un resultado relevante. En el caso A, este valor es diferente de cero, lo que implica que una parte de las partículas de polvo en estos lugares continuó reaccionando posteriormente. Como resultado, los cambios en  $\langle \omega_s \rangle_d$  observados más abajo del reactor pueden ser atribuidos a dos factores: (1) la oxidación y expansión de las partículas reaccionantes de polvo, y (2) la fragmentación de las partículas grandes para producir fragmentos de polvo. En cambio, en el caso B todas las partículas de polvo en el mínimo que se muestra en la Figura (4-6) fueron totalmente oxidadas. Además, los cambios en  $\langle \omega_s \rangle_d$  observados más abajo en el reactor se pueden atribuir únicamente a la fragmentación de las partículas grandes para producir polvo.

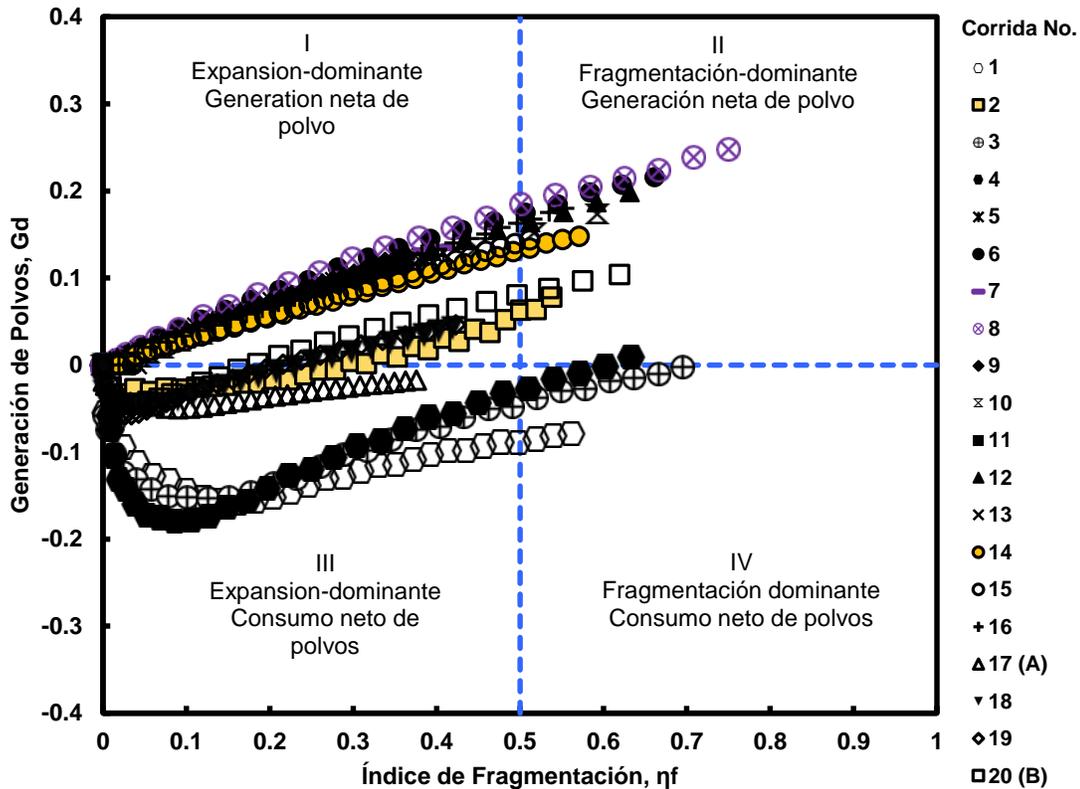
Más allá de los 0.21 m bajo la entrada del quemador, el valor de  $\langle \omega_s \rangle_d$  se incrementó rápidamente en ambos casos hasta cerca de los 0.75 m. En base a la anterior discusión, la causa principal de esta tendencia fue la fragmentación de las partículas grandes y parcialmente reaccionadas que contribuyeron a la masa del polvo en la población. Debido a que la composición química de las partículas madre y las partículas hijas se supusieron iguales, los fragmentos de polvo de partículas parcialmente reaccionadas aumentaron la cantidad de azufre en el polvo. Esta hipótesis es consistente con las Figuras (4-5) y (4-6), que mostraron que el índice de fragmentación en ambas corridas aumentó rápidamente en el rango de 0.21 m a 0.75 m. Cabe señalar que más abajo del reactor, el comportamiento de los casos A y B difirió significativamente. En el primero, el contenido de azufre promedio  $\langle \omega_s \rangle_d$  disminuyó continuamente hasta la salida del reactor, mientras que en el último se observó la tendencia opuesta. Esta discrepancia se atribuye al origen de los fragmentos de polvo en cada caso, dependiendo de las condiciones de operación.

Se hace notar que la forma de los perfiles del contenido promedio de azufre en la Figura (4-7) fue similar en todas las corridas de la Tabla (4-1). Esto indica que la discusión anterior es válida para cualquier conjunto de condiciones de operación en el reactor de conversión instantánea. Por lo tanto, dichos resultados pueden generalizarse y establecen que, a una corta distancia de la entrada al reactor, el polvo consiste principalmente de partículas de la alimentación que experimentaron oxidación y expansión, mientras que más abajo, el polvo consiste principalmente de fragmentos de partículas parcialmente reaccionadas.

#### 4.1.2 Tendencias generales en las características del polvo.

Con respecto a la discusión anterior de la Figura (4-6), es posible esperar que cada vez que la expansión prevalece en la población de partículas ( $0 < n_f < 0.5$ ), se produce un consumo neto de polvo ( $G_d < 0$ ). Sin embargo, tal hipótesis resultó ser falsa. Un ejemplo de lo anterior se muestra en la Figura (4-6) en el intervalo de 1.1 a 1.8 m. En esta sección del reactor, la expansión de las partículas prevaleció ( $0.18 < n_f < 0.5$ ), y sin embargo ocurrió una generación neta de polvo ( $0 < G_d < 0.09$ ). Por lo tanto, el predominio de la expansión de partículas en la población completa no garantiza un consumo neto de polvo en el reactor. Para aclarar este punto, los valores de  $G_d$  para todas las corridas que se muestran en la Tabla (4-1) se graficaron contra  $n_f$  en la Figura (4-8). Aquí la ubicación física en el reactor está implícita en los valores de  $n_f$  y  $G_d$ . Dado que el índice de fragmentación  $n_f$  en todas las corridas aumentó conforme la población de partículas viajó a través de la cámara de reacción, la curva correspondiente a cada corrida se puede leer de izquierda a derecha para mostrar la evolución simultánea de  $n_f$  y  $G_d$  a lo largo del reactor. Partiendo de los criterios presentados en la Tabla (4-3), los valores de  $n_f$  y  $G_d$  se establecieron en cuatro cuadrantes, que se numeran como **I** a **IV**. Por tanto, la Figura (4-8) muestra un mapa que resume el papel de los fenómenos de expansión y fragmentación  $n_f$  que ocurren en toda la población, en relación con la generación neta de polvo en el reactor  $G_d$ . Se observa que los valores del par  $(n_f, G_d)$  se produjeron en todos los cuadrantes. Por lo tanto, la generación neta de polvo ocurrió tanto en condiciones dominadas por la expansión (**I**) como

por la fragmentación (II). Asimismo, el consumo neto de polvo ocurrió bajo condiciones dominadas por la fragmentación (IV) y expansión (III).



**Figura 4-8.** Mapa de la generación de polvos respecto al índice de fragmentación para todas las corridas de la Tabla (4-1).

En general, el número de puntos en cada cuadrante siguió el orden: I (50 %) > III (42 %) > II (6 %) > IV (2 %). Debido a que el 92 % de los puntos se localizaron en los cuadrantes I y III, la expansión de las partículas prevaleció en todas las corridas a lo largo de una porción significativa del reactor. Además, en 7 de 20 corridas (5, 9, 11, 13 y 17 a 19), la expansión todavía prevalecía cuando las partículas llegaron a la salida del reactor. Por el contrario, en 13 de 20 corridas (1 a 4, 6 y 8, 10, 12, 14 a 16 y 20), la fragmentación prevaleció en las partículas a la salida del reactor.

Una interpretación alternativa de la Figura (4-8) se puede hacer sumando el número de puntos en los cuadrantes I y II, así como en los cuadrantes III y IV. Esto da un 56 % y 44 %, respectivamente. Estos valores indican que, independientemente del fenómeno predominante en toda la población de partículas, el número de puntos donde el polvo se generó en el reactor (56 %) fue ligeramente mayor que aquellos en los cuales el polvo se consumió (44 %). Esto confirmó que el valor de  $G_d$  fue insensible a la magnitud del índice de fragmentación  $n_f$ . Otro resultado relevante se refiere a la evaluación global de la operación de conversión instantánea, basados en los valores de  $n_f$  y  $G_d$  en la salida del reactor. La Figura (4-8) muestra que estos valores no representan necesariamente la historia seguida por la población de partículas a lo largo del reactor.

Sobre el efecto del tamaño de partícula en la alimentación en los valores de  $n_f$  y  $G_d$ , la Figura (4-8) muestra tres grupos de corridas. El primer grupo es el más numeroso e incluye las corridas 5 a 16, es decir, los experimentos llevados a cabo con las fracciones de tamaño en la alimentación de 37 a 150  $\mu\text{m}$ . Este grupo presenta las siguientes características: (a) todos los valores de  $G_d$  son positivos; por tanto, la generación neta de polvo ocurrió a lo largo de todo el reactor; (b) los valores de  $G_d$  aumentaron de manera aproximadamente lineal conforme  $n_f$  aumentó, y (c) la trayectoria de la población de partículas inició en el cuadrante I y se desplazó hacia el cuadrante II a lo largo del reactor.

El segundo grupo incluye las corridas 2, y 18 a 20. Esto corresponde a uno de los experimentos realizados con el tamaño más fino en la alimentación, < 37  $\mu\text{m}$ , así como tres de los cuatro experimentos se hicieron con material sin cribar. Este grupo muestra las siguientes características: (a) los valores de  $G_d$  cambiaron de negativos a positivos a lo largo del reactor, es decir, el consumo neto de polvo fue seguido por la generación neta del mismo; (b) los valores de  $G_d$  mostraron un mínimo negativo en un valor de  $n_f$  en el rango:  $0 < n_f < 0.05$ ; y (c) la trayectoria de la población de partículas inició en el cuadrante III y se trasladó a los cuadrantes I y II a lo largo del reactor.

Finalmente, el tercer grupo se compone de las corridas 1, 3 y 4 y corresponde a tres experimentos llevados a cabo con la fracción de tamaño más pequeña en la alimentación, < 37  $\mu\text{m}$ . Este grupo muestra las siguientes características: (a) los valores de  $G_d$  son en su mayoría negativos, por tanto, el consumo neto de polvo ocurrió a lo largo de todo el reactor;

(b) los valores de  $G_d$  mostraron un mínimo negativo en un valor de  $n_f$  dentro del rango  $0.05 < n_f < 0.2$ ; y (c) la trayectoria de la población de partículas inició en el cuadrante **III** y se trasladó hacia el cuadrante **IV** asintóticamente a lo largo del reactor.

Cabe señalar que el primero y tercer grupo representan los casos extremos en la Figura (4-8), mientras que el segundo grupo muestra un comportamiento que combina características de los otros dos. En general, en el primer grupo, la generación neta de polvo ocurrió a lo largo de todo el reactor. En cambio, en el tercer grupo, fue el consumo neto de polvo el que ocurrió a lo largo de todo el reactor. Por último, en el segundo grupo la longitud del reactor está dividida en una sección de consumo neto de polvo seguido por una sección de generación neta del mismo. Se observa que la corrida 17 (caso A) no pertenece a ningún grupo, ya que parece ser un caso intermedio entre los grupos segundo y tercero. Este fue el único caso en que la trayectoria de la población de partículas permaneció dentro de un solo cuadrante a lo largo del reactor, el cuadrante **III**. Como resultado, en este caso los valores de  $n_f$  y  $G_d$  en la salida del reactor, representan la historia seguida por la población de partículas.

La Figura (4-8) indica que el comportamiento del material sin cribar es más complejo que el de las fracciones cribadas y muestra características del primer y segundo grupos. Así, en principio, el comportamiento de la alimentación típica al reactor puede obtenerse de las de las fracciones individuales que componen la población de partículas. Con respecto a los valores numéricos de  $G_d$ , una característica relevante en la Figura (4-8) se refiere al comportamiento de la fracción más fina en la alimentación:  $< 37 \mu\text{m}$  (corridas 1 a 4), que difirieron de forma significativa del comportamiento de las otras fracciones cribadas (corridas 5 a 16). Mientras que en las corridas 1 a 4 los valores de  $G_d$  fueron en su mayoría negativos, en las corridas 5 a 16 fueron todos positivos. Desde un punto de vista numérico, estos resultados pueden atribuirse a los valores del parámetro  $f_{nf}$  en las corridas 1 a 4, que fueron sustancialmente diferentes de los otros valores mostrados en la Tabla (4-1). Su interpretación física es que las partículas finas en la alimentación ( $< 37 \mu\text{m}$ ) presentaron una mayor resistencia a la fragmentación que otras fracciones de tamaño. Como resultado, aun cuando la fragmentación se inició rápidamente en algunas de las partículas, ésta no se extendió en la población, y una gran masa de las partículas continuó expandiéndose en el reactor. Eventualmente, estas partículas alcanzaron la salida del reactor con un tamaño

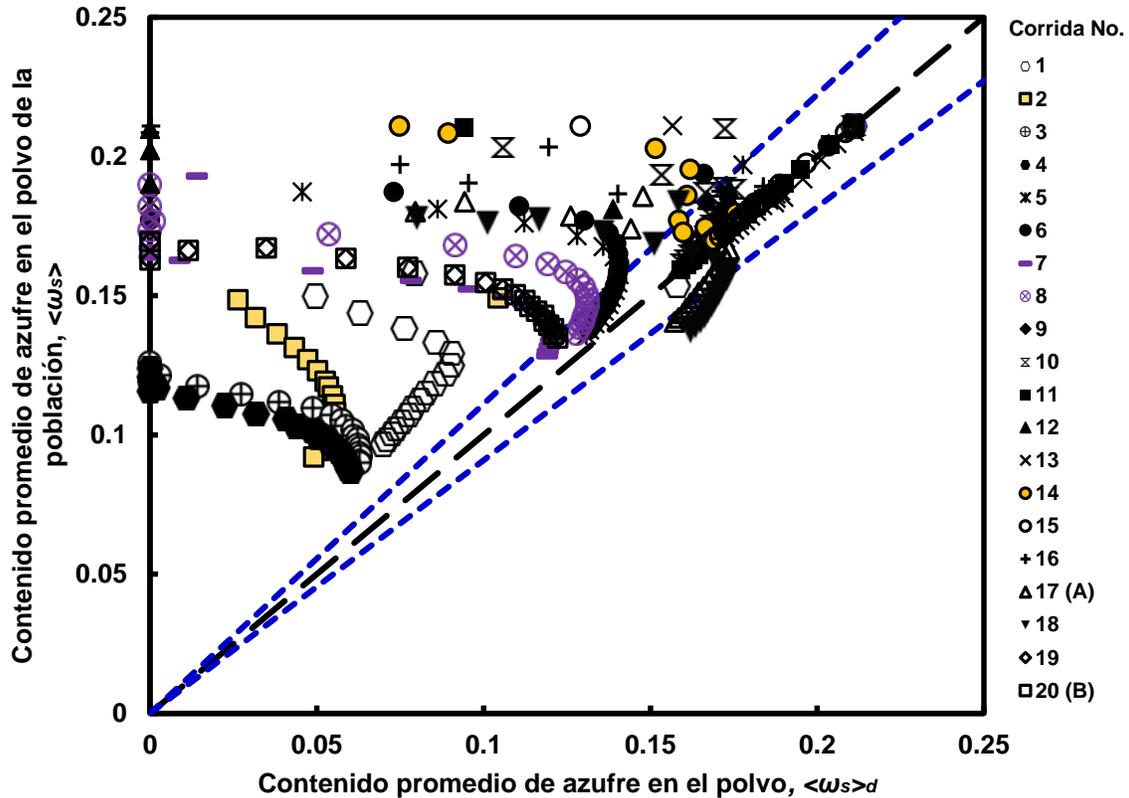
significativamente más grande que su tamaño inicial. En contraste, las partículas en la alimentación con tamaños mayores a  $37\ \mu\text{m}$  ofrecieron una menor resistencia a la fragmentación. Además, una vez que inició la fragmentación, ésta se extendió en la población con una importante generación de polvo.

Recordando los problemas operativos del PCI respecto a la generación de polvos como algo indeseable, de acuerdo al análisis de los tres grupos de corridas formados en la figura (4-8), las condiciones deseables para minimizar la generación de los polvos son aquellas que corresponden a las corridas que están por debajo de la línea central, es decir, que presentan consumo neto de polvos, como fueron las corridas 1, 3, 4 y 17. De acuerdo a la Tabla (3-1) y observando la figura (4-8), las corridas 1,3 y 4 corresponden a tamaños menores a  $37\ \mu\text{m}$ , pero conforme se eleva la concentración de oxígeno, ya sea en la relación oxígeno-mata o en el gas de proceso, la tendencia es hacia la generación de polvos. Esto se aprecia en las líneas de las corridas 3 y 4, las cuales tienen en general más oxígeno presente. Es de notarse como las corridas 1 y 17 son las únicas que nunca presentaron generación neta de polvos y así mismo son las que presentan la menor proporción de oxígeno en cada uno de sus grupos.

Los resultados anteriores concuerdan con observaciones experimentales sobre la morfología y distribución de tamaños de partículas en el receptáculo de un reactor a nivel laboratorio (Perez-Tello, 1999; Perez-Tello et al., 2001a; Riihilahti, 1998) las cuales mostraron que en general las partículas pequeñas en la alimentación tendieron a incrementar su tamaño, mientras que las partículas grandes se fragmentaron al oxidarse. Debido a que los mecanismos que controlan la expansión y fragmentación de las partículas aún son inciertos, la causa de tal comportamiento no es clara. Una posible explicación surge del hecho de que las partículas grandes contienen más azufre que las pequeñas. Según (Jokilaakso, 1991), cuando el núcleo de sulfuros está completamente fundido, la oxidación continua produce burbujas de dióxido de azufre que coalescen y acumulan dentro de la partícula. Esto aumenta la presión interna hasta que supera la resistencia mecánica de la capa de óxidos que rodea al núcleo de la partícula, y se produce la fragmentación. Bajo condiciones oxidantes similares, es posible que las partículas grandes acumulen más dióxido de azufre que las partículas pequeñas. Como resultado, la presión interna necesaria para romper la capa de óxidos se alcanza rápidamente, en comparación con las partículas

pequeñas. Según esta hipótesis, la alta resistencia a la fragmentación de las partículas pequeñas puede atribuirse a una evolución lenta de su presión interna, lo que retrasa la ruptura de la capa de óxidos. Otra posible explicación se relaciona con el espesor de la capa de óxido que rodea a las partículas reaccionantes. Cuando dos partículas esféricas con diferente tamaño reaccionan bajo idénticas condiciones oxidantes, la capa de óxido formada alrededor de la partícula pequeña es más gruesa que aquella que se formó en una partícula grande, siempre que el tiempo de reacción sea el mismo. Consecuentemente, se espera que las partículas pequeñas muestren una mayor resistencia a la fragmentación que las partículas grandes, simplemente desde un punto de vista mecánico.

Por otro lado, las observaciones experimentales (Perez-Tello, 1999; Perez-Tello et al., 2001a; Riihilahti, 1998) y los resultados mostrados en la Figura (4-8) sugieren la existencia de un valor crítico de tamaño de partícula, por debajo del cual el comportamiento de las partículas finas difiere considerablemente de la de otras fracciones de tamaño en la alimentación. En el presente caso, el tamaño crítico fue aproximadamente 37  $\mu\text{m}$ . Un estudio reciente realizado en este laboratorio por (Pérez-Tello et al., 2018) mostró resultados similares para las partículas de concentrado de cobre oxidados bajo condiciones de suspensión. Por lo tanto, esta puede ser una característica común en la oxidación de una variedad de partículas de sulfuros. Aunque se desconoce la causa de tal comportamiento, éste es probablemente el resultado de las interacciones mecánicas entre los fluidos dentro de la partícula y la capa de óxidos que mantiene la integridad de la partícula.



**Figura 4-9.** Correlación del contenido promedio de azufre en la población respecto al contenido promedio en las partículas de polvo para todas las corridas de la Tabla (4-1). El área encerrada por las líneas punteadas azules representa a las ubicaciones donde la diferencia entre los valores de  $\langle \omega_s \rangle$  y  $\langle \omega_s \rangle_d$  es menos del 10 % del valor de  $\langle \omega_s \rangle$ .

Un problema práctico en las operaciones de conversión y fusión instantánea es la estimación de la cantidad de polvo generado en el reactor. Mientras que el MFC es capaz de calcular el valor de  $G_d$  a partir de la ecuación (3-21) en cualquier lugar a lo largo del reactor, sería útil encontrar una medición experimental capaz de proporcionar una buena estimación de esta cantidad sin realizar los extensos cálculos del presente modelo. De acuerdo con la estequiometría de la Reacción (3-3), la oxidación completa de la alimentación sólida conduce a  $m_p \approx 0.9m_f$ . Debido a que la población de partículas incluye partículas parcial y completamente oxidadas, la suposición:  $\Delta F_d \approx G_d$  es una aproximación razonable del proceso real. Esta relación fue confirmada por los cálculos, los cuales no se presentan por brevedad.

Una discusión final acerca de la medición experimental de la composición química promedio de las partículas de polvo mostrada en la Figura (4-7). Esta puede ser una tarea difícil ya que requiere de un cuidadoso cribado de la población de partículas antes de su análisis químico, o bien el uso de tecnología sofisticada, como una unidad QEMSCAN, (Balladares E., 2014; M., 2008). En contraste, el análisis químico de toda la población puede fácilmente obtenerse por técnicas convencionales de espectroscopía de absorción atómica. Desde una perspectiva práctica, es de interés investigar si el contenido de azufre promedio de la población de partículas  $\langle \omega_s \rangle$  puede usarse para representar el contenido de azufre promedio en el polvo  $\langle \omega_s \rangle_d$ . Para responder a esta pregunta, la Figura (4-9) muestra los valores de  $\langle \omega_s \rangle$  contra  $\langle \omega_s \rangle_d$  calculados a partir de las Ecuaciones (3-24) y (3-23), respectivamente, para todas las corridas que se muestran en la Tabla (4-1). La evolución simultánea de  $\langle \omega_s \rangle_d$  y  $\langle \omega_s \rangle$  se puede obtener siguiendo los símbolos de izquierda a derecha. La diagonal punteada representa los lugares donde  $\langle \omega_s \rangle_d$  y  $\langle \omega_s \rangle$  son iguales.

Teniendo en cuenta las incertidumbres experimentales que son típicamente asociadas con el muestreo y análisis químico en este tipo de sistema, también se muestran dos líneas discontinuas azules. La zona delimitada por las líneas azules representa los lugares donde la diferencia entre los valores de  $\langle \omega_s \rangle$  y  $\langle \omega_s \rangle_d$  fue menor al 10 % del valor de  $\langle \omega_s \rangle$ . Dentro de esta área, la hipótesis  $\langle \omega_s \rangle = \langle \omega_s \rangle_d$  es válida para fines prácticos. La Figura (4-9) muestra que la gran mayoría de los puntos están a la izquierda de la diagonal discontinua. Por lo tanto, en la mayoría de las corridas, la cantidad de azufre en la población  $\langle \omega_s \rangle$  fue mayor que en la del polvo  $\langle \omega_s \rangle_d$ . Esto implica que, en promedio, el polvo se compone de partículas que experimentaron una mayor oxidación que la población completa. La excepción a esta tendencia son las corridas 17 y 18, en las cuales los valores de  $\langle \omega_s \rangle$  fueron menores a  $\langle \omega_s \rangle_d$  a lo largo de la segunda mitad inferior del reactor. Por lo tanto, en esas corridas, el polvo mayormente consistió de partículas que experimentaron una oxidación menos extensa que la población completa.

Como era de esperar, las mayores discrepancias entre los valores de  $\langle \omega_s \rangle$  y  $\langle \omega_s \rangle_d$  corresponden a los lugares a corta distancia de la entrada del quemador, en el que el contenido promedio de azufre en el polvo  $\langle \omega_s \rangle_d$  fue cercano a cero. La causa de tal comportamiento fue explicada en la discusión de la Figura (4-7). Tales puntos de datos se encuentran sobre y dentro de las proximidades del eje vertical en la Figura (4-9). En general,

cuando la población de partículas viajó a través de la cámara de reacción, los valores de  $\langle \omega_s \rangle$  y de  $\langle \omega_s \rangle_d$  se acercaron entre sí. Con la excepción de las corridas 1 a 4, a la salida del reactor la mayoría de los datos se ubicaron dentro de la zona delimitada por las líneas punteadas azules. Por lo tanto, la Figura (4-9) indica que, para fines prácticos, la composición de la población de partículas a la salida del reactor puede ser considerada para representar el polvo que lo acompaña y viceversa.

## **4.2 Estudio del Efecto de la Dispersión de Energía Radiante entre las Partículas y las Paredes de la Cámara de Reacción del Reactor de Conversión Instantánea.**

La dispersión de la radiación incidente sobre las partículas es un tema de interés en el estudio del horno de conversión instantánea. Específicamente determinar si la dispersión de la energía radiante en la cámara de reacción, por efecto de la nube de partículas, puede afectar la distribución de las temperaturas de las partículas y el gas en un reactor de conversión instantánea, y con ello, el balance térmico del horno y/o el grado de conversión global de las reacciones de oxidación. Este es un punto que ha recibido poca atención en la literatura.

Para efectos de esta parte del estudio, se usó el código original Flash3D para realizar las simulaciones, de acuerdo a las condiciones mostradas en las Tablas (3-5) y (3-6).

### **4.2.1 Temperatura de las partículas.**

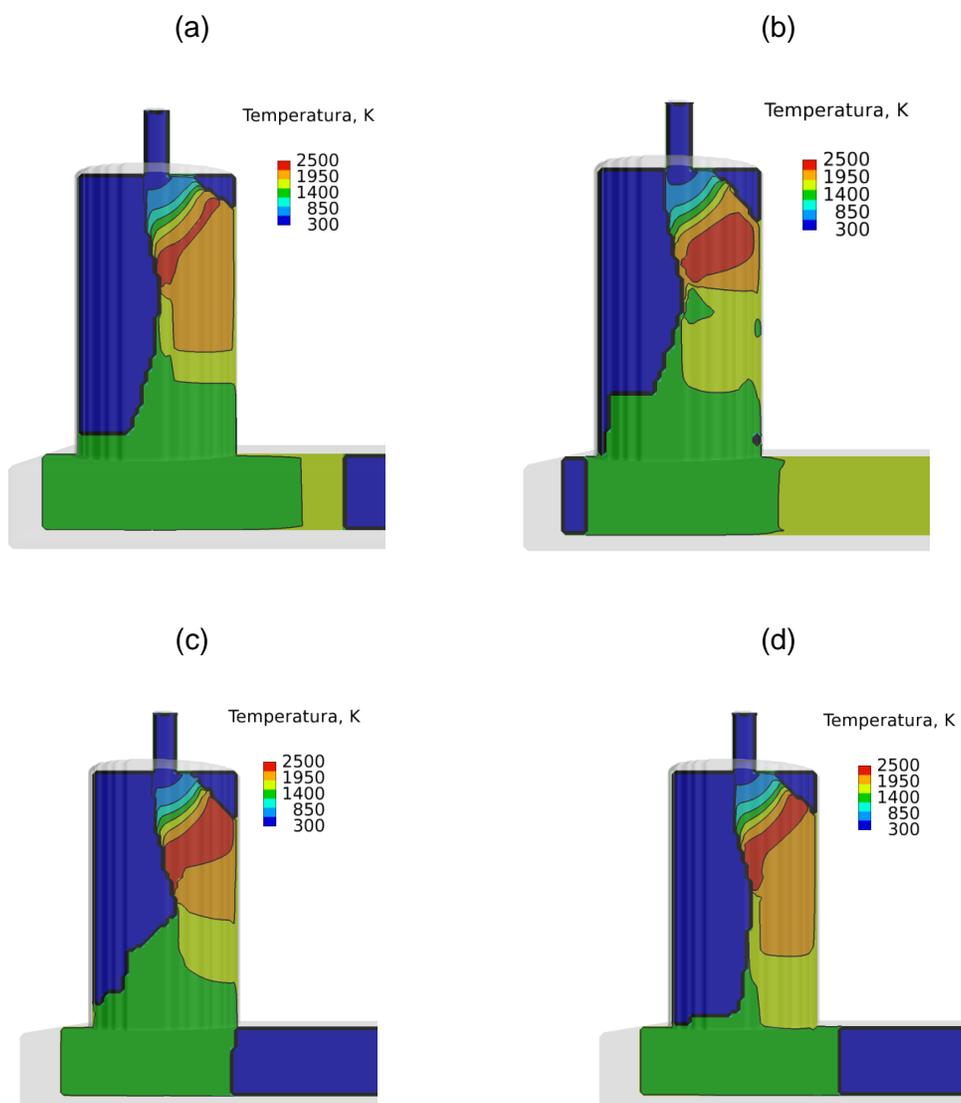
Las partículas presentaron cambios en su temperatura conforme pasaron por la cámara de reacción. En las Figuras (4-10a) a (4-10d) se muestran los resultados de las simulaciones para esta variable de respuesta. La temperatura máxima promedio de todos los casos fue de 2418 K, apreciable en los contornos de color rojo de dichas figuras.

En el caso de la Figura (4-10a) la función de fase fue igual a cero, por lo que no se consideraron los efectos de la dispersión de energía radiante; las temperaturas en la corriente de descarga del quemador no fueron uniformes. Comenzaron en la entrada del quemador a la temperatura de ambiental de 300 K, y se calentaron gradualmente en contornos de 400 K, 850 K, 1400 K, 1500 K, 1950 K hasta un máximo de 2490 K. Luego de ese punto se observó cómo las corrientes de gases y partículas golpearon las paredes del horno en un contorno a 1950 K. Luego, las zonas de temperatura se extendieron bajando a 1500 K y dirigiéndose posteriormente al fondo de la cámara, donde en el baño fundido llegaron a aproximadamente 1400 K.

En el caso donde la condición de dispersión es isotrópica, Figura (4-10b), con la función de fase igual a la unidad y la dispersión de energía radiante siendo la misma en cualquier

dirección sobre la partícula. Se observaron contornos similares de regiones de temperatura que el caso anterior, sin embargo, la zona de temperatura máxima, que llegó a 2353 K, en color rojo, se extendió en un mayor volumen hacia la zona lateral superior de la cámara. Este comportamiento se repitió en menor medida para condiciones de dispersión no isotrópica de las Figuras (4-10c) y (4-10d). La turbulencia del fenómeno propició que las líneas de corriente del gas arrastraran a las nubes de partículas en un giro contrario a las manecillas del reloj, y haciendo que estas golpearan la pared de la cámara para después proyectarse hacia el fondo de la misma.

Las partículas reaccionaron a los pocos centímetros saliendo del quemador central. Esto era algo esperado debido a que las reacciones heterogéneas ocurren en los primeros centímetros que son expuestos a las altas temperaturas del horno; sin embargo, se llegó zonas de temperaturas apreciablemente superiores en el caso de la dispersión isotrópica, donde las partículas dispersaron la energía en todas direcciones. Ello podría deberse a que ahora las partículas no absorben el completo de energía radiante como lo haría un cuerpo negro, sino que parte de la misma es emitida hacia otras partículas, el gas y las paredes del horno. En el caso de la dispersión predominantemente hacia delante, la Figura (4-10c), la zona de alta temperatura es de 2416 K y está en su mayor parte en la parte superior del reactor. Finalmente, en el caso con dispersión predominante hacia atrás, Figura (4-10d), dicha última zona está alargada hacia abajo, con 2411 K, y una mayor zona de temperatura intermedia de 1900 K. Los anteriores son los resultados esperados, siendo el calor de las reacciones químicas una de las fuentes de energía que se irradian entre las partículas, y que después estas dispersan ya sea de regreso a la fuente (Modelo de Henyey-Greenstein) o en dirección contraria a la misma (Modelo de Largas Esferas Difusas). Un resumen de las condiciones y temperaturas máximas se encuentra en la Tabla 4-2.



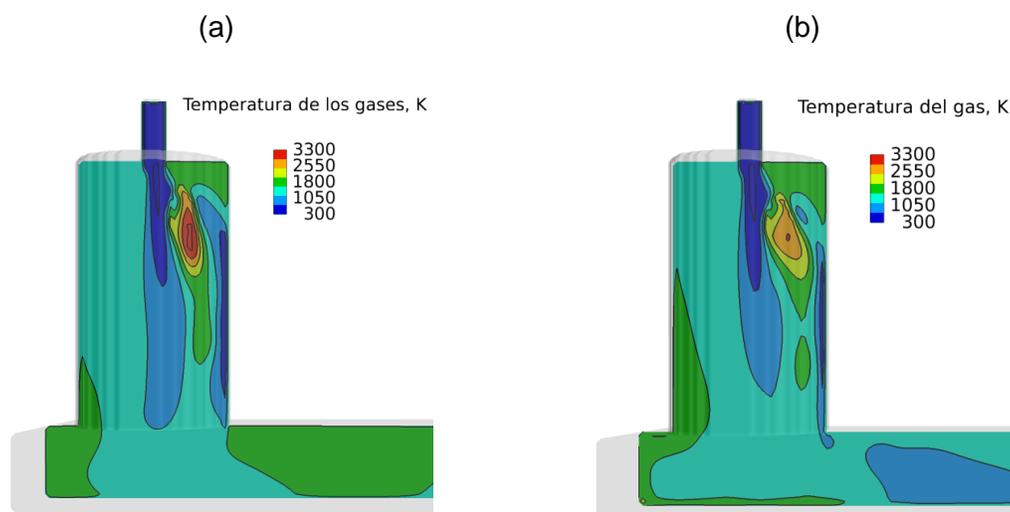
**Figura 4-10.** Resultados de la simulación del PCI para la temperatura de las partículas: (a) Sin dispersión de radiación, (b) Modelo de Dispersión Isotrópica, (c) Modelo de Henyey-Greenstein, y (d) Modelo de Largas Esferas Difusas.

#### 4.2.2 Temperatura y velocidad del gas.

El gas, es la fase continua que acompaña a las partículas y reacciona con ellas. Comienza su viaje como aire enriquecido en oxígeno y después de las reacciones de oxidación su composición cambia debido al dióxido de azufre generado. Una vez las partículas alcanzaron su temperatura de reacción incipiente a los 800 K se iniciaron las reacciones químicas. Las reacciones de oxidación de partículas sulfurosas toman entre 3 y 4 ms (Shook, 1992), por lo que se presentó un rápido ascenso de la temperatura del gas hasta un máximo promedio de 3330 K, como se aprecia en los contornos de color rojo en las figuras (4-11a) y (4-11b). Es posible que las partículas no alcanzaran temperaturas tan altas como el gas que las rodea debido a que, una vez que el  $O_2$  se encuentra con el S en el núcleo de la partícula, la reacción es instantánea y se libera  $SO_2$  que escapa por la capa porosa de óxidos hacia el seno del gas. La transferencia de masa y energía interna posiblemente ocasionó que el calor se concentrara en la fase gaseosa, lo cual elevó su turbulencia y el arrastre aleatorio de las partículas.

No se apreciaron diferencias significativas entre los casos de dispersión isotrópica, no isotrópica y predominantemente hacia atrás. La figura (4-11a) muestra la temperatura del gas para estos casos, donde la temperatura máxima promedio fue de 3335 K. El caso de dispersión predominante hacia adelante se muestra en la figura (4-11b), con pocas diferencias apreciables. Aquí la temperatura máxima alcanzada fue de 3315 K, y los contornos presentaron coloraciones y extensiones en menores intensidades que en el caso antes mencionado.

No fueron apreciados cambios significativos, en ninguna de las funciones de fase evaluadas, en el caso de la variable de respuesta de velocidad del gas cuando la dispersión de radiación estuvo presente.

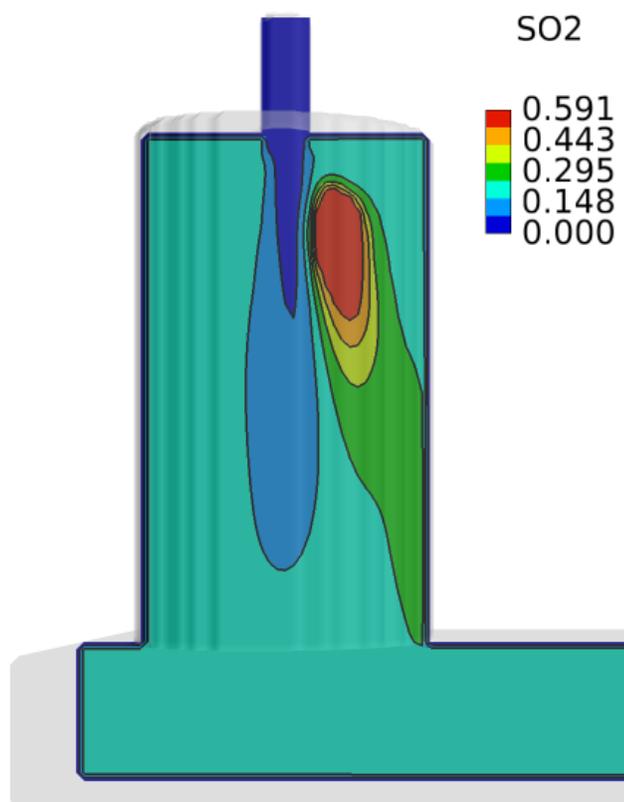


**Figura 4-11.** Resultados de la simulación del PCI para la temperatura de los gases de proceso: (a) Sin dispersión de radiación, Modelo de Dispersión Isotrópica y Modelo de Largas Esferas Difusas; (b) Modelo de Henyey-Greenstein.

#### 4.2.3 Contenido de $\text{SO}_2$ en la fase gaseosa.

No fueron apreciadas diferencias significativas entre los casos en ausencia o presencia del fenómeno de dispersión de radiación, y el resto de las funciones de fase evaluadas. Un comportamiento promedio es mostrado en la Figura (4-12). En la parte superior de dicha figura se aprecia cómo no existe  $\text{SO}_2$  en la corriente gaseosa a la entrada de la cámara de reacción. Posteriormente, la corriente gaseosa alcanzó su fracción máxima promedio de 0.591, siendo en seguida diluida con el resto de gases de escape, hasta llegar a una fracción promedio de 0.295 a la salida de la cámara de reacción y chimenea. En esta figura, además, se observa como la generación de dióxido de azufre estuvo en relación directa con la cinética de las reacciones heterogéneas, de ahí que su contorno de máxima concentración concuerde con el contorno de máxima temperatura de los gases en la figura (4-11a). La concentración de  $\text{SO}_2$  disminuyó en contornos de fracciones de 0.591, luego

0.443 hasta que la corriente de gases y partículas golpeó las paredes de la cámara de reacción, en donde la fracción de  $\text{SO}_2$  fue de 0.295 hasta llegar al baño fundido.



**Figura 4-12.** Resultados de la simulación del PCI para el contenido de  $\text{SO}_2$ .

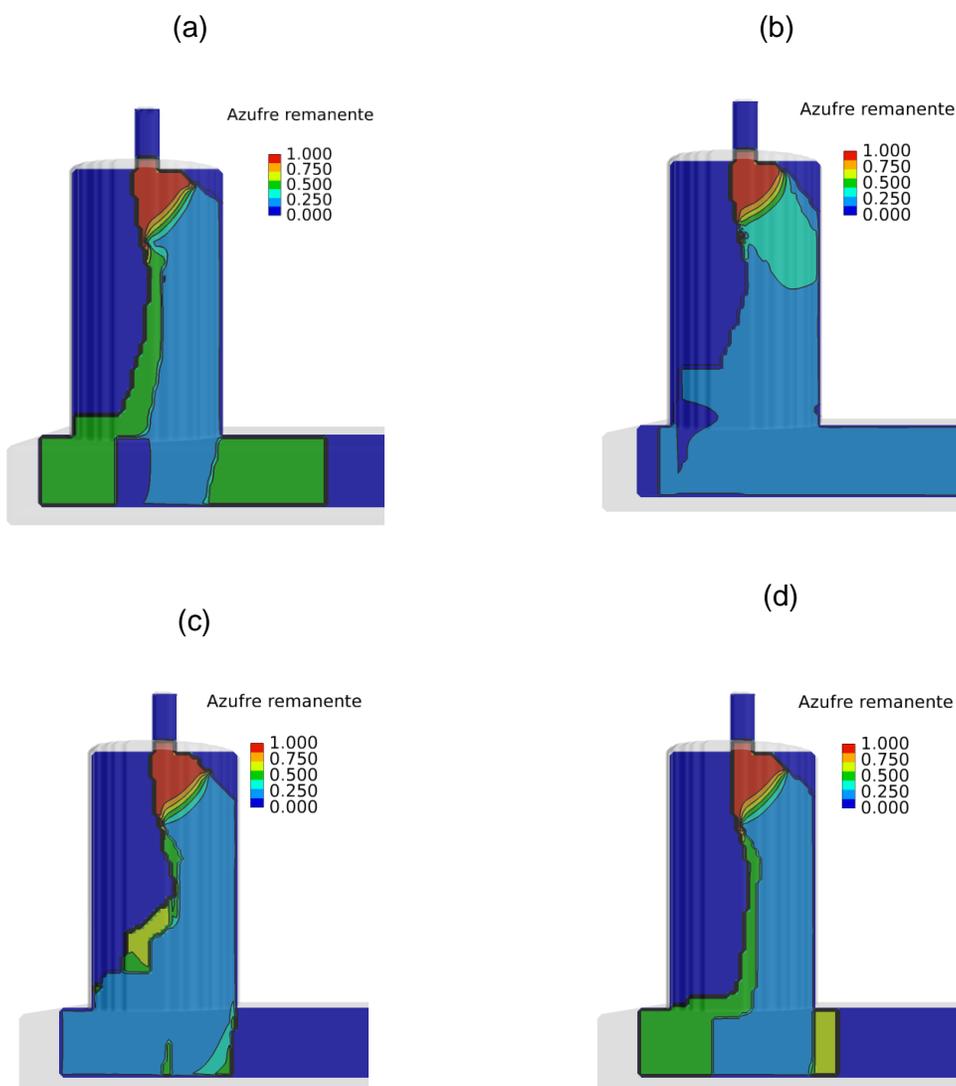
#### 4.2.4 Azufre remanente en las partículas.

La cantidad de azufre que permanece dentro de las partículas, una vez iniciadas las reacciones químicas, es una variable importante que nos muestra el grado de avance de las mismas. Observando al azufre remanente en las partículas de las Figuras (4-13a) a (4-13d) para los casos evaluados antes mencionados, es de esperarse un contorno de color rojo a la entrada del reactor, indicando un 100 % de azufre sin reaccionar.

En la Figura (4-13), para todos los casos, se observó que la cantidad de azufre disminuyó conforme la corriente de gases y partículas atravesaba la cámara de reacción. Sin embargo, cuando las partículas hicieron ignición, la fracción de azufre remanente tomó un valor estable de aproximadamente el 16.7 %. Dicha concentración, además de otras regiones con hasta el 50 % de azufre sin quemar, son apreciables en los contornos de coloración azul y verde, los cuales se cubren distancias semejantes, en los casos de ausencia de radiación (4-13a), dispersión hacia adelante (Figura (4-13c)) y hacia atrás (Figura 4-13d). Para el caso de la dispersión isotrópica de la Figura (4-13b), no se aprecian dichas zonas de color verde, por lo que existió un mayor consumo de azufre respecto a los otros casos, además el azufre remanente estuvo por debajo de los valores promedio para mayor parte de esta cámara de reacción y el asentador, lo que implica un efecto significativo en la rapidez de oxidación de las partículas.

El azufre que no reaccionó permaneció en las partículas hasta ser depositado en el asentador con la mata fundida, participando luego de otras reacciones químicas en fase líquida.

Como se vio en el capítulo anterior, el Flash3d toma como etapas controlantes de la reacción, al transporte del oxígeno desde el seno del gas hasta la superficie de la partícula, y al transporte del mismo por la capa porosa de óxidos hasta el núcleo sin reaccionar. Una vez que la partícula se ha fundido, la reacción es controlada por el transporte de masa del oxígeno en fase gaseosa. De manera que las partículas en el modelo de dispersión isotrópica consumieron cerca del 50 % del azufre al entrar en contacto con el oxígeno de la corriente gaseosa, y luego se convirtieron en gotas, a los pocos centímetros de haber entrado a la cámara de reacción.

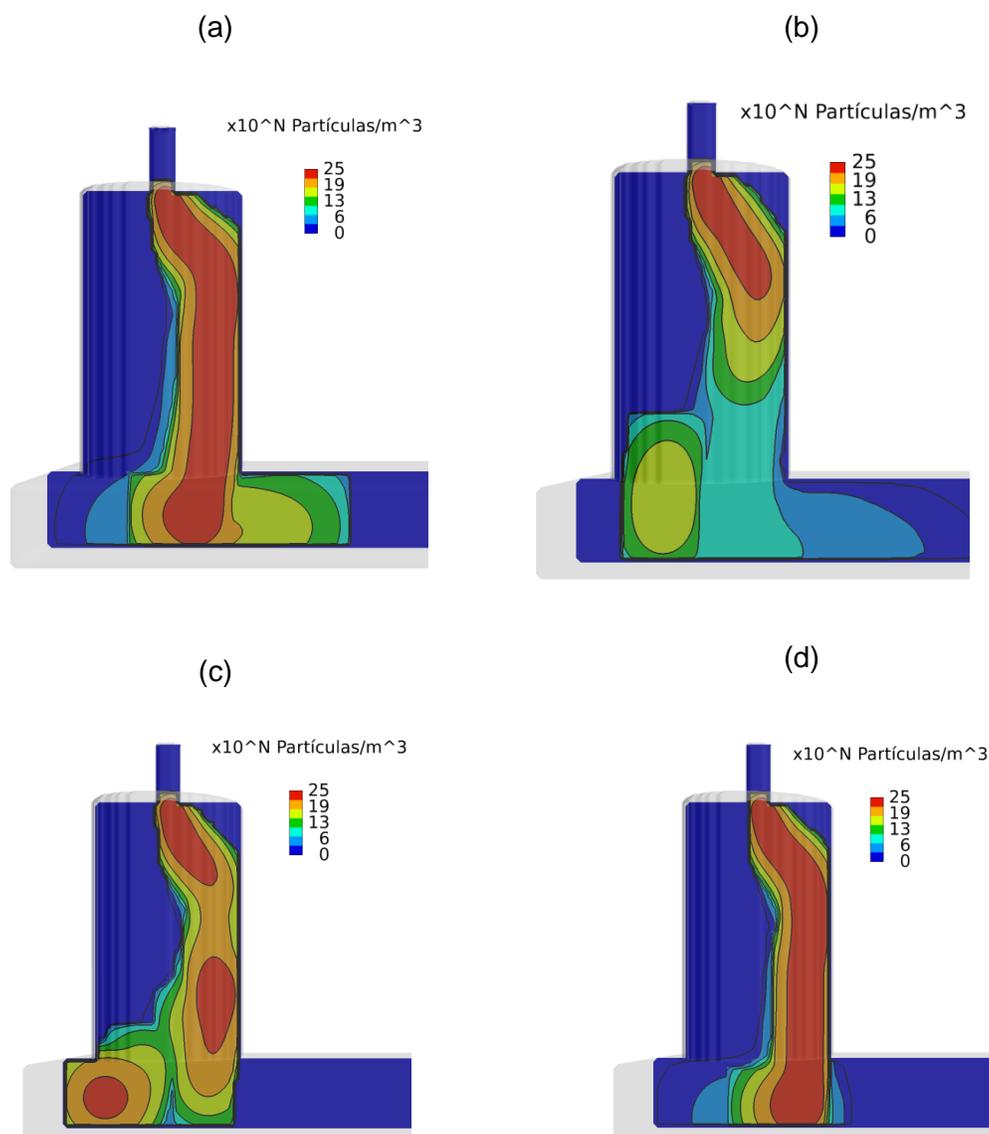


**Figura 4-13.** Resultados de la simulación del PCI para el contenido de azufre remanente: (a) Sin dispersión de radiación, (b) Modelo de Dispersión Isotrópica, (c) Modelo de Henyey-Greenstein, y (d) Modelo de Largas Esferas Difusas.

#### **4.2.5 Densidad numérica de las partículas en la cámara de reacción.**

En las Figuras (4-14a) a (4-14d) se muestran el número de partículas, de la forma  $10^N$ , donde N toma valores entre 0 y 25. Es apreciable cómo, para los casos (a) y (d) el número de partículas estuvo en su máximo en la línea de corriente central desde la entrada a la cámara hasta llegar al asentador.

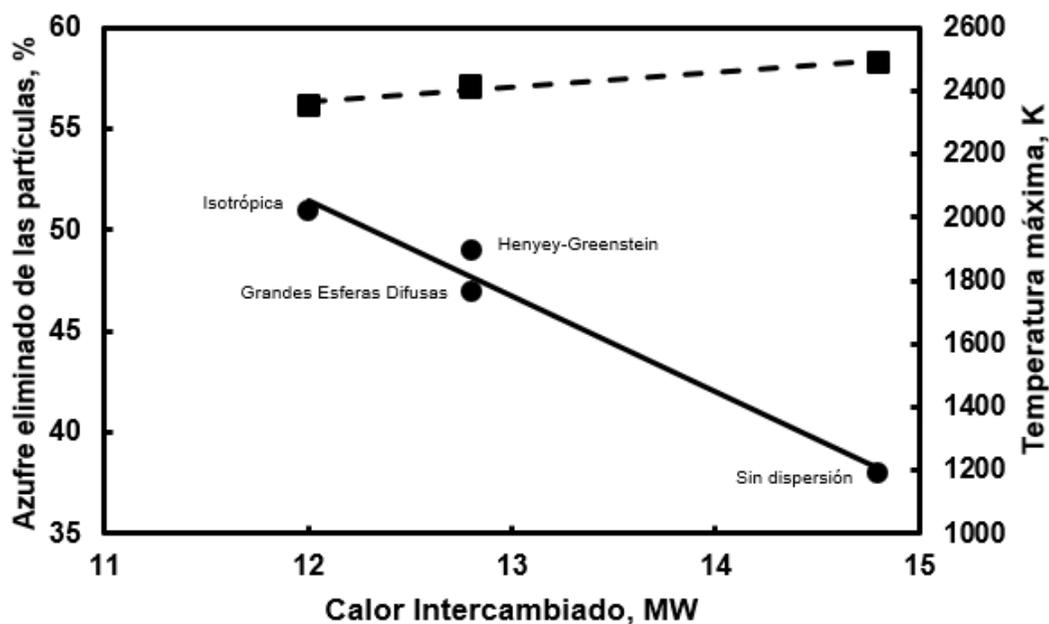
Existen diferencias significativas en todos los casos, con regiones de alta y baja concentración, posiblemente afectadas por la turbulencia del gas que provocó cambios en las trayectorias de las nubes de partículas. De nuevo se destaca el caso de dispersión de energía radiante de la Figura (4-14b), donde el número de partículas es considerablemente menor, no obstante, la trayectoria principal de las nubes es muy semejante a las de otros casos.



**Figura 4-14.** Resultados de la simulación del PCI para la densidad numérica de las partículas: (a) Sin dispersión de radiación, (b) Modelo de Dispersión Isotrópica, (c) Modelo de Henyey-Greenstein, y (d) Modelo de Largas Esferas Difusas. La escala de color representa el valor de  $N$ , que es el exponente para la concentración de las partículas.

**Tabla 4-2.** Energía radiante intercambiada entre las paredes y las partículas.

Número de caso y dirección	Modelo empleado	Calor intercambiado, MW	Azufre eliminado de las partículas (%)	Temperatura máxima de las partículas (K)
Sin dispersión	$\emptyset = 0$	14.8	38	2490
Dispersión isotrópica	Isotrópico, $\emptyset = 1$	12.0	51	2353
Dispersión hacia adelante	Henyeey-Greenstein	12.8	49	2416
Dispersión hacia atrás	Grandes Esferas Difusas	12.8	47	2411

**Figura 4-15.** Azufre eliminado (●) y temperatura máxima (■) en las partículas respecto al calor intercambiado con las paredes del horno.

En la Tabla (4-2) se muestran los resultados de cantidad de energía radiante intercambiada entre las paredes del horno y las partículas, el porcentaje de azufre eliminado luego de las reacciones de oxidación, y la temperatura máxima alcanzada en las nubes de partículas. En dicha tabla se muestra como, en el caso donde no se considera a la dispersión de radiación, los valores de radiación intercambiada y porcentaje de azufre remanente son significativamente mayores, con 2490 K; una diferencia de 137 K respecto al caso de dispersión isotrópica. Estos resultados indican que la presencia de dispersión de energía radiante afectó el intercambio neto de radiación entre las partículas y las paredes del horno en el desarrollo de la reacción entre las partículas y el gas al alcanzar en menor tiempo la temperatura de reacción incipiente. Con el modelo de dispersión isotrópica se obtuvo un 19 % de reducción entre la energía radiante intercambiada con las paredes, además de un 13 % menos de azufre remanente en las partículas finales. En presencia de dispersión de energía radiante, las partículas adquirieron una temperatura más alta en la parte superior de la cámara de reacción, en comparación a la ausencia de la misma. Una explicación a este resultado es que, al dispersarse la energía radiante proveniente de las paredes del horno, las partículas distribuyeron entre las demás el calor radiante incidente recibido; esto a su vez permitió que un número importante de las partículas alcanzaran su punto de ignición en un tiempo más corto. Puesto que las reacciones de oxidación son altamente exotérmicas, una vez llegada la ignición de las partículas estas elevaron rápidamente su temperatura. En contraste, cuando la energía radiante no es dispersada por las partículas, las partículas que viajaron por la parte central de la nube no recibieron la energía radiante proveniente de las paredes, debido a que las partículas de la periferia de la nube la absorbieron por completo. Esto obligó a las partículas del centro de la nube a viajar una mayor distancia en el horno antes de alcanzar su temperatura de ignición.

Un análisis similar se realizó en la Figura (4-15) donde el calor intercambiado entre las partículas y las paredes del horno se comparó, para todos los casos, contra la temperatura máxima alcanzada y la fracción de azufre eliminado. Se aprecia una tendencia en donde a una mayor cantidad de energía radiante intercambiada se lograron mayores temperaturas máximas en las partículas reaccionantes, así como menores tasas de consumo de azufre. Una posible explicación a lo anterior es que, en el caso de la ausencia de dispersión de radiación, las partículas solamente intercambiaron energía radiante con las paredes del horno, de ahí que la tasa de intercambio sea la más alta de los casos evaluados. De la

misma forma, cuando el fenómeno de dispersión sí fue considerado, ahora las partículas recibieron el calor no solo de la cámara, sino que entre ellas mismas intercambiaron energía radiante. Es posible que esto provocara que el tiempo con temperatura máxima conforme las partículas caían se extendiese, haciendo que un mayor número de partículas alcanzara la temperatura de ignición en un menor tiempo. Esto se aprecia en las Figuras 4-10a, 4-10b y 4-10c. Por lo siguiente, los casos que sí consideraron a la dispersión de energía radiante presentaron mayores consumos de azufre y menores tasas de intercambio radiativo con las paredes del horno. Otra posible explicación estaría en la naturaleza de las reacciones exotérmicas, donde a mayores temperaturas de operación la velocidad de reacción se ve disminuida, de ahí la pendiente negativa de la figura (4-15).

La comparación de las Figuras (4-10) a (4-14), muestra que la dispersión de la energía radiante en las nubes de partículas, tiene un efecto significativo sobre el grado de oxidación de las partículas y la temperatura de las mismas. Esta variable es una medida del grado de oxidación, ya que el objetivo del proceso de conversión instantánea es eliminar el azufre contenido en las partículas para convertirlo a  $\text{SO}_2$  de acuerdo a la Reacción (3-3).

Los resultados del presente trabajo indican que la dispersión de la energía radiante afecta significativamente el comportamiento de las partículas y de la fase gaseosa en un horno de conversión instantánea, cuando ambas corrientes se alimentan perpendicularmente a la pared superior del reactor. La dispersión de la energía radiante permitió una ignición más rápida de las partículas durante el vuelo y la distribución uniforme de la energía radiante entre las partículas vecinas, reduciendo simultáneamente el intercambio neto de energía radiante entre las partículas y las paredes del horno y arrojando temperaturas en las partículas 137 K menores que aquellas calculadas sin dispersión de energía radiante. Por lo anterior, puede decirse que el no considerar a la dispersión de radiación en futuros trabajos conllevará a un error significativo en las temperaturas reportadas en modelos sin esta característica.

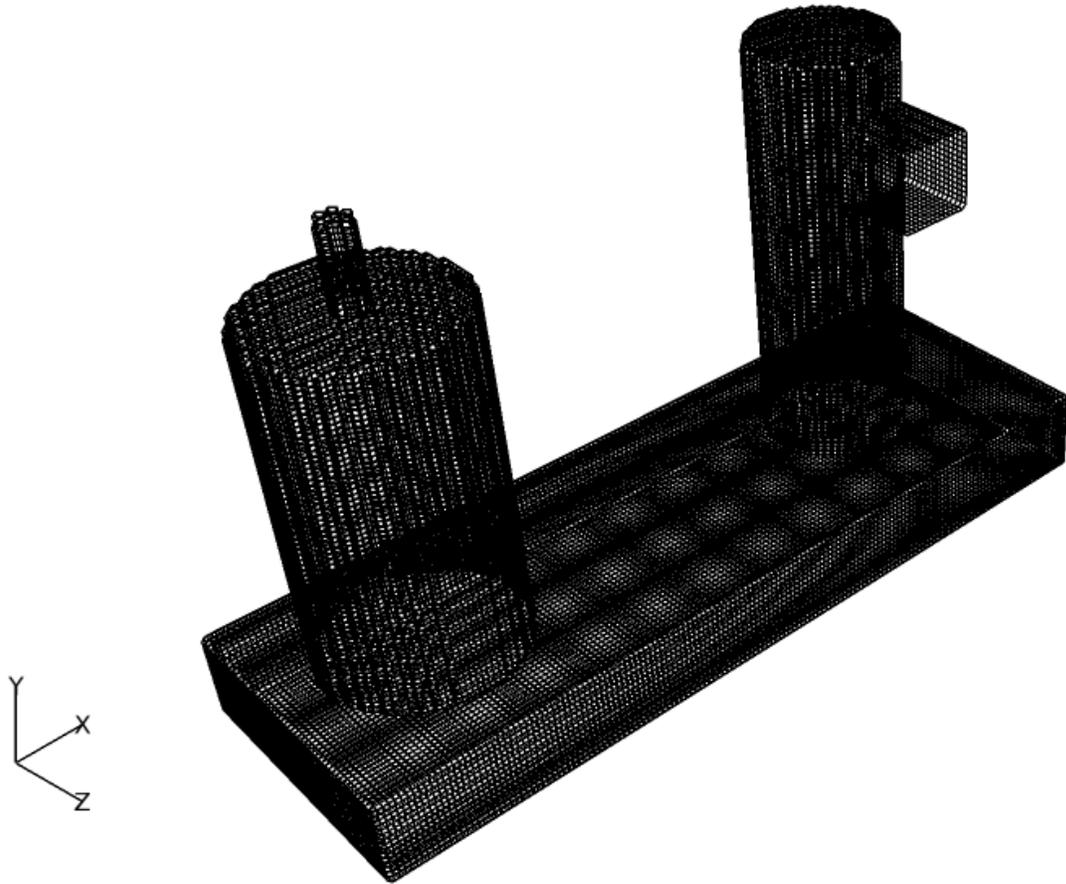
### **4.3 Estudio tridimensional de la fragmentación de partículas sulfurosas en un reactor de conversión instantánea.**

Una vez acoplados en una sola dirección los modelos de fragmentación composicional (MFC) y el modelo tridimensional de conversión instantánea (Flash3D), de acuerdo a los criterios discutidos en la sección 3.5, se procedió a realizar la simulación de la cámara de reacción del PCI, considerando condiciones típicas de operación de un reactor de escala industrial.

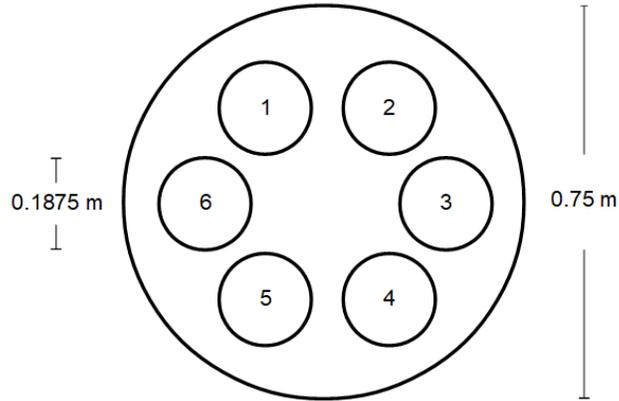
Conforme a los resultados del estudio de dispersión de energía radiante de la sección 4.2, fue necesario incluir en las simulaciones el cálculo de la dispersión de radiación a través de la función de fase de dispersión isotrópica, debido a que ésta, al compararse con otros tipos de dispersión o su ausencia, aportó diferencias significativas en los resultados de distribución de temperatura en las nubes de partículas sulfurosas, así como en su densidad numérica.

Para este estudio, fueron consideradas nubes de partículas que están conformadas por un único tamaño uniforme, esto de acuerdo con el modelo de dispersión de partículas turbulentas propuesto por (Jain, 1995). Por lo tanto, las simulaciones se basaron en el estudio de tres casos de nubes de partículas con tamaños de 50  $\mu\text{m}$ , 100  $\mu\text{m}$  y 150  $\mu\text{m}$ . Debido a la turbulencia de la corriente gaseosa, las distribuciones de tamaños de las partículas expandidas y fragmentadas se calcularon en función del tiempo de cada nube individual. Fueron considerados cinco tiempos de referencia para la cámara de reacción.

Para cada simulación se usó una misma malla regular, mostrada en la Figura (4-16), que representa a un reactor de conversión instantánea de escala industrial de 6.5 metros de altura y 4.5 metros de diámetro. En dicho reactor se simularon seis puntos de entrada en la parte superior de la cámara, representados en la Figura (4-17). Dichos puntos son apreciables en el tope de la boquilla superior. La malla empleada fue estructurada, con 224,232 celdas de campo de flujo, y los parámetros de operación son los mismos que se emplearon en el estudio de dispersión de radiación de la sección anterior, mostrados en la Tabla (3-6).



**Figura 4-16.** Malla computacional empleada en la simulación del reactor industrial de conversión instantánea.

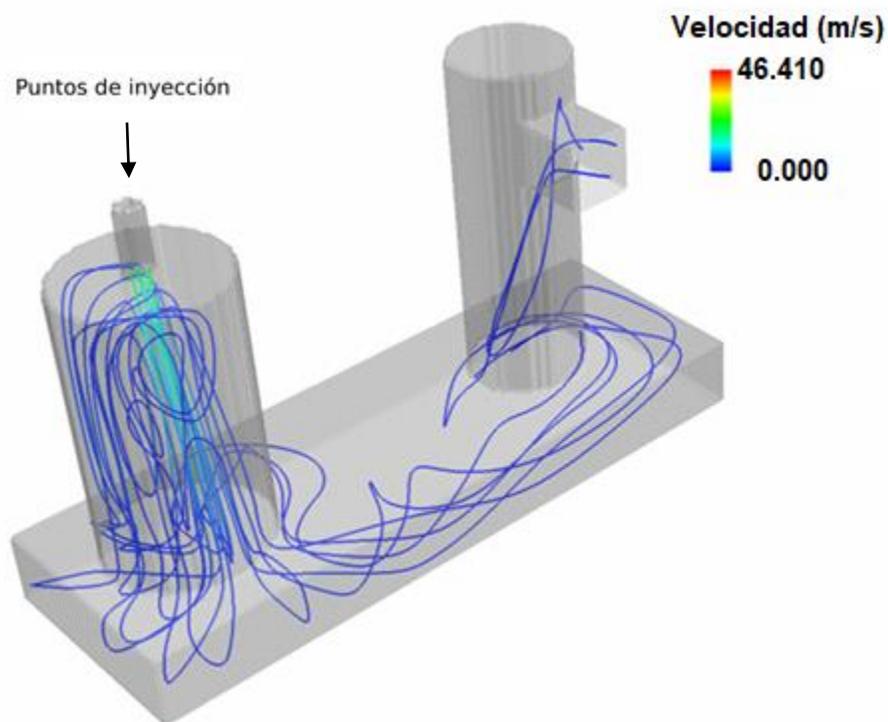


**Figura 4-17.** Distribución de los puntos de inyección en la entrada superior de la cámara de reacción del PCI.

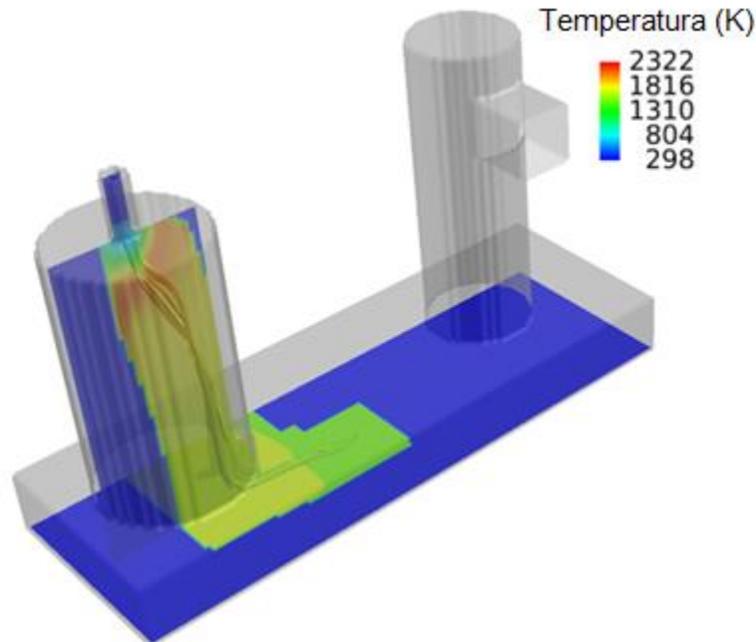
En una primera simulación, de acuerdo a la metodología de solución de la Figura (3-4), el modelo Flash3D fue ejecutado hasta lograr la convergencia de sus términos fuente, y llegar a una solución única en el estado estacionario del proceso. El modelo calculó los valores promediados en el tiempo para la velocidad, posición, temperaturas del gas y de las partículas; así como la rapidez de las reacciones de oxidación. Posteriormente, las bases de datos de las nubes de partículas se extrajeron y procesaron para ser leídas y formar parte de una segunda simulación en el MFC.

La Figura (4-18) muestra las trayectorias de las seis líneas de corriente de elementos del fluido que entraron de manera perpendicular por la parte superior del reactor. Las seis líneas de corriente gaseosa siguen trayectorias diferentes, tocando las paredes del reactor, distribuyendo y arrastrando a las nubes de partículas por la cámara de reacción en su camino a la salida por la chimenea. La velocidad máxima alcanzada fue de 46.41 m/s en la descarga del quemador, donde se dieron inicio las reacciones químicas heterogéneas e instantáneas. Al inicio de su trayectoria, al caer en el horno justo después de recorrer el tubo superior, las líneas de corriente presentaron flujos no desarrollados y recirculaciones con giros turbulentos tipo “rebote” del gas contra las paredes del horno y el asentador. La velocidad luego de los giros se mantuvo prácticamente constante, con diferencias mínimas de 1 m/s.

El asentador contiene cobre blíster y escoria reaccionante los cuales influyeron en la distribución y cambios de dirección de la mezcla partícula-gas al actuar como una pared. En la parte final de su viaje, todas las líneas de corriente encontraron su camino hacia la chimenea después de continuos cambios de dirección.



**Figura 4-18.** Trayectorias de seis líneas de corriente de elementos de la corriente gaseosa que entran perpendicularmente a la cámara de reacción. Para partículas de 50  $\mu\text{m}$ .



**Figura 4-19.** Resultados de la distribución de las nubes de partículas y su temperatura, para un tamaño inicial de 50  $\mu\text{m}$ .

En la Figura (4-19) aparecen las temperaturas de las nubes de partículas y las trayectorias de estas en la cámara de reacción y el asentador. Se observa que las partículas caen y se acumulan en el fondo del asentador, sin llegar a escapar por la chimenea. La temperatura máxima fue de 2322 K en una línea de 40 cm en la zona rojiza de dicha figura. Luego de esto, disminuyó a 1816 K y se mantuvo constante hasta llegar al baño fundido, donde su temperatura fue de 1310 K.

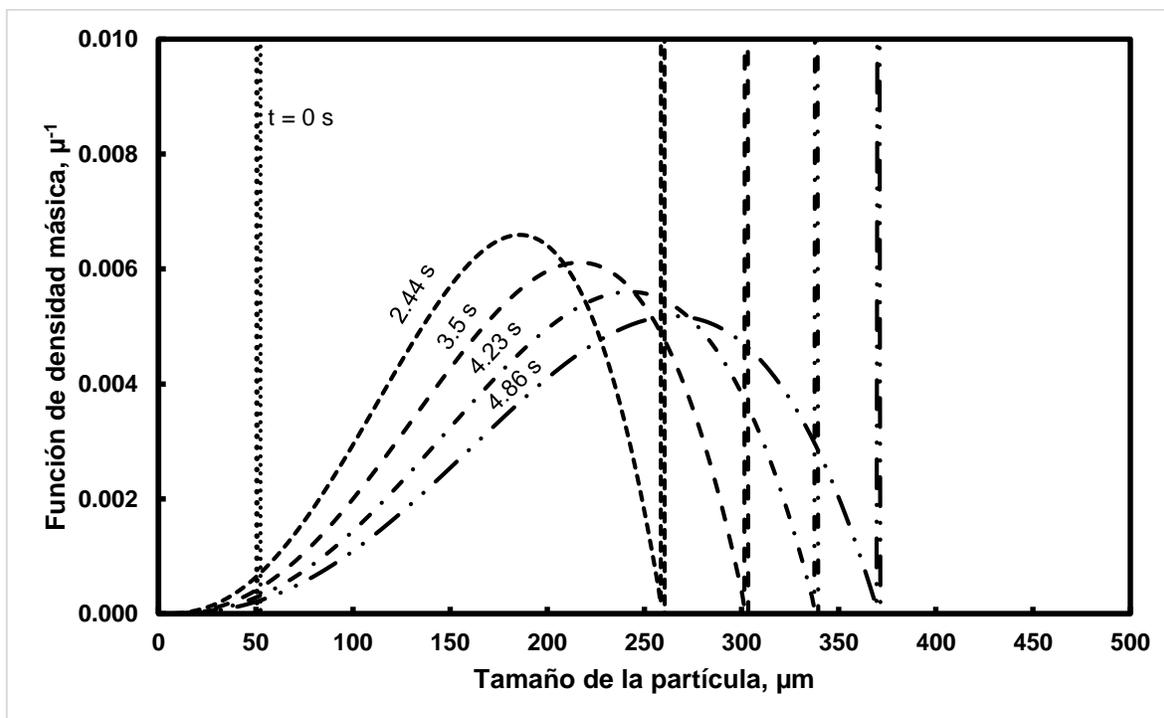
La distribución de las partículas aparece en concordancia con las trayectorias de los centros de las nubes de estas, los cuales se agruparon en trayectorias cerradas que se dirigieron casi directamente a la salida de la cámara y la chimenea. Las trayectorias de las corrientes gaseosas son similares en su primer recorrido por la cámara de reacción, pero una vez llegado al baño fundido redujeron su velocidad, para después separarse y presentar turbulencia hasta la salida del reactor.

### **4.3.1 Resultados del modelo de fragmentación sobre las nubes de partículas de 50 $\mu\text{m}$ .**

Una vez acoplados los modelos Flash3D y MFC, de acuerdo a la metodología descrita en el Capítulo 3, se realizaron las simulaciones del PCI en condiciones típicas de un reactor de escala industrial. Dichas condiciones corresponden a las que se muestran en la Tabla (3-6).

A continuación, se presentan los resultados de las corridas para las nubes de 50 y 100  $\mu\text{m}$ . El tamaño superior de 150  $\mu\text{m}$  no presentó diferencias sustanciales respecto al de 100  $\mu\text{m}$  y no se presenta aquí. El objetivo de este apartado fue el de analizar la formación de las partículas hijas, provenientes de la fragmentación de las nubes de tamaños antes mencionados, dentro de la cámara de reacción de un horno de conversión instantánea.

En la Figura (4-20) se muestra las distribuciones de tamaño respecto al tiempo para una nube de partículas de tamaño inicial 50  $\mu\text{m}$ .



**Figura 4-20.** Evolución de las distribuciones de tamaños para una nube de partículas tamaño inicial de 50  $\mu\text{m}$ .

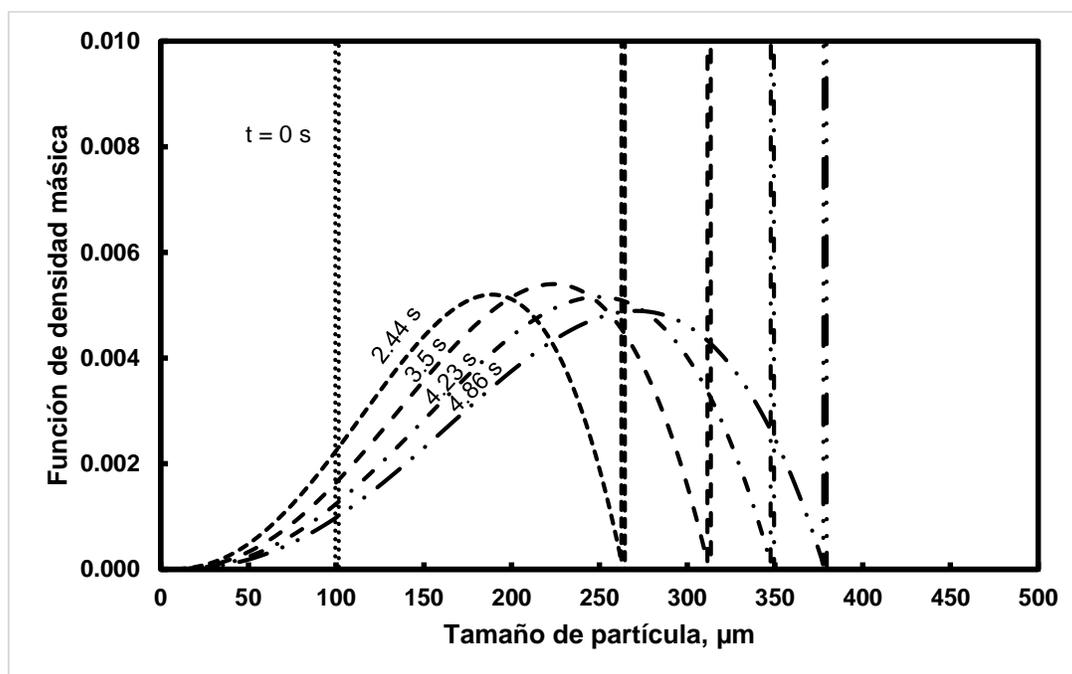
La distribución de tamaños muestra una línea vertical para que representa el 100 % de partículas de 50 micras en la entrada del horno ( $t=0$ ). Posteriormente, dichas partículas iniciaron su expansión a tamaños mayores y fragmentación a tamaños menores. Esto se observa para un tiempo de 2.44 segundos, donde la expansión llevó a las partículas a crecer hasta los 262  $\mu\text{m}$ , donde aparece una línea vertical que indica que dichas partículas representan el 14 % del total de partículas en ese momento. Continuando con el tiempo de 2.44 segundos, se aprecia una distribución de tamaños generados por la fragmentación de las partículas de 262  $\mu\text{m}$ , donde el tamaño más abundante fue el de 180  $\mu\text{m}$ . Comportamientos similares se apreciaron para el resto de los tiempos, con un tamaño máximo de expansión de 358  $\mu\text{m}$  y generando 371 tamaños en total, distribuidos entre 0.5  $\mu\text{m}$  y 370.5  $\mu\text{m}$  en el último tiempo evaluado.

Las simulaciones del Flash3D original no incluyeron la expansión o fragmentación de las partículas. Debido a las modificaciones del modelo para que estos fenómenos estuvieran presentes, en este estudio fue posible observar como una sola nube de partículas, con 50  $\mu\text{m}$  de tamaño único, fue capaz de generar 371 tamaños más, durante sus 4.86 segundos de vuelo.

El índice de fragmentación puntual calculado en este caso fue de  $\eta_f = 0.124$ ; lo que indica que existió una prevalencia del fenómeno de expansión sobre el de fragmentación, puesto que solo el 12.4 % de las partículas se fragmentaron. Se observó también que los tamaños mayores, que son los que se encuentran más abajo en la cámara de reacción y llevan un mayor tiempo reaccionando, son los que presentaron una mayor fragmentación, lo que explicaría el decreciente porcentaje de los mismos, puesto que en el último tiempo considerado de 4.86 segundos, estos representaron apenas el 3 % del total de partículas.

#### **4.3.2 Resultados del modelo de fragmentación sobre las nubes de partículas de 100 $\mu\text{m}$ .**

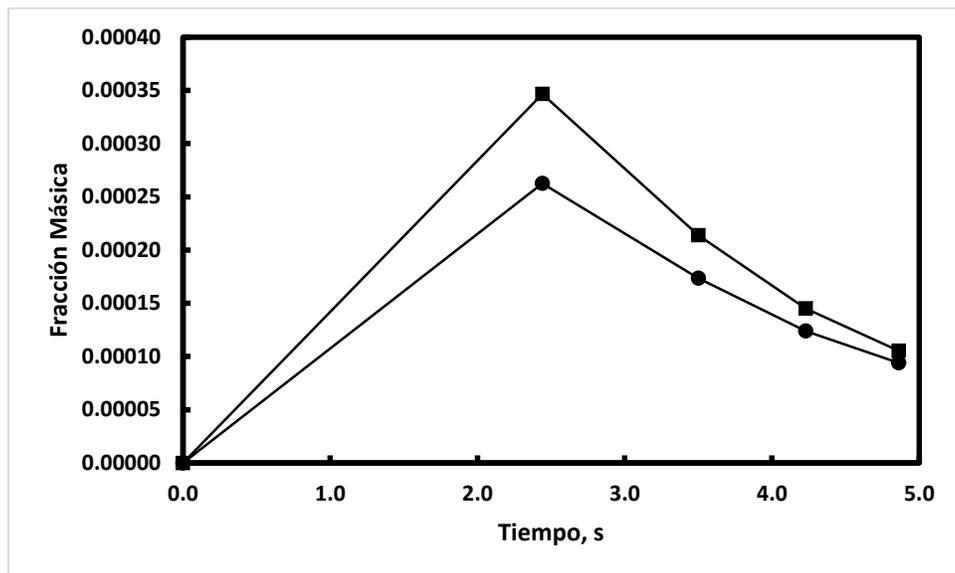
En la Figura (4-21) se presentan resultados similares al de la Figura (4-20) en cuanto al comportamiento de las distribuciones de tamaño, una vez considerado el fenómeno de fragmentación.



**Figura 4-21.** Evolución de las distribuciones de tamaños para una nube partículas de tamaño inicial de 100  $\mu\text{m}$ .

Se graficaron las funciones de densidad másica contra el tamaño de partícula y se aprecia como a la entrada del horno se tiene una totalidad de partículas de 100 micras. Las partículas cambiaron su tamaño de acuerdo a los datos de tiempos considerados en la cámara de reacción. Se alcanzaron tamaños de 264  $\mu\text{m}$ , 313  $\mu\text{m}$ , 349  $\mu\text{m}$  y 379  $\mu\text{m}$  en los tiempos evaluados, estos representaron fracciones másicas del 30%, 14%, 8% y 6% respectivamente. En comparación con el tamaño de 50  $\mu\text{m}$  de la sección anterior, existe un incremento en el tamaño y número de partículas en los tiempos evaluados, puesto que ahora las partículas de 100  $\mu\text{m}$  se expandieron y fragmentaron generando 380 tamaños en total, distribuidos entre las 0.5  $\mu\text{m}$  y 378.5  $\mu\text{m}$ .

El índice de fragmentación para este caso fue de  $\eta_f = 0.2709$ , lo que denota la existencia de una competencia entre los fenómenos de expansión y fragmentación, estando ésta última presente en el doble de partículas reaccionantes que en el caso de un único tamaño inicial de 50  $\mu\text{m}$ .



**Figura 4-22.** Contenido de polvos respecto al tiempo para partículas de 50 µm (■) y 100 µm (●).

En la Figura (4-22) se presentan la fracción másica de partículas menores a 20 µm, las cuales son consideradas como polvos (Parra-Sánchez et al., 2014). Se observa como en los dos tamaños evaluados de 50 µm y 100 µm el contenido de polvos tiende a disminuir conforme las corrientes de gases y partículas atraviesan la cámara de reacción. Esto sería un indicativo del papel que tienen los polvos originales que acompañan a las partículas en la alimentación y pueden contradecir las ideas preconcebidas en la práctica industrial, en la cual se considera que, en general, los polvos son producidos por las reacciones químicas violentas.

Los resultados son acordes también a lo observado en las Figuras (4-5) y (4-8), donde el caso del reactor en condiciones típicas industriales presentó una tendencia a la expansión más allá de la fragmentación, siendo ubicado en el tercer cuadrante de la Figura (4-8).

Los resultados anteriores para los tamaños de 50 µm y 100 µm concuerdan con observaciones experimentales sobre la morfología y distribución de tamaños de partículas en el receptáculo de un reactor a nivel laboratorio (Perez-Tello, 1999; Perez-Tello et al., 2001a; Riihilahti, 1998) las cuales mostraron que en general las partículas pequeñas en la

alimentación tienden a expandirse, mientras de tamaños mayores observan mayor fragmentación al oxidarse.

El modelo Flash3D solo funciona con mallas regulares creadas con el mismo software. Esto limitó el número y disposición de nodos evaluados en este estudio. Lo anterior hace considerar a los resultados del presente estudio como preliminares y sujetos a mejoría, una vez se solucione el uso de mallas no regulares en las simulaciones de la cámara de reacción del PCI.

## CAPÍTULO 5

### CONCLUSIONES Y RECOMENDACIONES

#### 5.1 Conclusiones.

Los resultados de este trabajo pueden resumirse como sigue:

- 1) Se desarrolló un modelo computacional tridimensional, basado en principios fundamentales, que incluyó a la oxidación, expansión, fragmentación y dispersión de energía radiante de las partículas de matas sólidas de cobre, y el cual predice la composición y distribución de tamaños en la cámara de reacción en un horno de conversión instantánea.
- 2) Como resultado de la inclusión de un régimen no isotérmico en el Modelo de Fragmentación composicional, se reportó una buena concordancia con datos experimentales recolectados en un reactor de escala laboratorio; esto, en términos de distribuciones de tamaños de partículas, cantidad de polvos y azufre remanente.
- 3) Se desarrolló el Índice de Fragmentación ( $\eta_f$ ), que representa a la predominancia de dichos fenómenos de expansión y fragmentación en la población de partículas.
- 4) La generación de polvos es el resultado de la competencia entre los fenómenos de expansión y fragmentación en la cámara de reacción del PCI.

- 5) A corta distancia del quemador, los polvos están formados en su mayoría por partículas de la alimentación que experimentan expansión y fragmentación, mientras que en el resto del horno estos consisten de fragmentos de partículas que reaccionaron parcialmente.
- 6) Las condiciones operativas que reducen la generación neta de polvos son aquellas donde se manejan 0.25 y 70 % como relación de oxígeno-mata y concentración de oxígeno en el gas de proceso, respectivamente. Lo anterior, aplicable únicamente a partículas menores de 37  $\mu\text{m}$  o material sin cribar con tamaños menores a los 149  $\mu\text{m}$ .
- 7) El fenómeno de dispersión de energía radiante sí afecta y presenta un efecto significativo sobre las variables de respuesta en las simulaciones de la cámara de reacción del PCI, por lo que debe tomarse en cuenta. Al compararse con un caso sin dispersión de energía radiante, el modelo de dispersión predijo mayores porcentajes de azufre consumido, así como menor cantidad de intercambio de calor radiativo entre las paredes del horno y las partículas.
- 8) Se desarrolló una metodología para el acoplamiento en una dirección de los modelos tridimensional de conversión instantánea con el modelo de fragmentación composicional para la oxidación de partículas de mata de cobre.
- 9) Al analizar el comportamiento del reactor industrial del PCI mediante simulación matemática y computacional, se obtuvieron las siguientes conclusiones:
  - a. Solo una de cada seis nubes de partículas alcanza a salir por la chimenea. El resto termina en el baño fundido.
  - b. En base al cálculo del índice de fragmentación de las nubes de partículas, se determinó que hay una predominancia del fenómeno de expansión sobre el fenómeno de fragmentación.
  - c. Las partículas de mayor diámetro se fragmentan en mayor medida que aquellas de tamaños menores ( $\eta_f^{100} = 0.271$  y  $\eta_f^{50} = 0.140$ ).

## 5.2 Recomendaciones.

- 1) En futuros trabajos se recomienda considerar a la dispersión de energía radiante en los cálculos y simulaciones.
- 2) Se enfatiza la necesidad de determinar experimentalmente las propiedades ópticas de las partículas de mata de cobre, con el fin de mejorar en el futuro las predicciones del modelo computacional.
- 3) Incorporar un acoplamiento en dos direcciones para los modelos MFC y Flash3D, de manera que se logre aumentar la precisión de sus predicciones.
- 4) Es de importancia buscar la validación con datos experimentales para las predicciones hechas en el reactor de escala industrial.
- 5) Para futuros trabajos, se recomienda el uso de mallas con un mayor número de elementos que permitan una mejor apreciación de los contornos de flujo.

## CAPÍTULO 6

### BIBLIOGRAFÍA

- Ahokainen, T. and Jokilaakso, A., 1998. Numerical Simulation of the Outokumpu Flash Smelting Furnace Reaction Shaft. *Canadian Metallurgical Quarterly*, 37(3-4): 275-283.
- Asteljoki, J.A., Bailey, L.K., George, D.B. and Rodolff, D.W., 1985. Flash Converting — Continuous Converting of Copper Mattes. *JOM*, 37(5): 20-23.
- Balladares E., K.U., Helle S., Parra R., Araneda E., 2014. *DYNA*, pp. 11-18.
- Baxter, L.L. and Smith, P.J., 1993. Turbulent dispersion of particles: the STP model. *Energy & Fuels*, 7(6): 852-859.
- Bird, R.B., Stewart, W.E. and Lightfoot, E.N., 2007. *Transport phenomena, revised*. New York: John Wiley & Sons, Inc.
- Chaubal, P.C., Sohn, H.Y., George, D.B. and Bailey, L.K., 1989. Mathematical modeling of minor-element behavior in flash smelting of copper concentrates and flash converting of copper mattes. *MTB*, 20(1): 39-51.
- Degterov, S.A. and Pelton, A.D., 1999. A thermodynamic database for copper smelting and converting. *Metall and Materi Trans B*, 30(4): 661-669.
- Duarte-Ruiz, C.A., Pérez-Tello, M., Parra-Sánchez, V.R. and Sohn, H.Y., 2016. The Role of Expansion and Fragmentation Phenomena on the Generation and Chemical Composition of Dust Particles in a Flash Converting Reactor. *Metall and Materi Trans B*, 47(5): 3115-3125.
- George-Kennedy D., W.R., George D., Nexhip C., 2005. FLASH CONVERTING AFTER 10 YEARS, 11th International Flash Smelting Congress, Bulgaria, Spain.
- Hagni, R.D., Vierrether, C.B. and Sohn, H.Y., 1988. Process mineralogy of suspended particles from a simulated commercial flash smelter. *MTB*, 19(5): 719-729.

- Hahn, Y.B. and Sohn, H.Y., 1990a. Mathematical modeling of sulfide flash smelting process: Part I. Model development and verification with laboratory and pilot plant measurements for chalcopyrite concentrate smelting. *MTB*, 21(6): 945-958.
- Hahn, Y.B. and Sohn, H.Y., 1990b. Mathematical modeling of sulfide flash smelting process: Part II. Quantitative analysis of radiative heat transfer. *MTB*, 21(6): 959-966.
- Intelligent-Light, 2013. *CFD Post-Processing, Visualization and Workflow Automation*.
- Jain, S., 1995. *Three-Dimensional Simulation of Turbulent Particle Dispersion Applications*, University of Utah, Salt Lake City, 95 pp.
- Jarosz, P. et al., 2016. Metamodeling and Optimization of a Blister Copper Two-Stage Production Process. *JOM*, 68(6): 1535-1540.
- Jiao, Q., Wu, L. and Themelis, N. J., 1987. Mathematical Modeling of Flash Converting of Copper Matte. *Mathematical Modeling of Materials Processing Operations*, J. Szekely, ed, 1987(The Minerals, Metals and Materials Society): 835-838.
- Jokilaakso, A.T., Suominen, R.O., Taskinen, P.A. and Lilius, K.R., 1991. "Oxidation of Chalcopyrite in Simulated Suspension Smelting. *Transactions of the Institution of Mining and Metallurgy Section C-Mineral Processing and Extractive Metallurgy*, Vol. 100: C79-C90.
- Jorgensen, F.R.A., 1983. *Proc. Australas. Inst. Min. Metall.*, pp. 37-46.
- Kemori, N., Ojima, Y. and Kondo, Y., 1988. In: H.Y.S. D.G.C. Robertson, and N.J. Themelis (Ed.), *Flash Reaction Processes: Center for Pirometallurgy Conference*. University of Utah, Salt Lake City, Utah, pp. 47-68.
- Kim, Y.H.a.T., N. J., 1986. Effect of phase transformation and particle fragmentation on the flash reaction of complex metal sulfides. *The Reinhardt Schuhmann International Symposium on Innovative Technology and Reactor Design in Extractive Metallurgy*, ed, Nov. 9-12, 1986( Colorado Springs, CO, TMS, Warrendale,PA): 349-369.
- Kimura, T., Tsuyuguchi, S., Ojima, Y., Mori, Y. and Ishii, Y., 1986. Refractory Protection by High Speed Blowing in a PS Converter. *JOM*, 38(9): 38-42.
- Kojo, I., Jokilaakso, A. and Hanniala, P., 2000. Flash smelting and converting furnaces: A 50 year retrospect. *JOM*, 52(2): 57-61.
- Kojo, I., Lahtinen, M. and Miettinen, E., 2009. Flash converting-sustainable technology now and in the future. *International Peirce-Smith Converting Centennial*: 383-395.
- M., H.A., 2008. *JOM*, 60, 33-37 pp.

- Matousek, J.W., 1998. The oxidation mechanism in copper smelting and converting. *JOM*, 50(4): 64-65.
- Modest, M.F., 2013. Radiative heat transfer. Academic press.
- Moskalyk, R.R. and Alfantazi, A.M., 2003. Review of copper pyrometallurgical practice: today and tomorrow. *Minerals Engineering*, 16(10): 893-919.
- Nelder, J.A. and Mead, R., 1965. A simplex method for function minimization. *The computer journal*, 7(4): 308-313.
- Outotec, 2017. Flash Smelting and Flash Converting.
- Parra-Sánchez, V., Pérez-Tello, M., Duarte-Ruiz, C.A. and Sohn, H., 2014. Compositional Fragmentation Model for the Oxidation of Sulfide Particles in a Flash Reactor. *Metall and Materi Trans B*, 45(2): 726-742.
- Parra-Sánchez, V.R., 2009. Modelo Cinético y de Fragmentación de la Oxidación de Partículas de Mata de Cobre en Condiciones de Conversión Instantánea, Universidad de Sonora, Hermosillo, Sonora, México, 174 pp.
- Parra-Sánchez, V.R., Pérez-Tello M., Parra-Figueroa R., Balladares-Varela E., Sánchez-Corrales V. M., Araneda A., Gómez-Álvares A., 2014. Nickolas Themelis Symposium on Pyrometallurgy and Process Engineering. In: R.P. R. Bassa, A. Luraschi and S. Demetrio (Ed.), *Copper 2013 International Copper Conference*, Santiago, Chile, pp. 267-278.
- Perez-Tello, M., 1999. Dissertation, University of Utah, Salt Lake City.
- Perez-Tello, M., Madrid-Ortega, I. and Sohn, H., 2008. Model for the fragmentation of copper matte particles during flash converting. *Minerals & Metallurgical Processing*, 25(1): 53.
- Pérez-Tello, M. et al., 2018. Evolution of Size and Chemical Composition of Copper Concentrate Particles Oxidized Under Simulated Flash Smelting Conditions. *Metall and Materi Trans B*.
- Perez-Tello, M., Sohn, H. and Smith, P., 2001a. Experimental investigation and three-dimensional computational fluid-dynamics modeling of the flash-converting furnace shaft: Part II. Formulation of three-dimensional computational fluid-dynamics model incorporating the particle-cloud description. *Metall and Materi Trans B*, 32(5): 869-886.
- Perez-Tello, M., Sohn, H., St. Marie, K. and Jokilaakso, A., 2001b. Experimental investigation and three-dimensional computational fluid-dynamics modeling of the flash-converting furnace shaft: Part I. Experimental observation of copper converting reactions in terms of

- converting rate, converting quality, changes in particle size, morphology, and mineralogy. *Metall and Materi Trans B*, 32(5): 847-868.
- Pérez-Tello, M., Tirado-Ochoa, J., Sohn, H. and Sánchez-Corrales, V., 2002a. Size distribution analysis for copper matte particles oxidized under flash-converting conditions. *JOM*, 54(10): 27-30.
- Pérez-Tello, M., Tirado-Ochoa, J.A., Sohn, H.Y. and Sánchez-Corrales, V.M., 2002b. Size distribution analysis for copper matte particles oxidized under flash-converting conditions. *JOM*, 54(10): 27-30.
- Peterson, T.W., 1986. Similarity solutions for the population balance equation describing particle fragmentation. *Aerosol science and technology*, 5(1): 93-101.
- Pineda, J.A. and Plascencia, G., 2016. Exergy in Copper Converting and Its Relation to SO<sub>2</sub> Emissions. *Journal of Sustainable Metallurgy*: 1-8.
- Riihilahti, K.M., 1997a. "Oxidation of Copper Matte Particles Under Simulated Flash Converting Conditions", Helsinki University of Technology.
- Riihilahti, K.M., Sohn, H. Y., A. and Perez-Tello, M., and Jokilaakso, 1998. Sulfide Smelting '98: Current and Future Practices. TMS: 261-73.
- Riihilahti, K.M., Sohn, H. Y., Jokilaakso, A. and Perez-Tello, M., 1997, 1997b. Oxidation of Copper Matte Particles Under Simulated Flash Converting Conditions. In: e. B. Mishra, 1997 (Ed.), EPD Congress 1997,. The Minerals, Metals and Materials Society, pp. 85-105.
- Roos, T.H., Harms, T.M. and du Toit, C.G., 2016. Conservation of scattered energy and asymmetry factor in the new Rotationally Symmetric Spherical Discretisation scheme. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 101: 205-225.
- Rosenqvist, T., 2004. Principles of extractive metallurgy. Tapir academic press.
- Schlesinger, M.E., King, M.J., Sole, K.C. and Davenport, W.G., 2011a. Chapter 2 - Production and Use, *Extractive Metallurgy of Copper (Fifth Edition)*. Elsevier, Oxford, pp. 13-30.
- Schlesinger, M.E., King, M.J., Sole, K.C. and Davenport, W.G., 2011b. Chapter 3 - Production of High Copper Concentrates – Introduction and Comminution, *Extractive Metallurgy of Copper (Fifth Edition)*. Elsevier, Oxford, pp. 31-49.
- Schlesinger, M.E., King, M.J., Sole, K.C. and Davenport, W.G., 2011c. Chapter 6 - Flash Smelting, *Extractive Metallurgy of Copper (Fifth Edition)*. Elsevier, Oxford, pp. 89-110.

- Schlesinger, M.E., King, M.J., Sole, K.C. and Davenport, W.G., 2011d. Chapter 8 - Converting of Copper Matte, *Extractive Metallurgy of Copper (Fifth Edition)*. Elsevier, Oxford, pp. 127-153.
- Shook, 1992. *Flash Converting of Chalcocite Concentrate: a Study of The Flame*, The University of British Columbia, British Columbia, 299 pp.
- Shook, A.A., Richards, G.G. and Brimacombe, J.K., 1995. Mathematical model of chalcocite particle combustion. *Metall and Materi Trans B*, 26(4): 719-729.
- Stefanova, V. and Trifonov, Y., 2008. Phase composition of spinel melts obtained during flash smelting of the mineral chalcopyrite. *Russian Journal of Non-Ferrous Metals*, 49(3): 148-155.
- Suominen, R.O., Jokilaakso, A. T., Taskinen, P. A. and Lilius, K. R, 1991. "Behavior of Copper Mattes in Simulated Flash Converting Conditions. *Scandinavian Journal of Metallurgy*, Vol. 20, No.4: 245-250.
- Suominen, R.O., Jokilaakso, A. T., Taskinen, P. A. and Lilius, K. R, 1994. "Morphology and Mineralogy of Copper Matte Particles Reacted in Simulated Flash Converting Conditions. *Scandinavian Journal of Metallurgy*, Vol. 23, No.1: 30-36.
- Swinbourne, D.R. and Kho, T.S., 2012. Computational Thermodynamics Modeling of Minor Element Distributions During Copper Flash Converting. *Metall and Materi Trans B*, 43(4): 823-829.
- Taskinen, P., 2017. Industrial use of thermodynamic simulations in pyrometallurgy. *AIP Conference Proceedings* 12.
- Vaarno, J., Jarvi, J., Ahokainen, T., Laurila, T. and Taskinen, P., 2003. Development of a mathematical model of flash smelting and converting processes, *The Proceedings of the Third International Conference on CFD in the Minerals and Process Industries*, pp. 10-12.
- Varnas, S.R. and Truelove, J.S., 1995. Simulating radiative transfer in flash smelting furnaces. *Applied Mathematical Modelling*, 19(8): 456-464.
- Wu, B., Roy, S.P., Zhao, X. and Modest, M.F., 2017. Effect of multiphase radiation on coal combustion in a pulverized coal jet flame. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 197: 154-165.
- Yli-Penttila, J.T., 1998. Dust formation in flash oxidation of copper matte particles. *Minerals & Metallurgical Processing*, 15(November): 41-47.

## ANEXOS

# The Role of Expansion and Fragmentation Phenomena on the Generation and Chemical Composition of Dust Particles in a Flash Converting Reactor



CIRILO ANDRÉS DUARTE-RUIZ, MANUEL PÉREZ-TELLO,  
VÍCTOR ROBERTO PARRA-SÁNCHEZ, and HONG YONG SOHN

A compositional fragmentation model was used to clarify the effect of expansion and fragmentation phenomena on the generation and chemical composition of dust particles in a flash converting reactor. A fragmentation index is introduced to represent the fraction of particles undergoing fragmentation, as opposed to expansion, within the particle population. Under typical operating conditions, the local dust content and the net amount of dust generated compared with the dust content in the feed first decreased and then increased along the reactor length, whereas the amount of particles undergoing fragmentation (fragmentation index) increased steadily. Dust generation was found to be the result of two competing phenomena, *i.e.*, the expansion of dust particles in the feed and the production of dust from fragmentation of large particles. At short distance from the burner tip, the dust mostly consists of particles in the feed undergoing oxidation and expansion, whereas farther down the reactor it mostly consists of fragments of partially reacted particles. Based on the computer simulations under a variety of experimental conditions, a map of dust generation against fragmentation index was developed. For most practical purposes, dust generation may be approximated by the change in the mass fraction of dust in the population. At the reactor exit, the composition of the dust is approximately the same as the entire particle population.

DOI: 10.1007/s11663-016-0758-y

© The Minerals, Metals & Materials Society and ASM International 2016

## I. INTRODUCTION

THE presence of dust particles in the off-gas stream of flash smelting and flash converting reactors is a common problem during the operation of such furnaces.<sup>[1–5]</sup> Dust particles in the off-gas stream are undesirable because they cause blockage of the transport system in the waste heat boiler and electrostatic precipitator. They also increase the time and cost of process maintenance. Although a portion of the dust recovered in the bag house is typically recycled to the reactor,<sup>[6,7]</sup> an inventory of dust must be maintained to keep the process operating under steady-state conditions. Furthermore, the handling of large amounts of dust provides opportunities for the escape of fine particles to the atmosphere, with serious implications

to the environment and the health of operators, engineers, and the human settlements near the smelter facilities.

It is generally accepted that dust is produced by the violent fragmentation of sulfide particles as they undergo oxidation in the reaction shaft of flash smelting and flash converting reactors.<sup>[4]</sup> However, so far most of the studies regarding dust generation report qualitative information obtained from microscopic observations of reacted particles oxidized under controlled laboratory conditions.<sup>[8,9]</sup> To the best of the authors' knowledge, no plant campaign has been reported in the literature that provides quantitative local information on the size distribution of the particle population along the length of the flash converting reactor and the downstream units. As a result, a number of uncertainties prevail. For instance, it is not clear how much of the dust entering the waste heat boiler was produced by fragmentation of the original particles and how much consists of fine particles in the feed that were carried away by the off-gas stream without fragmenting. The composition of dust particles as well as its relationship with the overall composition of the particle population is also unknown. An additional concern stems from the fact that no clear definition of dust has yet been adopted in this area. As an example, plant engineers typically call "dust" all particles entering the waste heat boiler and those collected in the electrostatic precipitator.<sup>[1–3,6,7]</sup> In

---

CIRILO ANDRÉS DUARTE-RUIZ, Graduate Student, and MANUEL PÉREZ-TELLO, Professor, are with the Department of Chemical Engineering and Metallurgy, University of Sonora, Hermosillo 83000 Mexico. Contact e-mail: mperez@iq.uson.mx VÍCTOR ROBERTO PARRA-SÁNCHEZ, formerly Graduate Student with the Department of Chemical Engineering and Metallurgy, University of Sonora, is now Postdoctoral Visiting Researcher with the University of Concepción, Chile. HONG YONG SOHN, Professor, is with the Departments of Metallurgical Engineering and Chemical Engineering, University of Utah, Salt Lake City, UT 84112.

Manuscript submitted April 6, 2016.

Article published online July 22, 2016.

contrast, “dust” has been used by several researchers<sup>[4,10,11]</sup> to refer to fine particles produced by fragmentation of large particles upon oxidation. Such ambiguity in the terminology is confusing and makes the analysis of this topic difficult.

The present authors reported on extensive experiments<sup>[10,12,13]</sup> on the oxidation of copper matte particles in a large laboratory flash converting reactor. Input variables tested in the experiments included particle size in the feed, the oxygen-to-matte ratio and oxygen concentration in the process gas. Output variables measured in the reacted particles included its chemical composition and size distribution in the receptacle. In a further investigation, Pérez-Tello *et al.*<sup>[14]</sup> developed the first fragmentation model capable of predicting the size distribution of the particle population under flash converting conditions. The model was verified by comparing the predicted values with the experimental data measured in the receptacle of the above-mentioned laboratory reactor. Although a good agreement was obtained, the largest discrepancy was observed for particles in the range of 0 to 20  $\mu\text{m}$ . Recently, Parra-Sánchez *et al.*<sup>[15]</sup> improved the fragmentation model developed by Perez-Tello *et al.*<sup>[14]</sup> by coupling a kinetic model for the oxidation reactions with the population balance equations describing the evolution of the size distribution. A new mathematical expression to represent the distribution of daughter particles upon fragmentation of their mother particle was developed. The resulting compositional fragmentation model (CFM) significantly improved the predictions of the previous model<sup>[14]</sup> in the size range of 0 to 20  $\mu\text{m}$ . The new formulation also predicted the sulfur content in the particle population with good accuracy. Because the CFM<sup>[15]</sup> was verified, it can be used to analyze the main features of the flash converting reactor. The goal of this investigation was to clarify the role of expansion and fragmentation phenomena on the behavior of dust particles in the shaft of a flash converting reactor. For that purpose, the CFM was used, as described below.

## II. TERMINOLOGY AND SIMULATION STRATEGY

In this work, dust is defined as any particle within the size range of 0 to 20  $\mu\text{m}$ , regardless of its origin or chemical composition. The size distribution of a population of particles at time  $t$  is represented by the discretized mass density function  $f_3(x_i)$  defined by

$$f_3(x_i) = \frac{m_i}{\left(\sum_{i=1}^N m_i\right)} (\Delta x_i) \quad i = 1, N, \quad [1]$$

where  $x_i$  is the mean size of the particles contained within the  $i$ th size fraction;  $\Delta x_i$  is the size interval;  $m_i$  is the mass of particles contained within the  $i$ th size fraction;  $N$  is the number of size fractions in the population at time  $t$ ; and the summation on the right-hand side represents the total mass of the population of particles. In this notation,  $x_1$  and  $x_N$  represent,

respectively, the smallest and the largest sizes in the population. From Eq. [1], the mass fraction of the population of particles corresponding to dust at time  $t$  is given by

$$F_d = \sum_{i=1}^d f_3(x_i) (\Delta x_i), \quad [2]$$

where  $d$  is the size interval for which  $x_d = 20 \mu\text{m}$ . It is noted that  $F_d$  is an indicator of the proportion of dust in a given population of particles. This quantity is defined as the mass of all particles within the size range of 0 to 20  $\mu\text{m}$  divided by the mass of the particle population. Therefore, the quantity  $100F_d$  represents the percentage of the mass of the entire population of particles that corresponds to dust. For a flash converting operation, it is convenient to define the change in dust fraction in the population of particles from that in the feed as follows:

$$\Delta F_d = F_d - F_{df}, \quad [3]$$

where subscript  $f$  stands for the feed to the reactor. Symbol  $\Delta F_d$  represents the change in the proportion of dust in the population of particles up to time  $t$  with respect to its value in the feed. This quantity may be positive, negative, or zero. Positive values indicate that the proportion of dust in the population increased with respect to its value in the feed. Negative values indicate that the proportion of dust decreased with respect to its value in the feed. Finally,  $\Delta F_d$  is zero when the proportion of dust in the population remained unchanged with respect to its value in the feed.

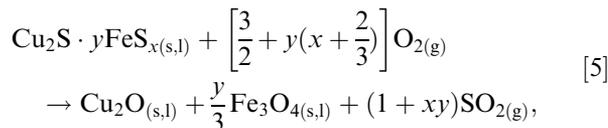
Because dust particles may be present in both the feed and the reacted product, the mass generation of dust relative to the mass of feed up to a given location in the reactor  $G_d$  is defined as

$$G_d = \frac{F_{dp}m_p - F_{df}m_f}{m_f}, \quad [4]$$

where subscripts  $p$  and  $f$  stand for the oxidation product and the feed, respectively, and  $m$  is the mass of the population of particles specified by the subscripts. The numerator is the net mass of dust produced up to a given location in the reactor. Thus,  $G_d$  represents the net mass of dust generated per unit mass of solid feed. It is noted that Eq. [4] reduces to Eq. [3] for the special case  $m_p = m_f$ . Therefore, when the mass of the population of particles remains unchanged during flight, the change in dust content  $\Delta F_d$  also represents the net amount of dust generated in the reactor per unit mass of solid feed. In general,  $m_p \neq m_f$  because the stoichiometry of the oxidation reactions involve changes in the mass of the reacting particles. It is noted that  $G_d$  defined by Eq. [4] may take on either positive or negative values. Positive values indicate that net generation of dust occurred in the reactor. Negative values indicate that a net consumption of dust occurred in the reactor. The special case  $G_d = 0$  indicates that neither generation nor consumption of dust occurred in the reactor up to a given location.

The compositional fragmentation model (CFM) used in this work follows a Lagrangian approach and is based on the reaction path for the oxidation of sulfide particles originally proposed by Kim and Themelis<sup>[16]</sup> and further modified by Jokilaakso *et al.*<sup>[8]</sup> Details of the formulation are discussed elsewhere,<sup>[15]</sup> and thus, only a brief summary is presented here. Input data to the CFM include the particle size distribution and chemical composition of the feed, furnace wall temperature, and the oxygen concentration in the process gas. Also required are the values of six model parameters: the rate of particle expansion during flight  $g$ , the critical size parameter  $f_c$  which establishes the size at which fragmentation starts to occur, the mass fractions of the smallest and largest sizes in the population that achieve fragmentations  $f_{2f}$  and  $f_{nf}$ , respectively, the fragmentation distribution parameter  $\gamma$ , and the tortuosity of the oxide shell formed during particle oxidation  $\tau$ . Based on such information, the CFM computes the trajectories of all individual sizes in the feed during their flight through the reaction shaft. The model assumes that the particles continuously expand upon entering the reactor until they achieve a critical size, upon which fragmentation starts to occur. Once initiated, fragmentation is assumed to continue along the reactor length.

The particle chemical composition is computed by solving a kinetic model representing the oxidation of copper matte with gaseous oxygen according to the following reaction that forms an oxide product layer around an unreacted matte core:



where  $x$  is the sulfur-to-iron atomic ratio and  $y$  is the  $\text{FeS}_x$ -to- $\text{Cu}_2\text{S}$  molar ratio in the matte. The values of both  $x$  and  $y$  were determined experimentally from the chemical analyses of the original particles by means of atomic absorption spectroscopy (AAS) techniques. Before the particle melts, Reaction [5] was assumed to be controlled by both mass transfer of oxygen from the bulk gas to the particle surface and the diffusion of oxygen gas through the porous oxide shell, according to a shrinking core model. Once the particle becomes fully molten, the oxidation was assumed to be controlled by the mass transfer of oxygen from the bulk gas to the surface of the reacting droplet. The Lagrangian calculations are conducted for all  $n$  sizes in the feed, after which Eq. [1] is used to compute the size distribution in the population of particles at time  $t$  along the particle trajectory. The evolution of the chemical composition of all size fractions is computed as a function of time in the reaction shaft. During flight, both expansion and fragmentation of particles occur simultaneously along the trajectory of the particle population. The extents to which both phenomena occur are dependent upon the individual sizes in the feed and the operating conditions.

In the previous study conducted in this laboratory,<sup>[15]</sup> the relationships between specific sizes in the feed and

those obtained in the reacted products were obtained by introducing the cumulative contribution and distribution coefficients. Such quantities provided detailed information on the size changes experienced by individual particles during flash converting. The motivation of the present study was to provide an overall analysis of the flash converting reactor which may be useful from a process engineer's perspective. In this work, a fragmentation index  $\eta_f$  is introduced to represent the extent to which fragmentation has occurred within the particle population as a whole. This quantity is defined as the mass fraction of the solid feed entering the reactor that undergoes fragmentation up to time  $t$ . In terms of the characteristics of the particle population used in the CFM, the above definition leads to the following expression:

$$\eta_f = \sum_{i=1}^n f_3(x_{i0})(\Delta x_i) f_i \quad i = 1, n, \quad [6]$$

where  $f_3(x_{i0})$  and  $n$  are, respectively, the mass density function and the number of size fractions in the population of particles in the feed, and  $f_i$  is the mass fraction of the  $i$ th size particles in the feed that undergoes fragmentation up to time  $t$  in the reactor. It is noted that  $n < N$  because particle expansion increases the number of sizes in the population. Quantities  $f_i$  are computed within the CFM once the input data for a given run is specified. During flight, those particles in the feed that do not undergo fragmentation up to time  $t$  are assumed to undergo expansion. Therefore, quantity  $(1 - \eta_f)$  represents the mass fraction of the solid feed that undergoes expansion up to time  $t$  without fragmenting.

The fragmentation index defined by Eq. [6] may take on values in the range of zero to unity. When  $\eta_f = 0$ , no fragmentation has occurred, and the population is made up of the initial particles in the feed undergoing expansion. Similarly, when  $\eta_f = 1$ , the whole population is made up of fragments. The special case  $\eta_f = 0.5$  indicates that half of the solid feed entering the reactor undergoes fragmentation up to time  $t$ , whereas the other half undergoes expansion without fragmenting. Therefore, the value  $\eta_f = 0.5$  establishes the limit of predominance of both expansion and fragmentation phenomena in the population. As a result, when  $\eta_f$  is in the range  $0 \leq \eta_f < 0.5$ , particle expansion prevails. Similarly, when  $0.5 < \eta_f \leq 1$ , particle fragmentation prevails. It is emphasized that predominance of either phenomenon does not imply that the other does not occur in the population. The fragmentation index  $\eta_f$  is thus an overall indicator of the prevalence of expansion and fragmentation phenomena in the whole population of particles.

In addition to the size changes experienced by the particles, it is of interest to investigate the chemical composition of dust particles during their flight in the reaction shaft. In this work, the sulfur content was used to represent the chemical composition of the particles, assuming the oxidation of S, Cu, and Fe occurs according to the stoichiometry of Reaction [5]. The

**Table I. Simulation Runs and CFM Parameters used in the Calculations<sup>[15]</sup>**

Run No.	Size Fraction in the Feed ( $\mu\text{m}$ )	Oxygen-to-Matte Ratio (kg O <sub>2</sub> /kg Matte)	O <sub>2</sub> Concentration in Process Gas, (vol pct)	$g$ ( $\mu\text{m/s}$ )	$-\gamma$	$f_{2f}$	$f_{nf}$	$f_c$	$\tau$
1	<37	0.25	70	57	2.41	0.66	-0.06	1.1	800
2	<37	0.33	70	18	2.37	0.87	-1.62	1.0	950
3	<37	0.25	100	55	2.54	0.83	-0.15	1.2	1100
4	<37	0.33	100	55	2.70	0.80	-0.42	1.3	1000
5	37-74	0.25	70	18	2.27	0.22	1.15	1.1	800
6	37-74	0.33	70	38	2.51	0.60	0.91	1.2	700
7	37-74	0.25	100	19	2.33	0.31	0.81	1.1	1100
8	37-74	0.33	100	40	2.53	0.81	0.51	1.2	1000
9	74-105	0.25	70	6	2.62	0.24	0.63	1.0	550
10	74-105	0.33	70	17	2.56	0.39	1.03	1.1	600
11	74-105	0.25	100	6	2.48	0.03	1.08	1.0	750
12	74-105	0.33	100	26	2.66	0.60	0.70	1.1	775
13	105-149	0.25	70	5	2.76	-0.22	1.27	1.0	400
14	105-149	0.33	70	13	2.62	0.45	0.74	1.0	450
15	105-149	0.25	100	6	2.66	0.17	0.99	1.0	600
16	105-149	0.33	100	12	2.81	0.15	1.12	1.0	700
17 (A)	<149	0.25	70	58	2.36	-0.02	1.45	1.0	600
18	<149	0.33	70	47	2.75	-0.06	1.75	1.1	600
19	<149	0.25	100	60	2.73	0.21	0.99	1.2	800
20 (B)	<149	0.33	100	51	2.64	0.43	1.11	1.2	800

average sulfur content in dust  $\langle\omega_S\rangle_d$  at time  $t$  was computed from

$$\langle\omega_S\rangle_d = \frac{\sum_{i=1}^d \omega_{S,i} f_3(x_i) (\Delta x_i)}{\sum_{i=1}^d f_3(x_i) (\Delta x_i)}, \quad [7]$$

where  $\omega_{S,i}$  is the mass fraction of sulfur in a particle with size  $x_i$ , and other symbols have been defined previously. Quantities  $f_3(x_i)$  and  $\omega_{S,i}$  in Eq. [7] are instantaneous values. The former was computed from Eq. [1] along the trajectory of the particle cloud, whereas the latter was computed by solving the rate equation for the oxidation of individual particles traveling through the reactor. In the present formulation, fragmentation was assumed to produce daughter particles with the same apparent density and chemical composition as their mother particle. It is also assumed that daughter particles do not react any further in the reactor, so that their size and chemical composition remain unchanged throughout the reaction shaft. Because the mechanisms governing particle fragmentation are unknown, these assumptions were made for mathematical simplicity and may be relaxed in the future as new experimental evidence becomes available. During the calculations, the properties of the reacting particles such as mass, apparent density, and chemical composition are stored as they travel through the reaction shaft. This information is further used to calculate the properties of all particles in the reactor at any time.<sup>[15]</sup>

It is noted that symbol  $\langle\omega_S\rangle_d$  in Eq. [7] is defined as the mass of sulfur contained in all particles with sizes in the range of 0 to 20  $\mu\text{m}$  divided by the mass of those particles, *i.e.*, it is an average sulfur content. This quantity may be obtained experimentally by sieving a

sample of the particle population collected at a given location in the reactor and analyzing its chemical composition. Similarly, the average sulfur content in the population of particles  $\langle\omega_S\rangle$  can be obtained by conducting the summations on the right-hand side of Eq. [7] over all sizes in the population,  $N$ . Based on the definition of the density function given by Eq. [1], the denominator on the right-hand side of Eq. [7] becomes unity, and

$$\langle\omega_S\rangle = \sum_{i=1}^N \omega_{S,i} f_3(x_i) (\Delta x_i). \quad [8]$$

The symbol  $\langle\omega_S\rangle$  thus represents the mass of sulfur contained in all particles in the population divided by the mass of the whole population. Eqs. [7] and [8] allow the comparison between the average sulfur content of dust particles and that of the population at any location along the reactor.

The major goal of this investigation was to clarify the role of expansion and fragmentation phenomena on the general characteristics of dust particles in a flash converting reactor under a variety of operating conditions. Table I shows the simulation runs considered in this study, as well as the CFM parameters used in the calculations. The operating conditions shown in Table I correspond to all the experiments conducted in the laboratory flash converting reactor at the University of Utah.<sup>[10,12,13]</sup> For the purpose of further discussion, Runs 17 and 20 were labeled as cases A and B, respectively. In both the runs, the solid feed consisted of unsieved copper matte particles containing a wide range of sizes. This is a typical feed to the industrial reactor. Details of the size distributions of all size fractions shown in Table I and their representation by a set of empirical expressions are presented elsewhere.<sup>[17]</sup>

**Table II. Parameters for the Simulations Runs<sup>[15]</sup>**

Parameter	Value
Reactor length	2 m
System pressure	87.1 kPa
Furnace wall/gas temperature	1350 K (1077 °C)
Particle velocity	2.3 m/s
Particle initial temperature	298 K (25 °C)
Temperature of incipient reaction	800 K (527 °C)
Melting point of unreacted core	1155 K (882 °C)
Melting point of oxide layer	1473 K (1200 °C)
Molar density of matte	31.6 kmol/m <sup>3</sup>
Molar density of Cu <sub>2</sub> O	37.7 kmol/m <sup>3</sup>
Molar density of Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	22.4 kmol/m <sup>3</sup>
Particle emissivity	0.85
Heat of reaction	400 + 600y kJ/mol of matte
FeS <sub>x</sub> -to-Cu <sub>2</sub> S molar ratio, y	0.14
S to Fe atomic ratio, x	0.93
Time step to solve the kinetic model	10 <sup>-5</sup> s

In this paper, cases A and B are shown as examples of the capabilities of the present formulation to provide detailed information for the analysis of a flash converting reactor. Case A corresponds to typical operating conditions in which the amount of oxygen supplied to the reactor was the stoichiometric amount to oxidize all the sulfur in the particles to sulfur dioxide, and all the iron to magnetite. Also, the oxygen concentration in the process gas was set to 70 pct by volume. In contrast, case B represents the most severe oxidizing conditions tested in the experiments,<sup>[10,12,13]</sup> in which the amount of oxygen supplied to the reactor was higher than the stoichiometric amount, and the process gas consisted of pure oxygen.

Table II shows the parameters that were kept constant in all the simulation runs shown in Table I. They include the reactor characteristics as well as the input data to solve the rate equation for individual particles. The size distributions in the feed<sup>[17]</sup> and the population of particles along the reactor were represented by setting  $n = 200$  and  $N = 410$ , respectively. With such information, the CFM was solved according to the procedure described by Parra-Sánchez *et al.*<sup>[15]</sup> To track the characteristics of both dust and the population of particles, 20 equidistant locations along the reactor were set, and their numerical results were smoothed for graphical purposes. The first location at axial distance equal to zero was set at the burner tip, whereas the last location corresponds to the end of the reaction shaft.

### III. DISCUSSION OF RESULTS

For the purpose of the present discussion, any particle with size in the range of 0 to 20  $\mu\text{m}$  is referred to as dust or dust particle. Particles with sizes larger than 20  $\mu\text{m}$  are called large particles. In both cases, the definitions make no distinctions regarding the chemical composition and state of matter of the particles under consideration. In what follows, the analysis of cases A and B is

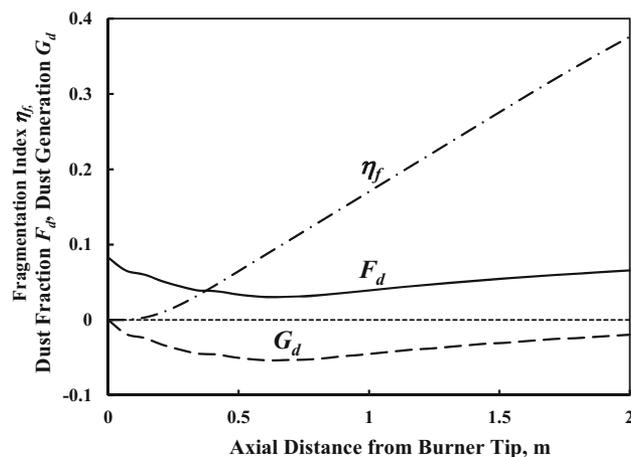


Fig. 1—Profiles of fragmentation index, mass fraction of dust, and dust generation for case A.

presented first; the results of Runs 1 through 20 in Table I are discussed later.

#### A. Analysis of Dust Characteristics in a Flash Converting Reactor

The goal of this section is to show the capabilities of the CFM to provide a detailed analysis of a flash converting reactor. Figure 1 shows the values of the fragmentation index  $\eta_f$ , the mass fraction of dust  $F_d$ , and dust generation  $G_d$  as functions of the reactor length for case A. The dotted line shown at the ordinate value of zero is aimed at separating the regions in which  $G_d$  may take on either positive or negative values, as defined by Eq. [4]. It is noted that the fragmentation index  $\eta_f$  remained close to zero within the first 0.14 m from the burner tip. Thus, in this region, all particles entering the reactor initiated expansion, but no fragmentation has taken place. Particle fragmentation started beyond 0.14 m and occurred continuously in the particle population, as the fragmentation index increased mostly linearly with the axial distance.

By the time, the particle population reached the reactor exit, about 38 pct ( $\eta_f = 0.38$ ) of the solid mass entering the reactor underwent fragmentation, whereas the remaining 62 pct underwent expansion without fragmenting. The above results may be in contrast with preconceived ideas in the industrial practice, which in general assume that particle fragmentation predominates in the flash converting reactor. During the industrial operation, an undetermined number of reacted particles that did not reach the molten bath are typically carried away by the turbulent off-gas stream toward the waste heat boiler and electrostatic precipitator, where they can continue to oxidize and possibly undergo fragmentation. The present analysis is focused on the phenomena occurring within the reaction shaft only. Thus, the transformations occurring in the particles upon leaving the shaft are not considered in the present study.

A significant feature in Figure 1 is the fact that beyond 0.14 m, the fragmentation index increased

mostly linearly with the axial distance along the reactor. The analysis of a number of simulations under a variety of experimental conditions showed that the shape of the plot,  $\eta_f$  against axial distance, strongly depends upon the rate of fragmentation occurring within the particle population, *i.e.*, the larger the fragmentation rate, the steeper the slope of  $\eta_f$  and the larger its curvature. Figure 1 thus indicates that for most practical purposes, once fragmentation started in the particle population, its rate was mostly uniform throughout the reactor. As will be discussed later in this paper, this was one of the major differences observed with case B.

Regarding the behavior of the fraction of dust in the particle population, Figure 1 shows a number of features. First,  $F_d$  does not vary monotonously along the reactor but shows a minimum. It should be recalled that  $F_d$  is a local value that represents the proportion of dust in the particle-gas suspension (Eq. [3]), *i.e.*, it does not represent the net amount of dust in the particle population. The latter quantity is given by  $F_{d,p}m_p$ , the behavior of which may be slightly different from that of  $F_d$  because of the reduction in the total mass of the condensed phase  $m_p$  upon oxidation. From Eq. [4], the behavior of the amount of dust in the population  $F_{d,p}m_p$  is the same as that of dust generation  $G_d$ , which is discussed later in this paper.

Figure 1 also shows that the feed to the reactor contained about 8 pct by weight of dust ( $F_d = 0.08$ ). As the particle population traveled through the reaction shaft,  $F_d$  decreased to a minimum of 3 pct ( $F_d = 0.03$ ) at 0.62 m from the burner tip due to expansion, and it further increased to achieve the final value of 6 pct ( $F_d = 0.06$ ) at the reactor exit. The presence of a minimum in the value of  $F_d$  along the reactor may be explained in terms of the competition between the rate of expansion of dust particles in the feed and the rate of fragmentation of large particles in the population to produce dust. Upon entering the reaction shaft, dust particles in the feed start oxidation and a shell of oxides begin to form surrounding the solid matte core. When the core of sulfides melts, the ongoing oxidation produces bubbles of sulfur dioxide gas that coalesce and accumulate inside the particle, thus increasing the internal pressure.<sup>[8]</sup> The gas inside the particle then pushes the oxide shell out, and particle expands. Although expansion also occurs in large particles in the feed, they typically fall into the molten bath and do not cause the same problems as dust particles.

Regarding Figure 1, this situation prevailed within the first 0.14 m while no significant fragmentation had yet occurred in the population, as shown by the values of the fragmentation index. Because dust particles in the feed that expanded to large sizes were not replaced by new dust particles produced by the fragmentation of large sizes, the mass fraction of dust in the population of particles decreased. As the particles traveled beyond 0.14 m, the oxidation rate of the particle population as a whole increased, and so did the fragmentation rate of the reacting particles. As a result, the rate of expansion of dust particles in the feed reacting at those locations was gradually compensated by the rate of fragmentation

of large reacting particles producing dust fragments. When the rate of both phenomena became equal, the value of  $F_d$  reached a minimum. In the present case, such a situation occurred at 0.62 m from the burner tip. Beyond that location, the rate of fragmentation of large particles producing dust overcame the rate of expansion of dust particles in the feed, and the value of  $F_d$  increased along the reactor until the population of particles reached the reactor exit. As a result, within the last portion of the reactor length, dust was locally produced.

The above discussion indicates that the flash converting reactor may be analyzed as two sections in series. In the first section next to the reactor entry, the rate of expansion of dust particles prevailed, and the amount of dust decreased. Farther down the reactor, as the oxidation reactions became violent, the rate of formation of dust fragments prevailed, and there was net production of dust. In the present case, the length of the net dust-producing section (1.38 m) was larger than the length of the net dust-consuming section (0.62 m). The presence of two sections in the flash converting reactor does not contradict the behavior of the fragmentation index shown in Figure 1, which indicates that particle expansion prevailed throughout the reactor ( $0 \leq \eta_f < 0.5$ ). This is because  $\eta_f$  represents fragmentation into particles of any size, not just dust size, whereas the previous analysis focused on the range of 0 to 20  $\mu\text{m}$ . It is thus concluded that the fragmentation index alone cannot be used to infer the behavior of dust particles in the flash converting reactor.

Finally, Figure 1 shows the values of the net generation of dust  $G_d$  computed from Eq. [4] as a function of the axial distance. The shape of this plot is similar to that of  $F_d$  discussed previously. This is expected because Eq. [4] reduces to Eq. [3] when the mass of the particle population does not change significantly along the reactor, *i.e.*,  $m_p \approx m_f$ . This is indeed the case for Reaction [5], which decreases the weight of a reacting particle to 90 pct of its initial value when proceeding to completion. Because the reacting particles in the population oxidized unevenly in the reaction shaft, and a number of them underwent fragmentation before they were fully oxidized, in the present case, the assumption  $m_p \approx m_f$  is a reasonable approximation to the real situation in the reactor.

Figure 1 shows that  $G_d$  took on negative values all the way along the reactor, with a minimum of  $G_d = -0.05$ . Therefore, the net effect of the flash converting reactor was to reduce the amount dust in the population. Because at the reactor exit  $G_d = -0.02$ , the reduction in the amount of dust represents 2 pct of the solid feed. This may seem contradictory to the presence of a dust-producing section beyond 0.62 m, which was discussed previously. While in the dust-generation section dust was produced from fragmentation of large particles, the rate at which dust was produced was not sufficient to surpass the amount of dust that entered the reactor. As a result, even within the dust-generation section of the reactor, the amount of dust in the population of particles was less than the amount of dust

in the feed. At this point, the differences in the physical significance of  $G_d$  and  $F_d$  should be emphasized. Whereas  $G_d$  is an overall indicator of the generation of dust per unit mass of solid feed up to a given position in the reactor,  $F_d$  indicates the local proportion of dust in the population of particles.

The previous discussion can be readily extended to the results for case B shown in Figure 2. In contrast to the behavior shown in Figure 1, in case B the fragmentation index  $\eta_f$  took on values greater than zero immediately after the entrance to the reactor, increased gradually within the first 0.35 m, and further increased rapidly in a nonlinear manner up to the final value of  $\eta_f = 0.62$  at the reactor exit. Therefore, the population of particles started fragmentation immediately after it entered the reactor and as it traveled, its rate of fragmentation increased. Because the shape of  $\eta_f$  is related to the oxidation rate, in case B, the rate of Reaction [5] was more violent than that in case A. As a result, at the exit of the reaction shaft 62 pct of the solid feed underwent fragmentation. The extent of expansion and fragmentation were equal ( $\eta_f = 0.5$ ) at 1.8 m from the burner tip.

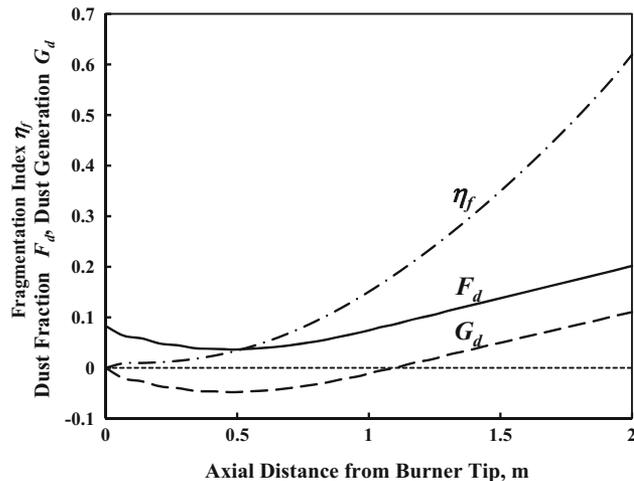


Fig. 2—Profiles of fragmentation index, mass fraction of dust, and dust generation for case B.

Thus, particle expansion prevailed within the first 1.8 m, whereas fragmentation prevailed within the last 0.2 m. It is of interest to note that the oxidizing conditions tested in case B are unlikely to be used in industrial practice. Figure 2 shows that despite such extreme conditions, particle expansion prevailed over 90 pct of the reactor length.

Regarding the behavior of  $F_d$ , Figure 2 shows a similar trend to that observed in Figure 1: a minimum ( $F_d = 0.04$ ) is observed at 0.48 m from the burner tip, after which  $F_d$  increased steadily up to the final value  $F_d = 0.2$  at the reactor exit. This result notably differs from case A which showed the opposite trend. Thus, in case B, dust was consumed within the first 0.48 m, whereas dust was produced within the last 1.52 m. It is noted that the latter result was of similar order of magnitude as that in case A (1.38 m) even though the oxidizing conditions were significantly different. Therefore, the length of the dust-producing section was rather insensitive to the operating conditions. In contrast, Figure 2 shows that both  $F_d$  and  $G_d$  were strongly dependent on the operating conditions. The general shape of  $G_d$  in Figure 2 is similar to that of  $F_d$ , with a minimum  $G_d = -0.05$  at 0.48 m. A significant feature in this plot is that  $G_d$  turned from negative to positive values at 1.1 m from the burner tip. Therefore, within the first 1.1 m, there was a net consumption of dust, whereas farther down, there was a net generation of dust in the reactor. At the reactor exit, the generation of dust represented 11 pct of the solid feed.

Although the values of  $F_d$  and  $G_d$  in cases A and B showed a minimum along the reactor length, such a behavior was not a general rule. A summary of the relevant results from Figures 1 and 2 are shown in Table III, in which the last row shows the overall evaluation based on the values of  $\eta_f$  and  $G_d$  at the reactor exit. According to such criteria, case A is classified as an expansion-predominant operation with net consumption of dust. Similarly, case B is a fragmentation-predominant operation with net generation of dust.

A relevant issue concerning the operation of a flash converting reactor is the clarification of the chemical composition of dust. Figure 3 shows the average sulfur content in dust particles along the reactor for cases A

Table III. Summary of Relevant Results for Cases A and B

Characteristic	Location/Condition	Case A	Case B
$\eta_f$	reactor exit	0.38	0.62
$F_d$	reactor exit	0.06	0.2
$G_d$	reactor exit	-0.02	0.11
min ( $F_d$ )	minimum	0.03	0.04
min ( $G_d$ )	minimum	-0.05	-0.05
Length of expansion predominance, $m$	$0 \leq \eta_f < 0.5$	2	1.8
Length of fragmentation predominance, $m$	$0.5 < \eta_f \leq 1$	0	0.2
Length of dust-consuming section, $m$	$F_f > F_d > \min(F_d)$	0.62	0.48
Length of dust-producing section, $m$	$\min(F_d) < F_d \leq F_d(\text{exit})$	1.38	1.52
Length of net consumption of dust, $m$	$G_d < 0$	2	1.1
Length of net generation of dust, $m$	$G_d > 0$	0	0.9
Overall evaluation	reactor exit	expansion-predominant net dust consumption	Fragmentation-predominant net dust generation

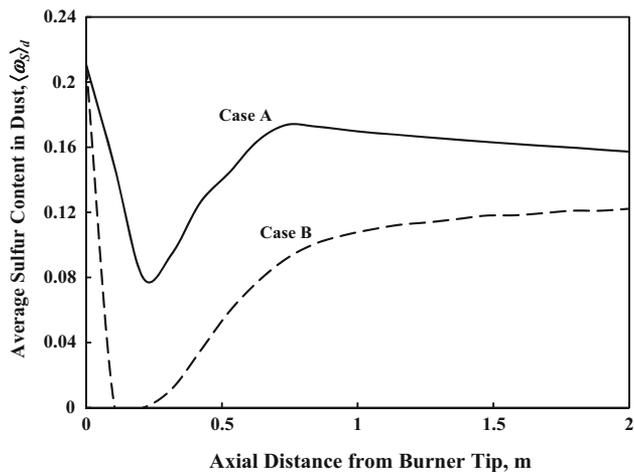


Fig. 3—Profiles of average sulfur content in dust particles for cases A and B.

and B, in which the values were computed from Eq. [7]. Because the chemical composition of the initial particles was uniform, the average sulfur content in dust is equal to that of the feed at the reactor entry. Upon entering the reaction shaft, the particle population initiated oxidation, and a sharp minimum in sulfur content is observed within the first 21 cm below the burner tip.

According to Table III, at these locations, particle expansion was the predominant phenomenon in the population in both cases, and fragmentation was incipient. Therefore, within the first 21 cm, dust mostly consisted of particles in the feed undergoing oxidation and expansion. Because of its high reactivity, the average sulfur content in dust decreased sharply upon entering the reaction shaft. Thus in case A, the value of  $\langle \omega_S \rangle_d$  decreased to 8 pct, whereas in case B all the sulfur in the feed dust was eliminated when the particles reached 10 cm below the burner tip. Therefore, the value of  $\langle \omega_S \rangle_d$  was zero within the interval of 10 to 21 cm. At these locations, no significant production of dust occurred as a result of fragmentation, which is associated with bursting of molten sulfide droplets due to the rapid production of sulfur dioxide gas.

The average sulfur content of dust at the minimum shown in Figure 3 is a relevant result. Because in case A this value was nonzero, this implies that a portion of dust particles at these locations continued to react further in the reaction shaft. As a result, the changes in  $\langle \omega_S \rangle_d$  observed farther down the reactor may be attributed to two factors: (1) the oxidation and expansion of reacting dust particles, and (2) the fragmentation of large particles to produce dust fragments. In contrast, in case B, all dust particles at the minimum shown in Figure 3 were completely oxidized. Furthermore, the changes in  $\langle \omega_S \rangle_d$  observed farther down the reactor can be solely attributed to the fragmentation of large particles to produce dust.

Beyond 21 cm below the burner tip, the value of  $\langle \omega_S \rangle_d$  increased rapidly in both cases up to about 75 cm. Based on the previous discussion, the major cause for such a trend was the fragmentation of large, partially reacted

particles that contributed to the mass of dust in the population. Because the chemical compositions of the mother and daughter particles were assumed to be the same, the dust fragments of partially reacted particles increased the amount of sulfur in dust. This hypothesis is consistent with Figures 1 and 2 that showed that the fragmentation index in both the runs increased rapidly within the range of 21 to 75 cm. It is noted that farther down the reactor, the behavior of cases A and B differed significantly. In the former, the average sulfur content  $\langle \omega_S \rangle_d$  decreased continuously up to the reactor exit, whereas the opposite trend was observed in the latter. This discrepancy is mostly attributed to the origin of dust fragments in each case, which was dependent upon the operating conditions.

It is of interest to note that the shape of the average sulfur content profiles shown in Figure 3 was similar in all runs shown in Table I. For the sake of brevity, such results are not presented here. This indicates that the above discussion is valid for any set of operating conditions in the flash converting reactor. Thus in general, within a short distance from the burner tip, dust mostly consists of particles in the feed undergoing oxidation and expansion, whereas farther down the reactor, it mostly consists of fragments of partially reacted particles.

#### B. Overall Trends of Dust Characteristics

Regarding the previous discussion of Figure 2, it may be reasonable to expect that whenever expansion prevails in the population of particles ( $0 \leq \eta_f < 0.5$ ), a net consumption of dust occurs ( $G_d < 0$ ). However, such a hypothesis was found to be false. An example of failure of this statement is shown in Figure 2 within the interval 1.1 to 1.8 m. In this section of the reactor, particle expansion prevailed ( $0.18 \leq \eta_f < 0.5$ ), and yet a net generation of dust occurred ( $0 \leq G_d \leq 0.09$ ). Therefore, the predominance of particle expansion in the whole population did not guarantee a net consumption of dust in the reactor. To clarify this point, the values of  $G_d$  for all runs shown in Table I are plotted against  $\eta_f$  in Figure 4. Here the physical location in the reactor is implicit in the values of both  $\eta_f$  and  $G_d$ . Because the fragmentation index  $\eta_f$  in all runs increased steadily as the particle population traveled through the reaction shaft, the curve corresponding to each run can be read from left to right to show the simultaneous evolution of  $\eta_f$  and  $G_d$  along the reactor. Based on the criteria presented in Table III, the values of  $\eta_f$  and  $G_d$  established four quadrants, which are numbered as I through IV. Figure 4 shows thus a map that summarizes the role of expansion and fragmentation phenomena occurring in the whole population  $\eta_f$  relative to the net generation of dust in the reactor  $G_d$ . It is noted that the values of the pair  $(\eta_f, G_d)$  occurred in all quadrants. Therefore, net generation of dust occurred under both expansion-dominated (I) and fragmentation-dominated (II) conditions. Similarly, net consumption of dust occurred under both expansion-dominated (III) and fragmentation-dominated (IV) conditions. Overall, the

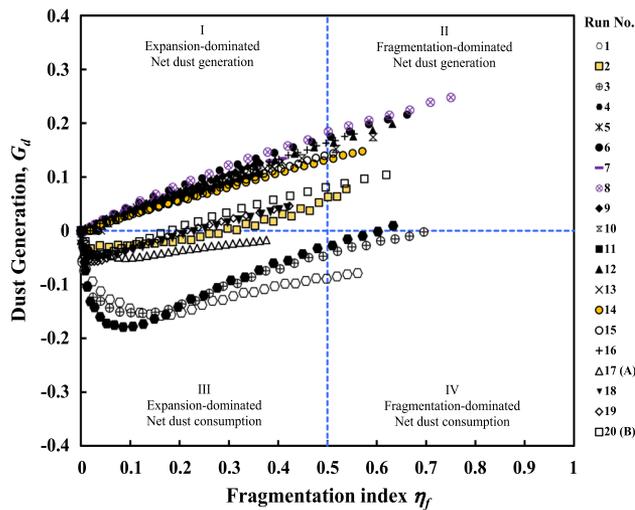


Fig. 4—Map of dust generation against fragmentation index for all runs shown in Table I.

number of points contained in each quadrant followed the order I (50 pct) > III (42 pct) > II (6 pct) > IV (2 pct). Because 92 pct of the points were located in quadrants I and III, particle expansion prevailed in all runs along a significant portion of the reactor. Furthermore, in 7 out of 20 runs (Runs 5, 9, 11, 13, and 17 to 19), expansion was still prevailing when the particles reached the reactor exit. In contrast, in 13 out of 20 runs (Runs 1 to 4, 6 to 8, 10, 12, 14 to 16 and 20), fragmentation prevailed in the particles at the reactor exit.

An alternative interpretation of Figure 4 can be made by adding the number of points in quadrants I and II, as well as quadrants III and IV. This yields 56 and 44 pct, respectively. Such values indicate that the number of locations at which dust was generated in the reactor (56 pct) was slightly higher than those at which dust was consumed (44 pct), regardless of the predominant phenomenon in the whole population of particles. This confirms that the value of  $G_d$  was insensitive to the magnitude of the fragmentation index  $\eta_f$ . Another relevant finding concerns the overall evaluation of the flash converting operation based on the values of  $\eta_f$  and  $G_d$  at the reactor exit. Figure 4 shows that such values do not necessarily represent the history followed by the particle population along the reactor.

Regarding the effect of particle size in the feed on the values of  $\eta_f$  and  $G_d$ , Figure 4 shows three groups of runs. The first group is the most numerous and includes Runs 5 through 16, *i.e.*, those experiments conducted with the sieved fractions of the raw material within the nominal range 37 to 150  $\mu\text{m}$ . This group is characterized by the following features: (a) The values of  $G_d$  are all positive, *i.e.*, net generation of dust occurred all the way along the reactor; (b) the values of  $G_d$  increased mostly linearly as  $\eta_f$  increased; and (c) the trajectory of the population of particles initiated in quadrant I and moved toward quadrant II along the reactor.

The second group includes Runs 2, and 18 through 20. This corresponds to one of the experiments

conducted with the finest fraction in the feed, <37  $\mu\text{m}$ , as well as three out of four experiments conducted with the unsieved material. This group shows the following features: (a) The values of  $G_d$  turned from negative to positive along the reactor, *i.e.*, net consumption of dust was followed by net generation of dust; (b) the values of  $G_d$  showed a negative minimum at a value of  $\eta_f$  within the range:  $0 < \eta_f < .05$ ; and (c) the trajectory of the population of particles initiated in quadrant III and further moved to quadrants I and II along the reactor.

Finally, the third group comprises Runs 1, 3, and 4 and corresponds to three experiments conducted with the finest fraction in the feed, <37  $\mu\text{m}$ . This group shows the following features: (a) The values of  $G_d$  are mostly negative, *i.e.*, net consumption of dust occurred all the way along the reactor; (b) the values of  $G_d$  showed a negative minimum at a value of  $\eta_f$  within the range  $0.05 < \eta_f < 0.2$ ; and (c) the trajectory of the population of particles initiated in quadrant III and moved toward quadrant IV asymptotically along the reactor.

It is noted that the first and third groups represent the extreme cases in Figure 4, whereas the second group shows a behavior that combines features of the other two. Overall, in the first group, net generation of dust occurred all the way along the reactor. In contrast, in the third group, net consumption of dust occurred all the way along the reactor. Finally, in the second group, the reactor length is divided into a section of net consumption of dust followed by a section of net generation of dust. It is noted that Run 17 (case A) did not belong to any group, as it seems to be an intermediate case between the second and third groups. This was the only case in which the trajectory of the particle population remained within a single quadrant along the reactor, *i.e.*, quadrant III. As a result, in this case, the values of  $\eta_f$  and  $G_d$  at the reactor exit represented the history followed by the particle population.

Figure 4 indicates that the behavior of the unsieved material is more complex than that of the sieved fractions and shows features of both first and second groups. Thus, in principle, the behavior of the typical feed to the reactor may be obtained from those of the individual fractions making up the population of particles. Regarding the numerical values of  $G_d$ , a relevant feature in Figure 4 concerns the behavior of the finest fraction in the feed: <37  $\mu\text{m}$  (Runs 1 to 4), which significantly differed from the behavior of other sieved fractions (Runs 5 to 16). Whereas in Runs 1 to 4 the values of  $G_d$  were mostly negative, in Runs 5 to 16 they were all positive. From a numerical standpoint, such results may be attributed to the values of parameter  $f_{nf}$  in Runs 1 through 4, which are substantially different from other values shown in Table I. Their physical interpretation is that the finest particles in the feed (<37  $\mu\text{m}$ ) offered a higher resistance to fragmentation than other size fractions. As a result, even when fragmentation started rather quickly in some of the particles, it did not spread extensively in the population, and a large mass of particles continued to expand in the reactor. Eventually, such particles reached the reactor exit with a size significantly larger than their initial size. In contrast,

particles in the feed with sizes larger than  $37\ \mu\text{m}$  offered a lower resistance to fragmentation. Furthermore, once fragmentation started, it spread extensively in the population with substantial generation of dust.

The above results are in good agreement with experimental observations regarding the morphology and size distribution of reacted particles collected at the receptacle of the laboratory furnace<sup>[10,12,13]</sup> which showed that overall, small particles in the feed tended to expand, whereas large particles tended to fragment upon oxidation. Because the mechanisms governing the expansion and fragmentation of particles are uncertain, the cause for such a behavior is not clear. A possible explanation provided early<sup>[10]</sup> stems from the fact that large particles contain more sulfur than small particles. According to Jokilaakso *et al.*,<sup>[8]</sup> when the core of sulfides is fully molten, the ongoing oxidation produces bubbles of sulfur dioxide gas that coalesce and accumulate inside the particle. This increases the internal pressure until it overcomes the mechanical resistance of the oxide shell that envelops the particle core, and fragmentation occurs. Under similar oxidizing conditions, it is possible that large particles accumulate more sulfur dioxide gas than small particles. As a result, the internal pressure necessary to break the oxide shell is reached rather quickly, as opposed to small particles. According to this hypothesis, the high resistance to fragmentation exhibited by small particles may be attributed to a slow evolution of their internal pressure, which delays the breakage of the oxide shell. Another possible explanation is related to the thickness of the oxide shell surrounding the reacting particles. When two spherical particles with different size react under identical oxidizing conditions, the oxide shell formed around the small particle is thicker than that formed in the large particle provided the reaction time is the same. Furthermore, small particles are expected to show a higher resistance to fragmentation than large particles simply from a mechanical point of view.

On the other hand, the experimental observations<sup>[10,12,13]</sup> and the results shown in Figure 4 suggest the existence of a critical value of particle size below which the behavior of the finest particles considerably differs from that of other size fractions in the feed. In the present case, such a critical size was about  $37\ \mu\text{m}$ . A recent study conducted in this laboratory<sup>[18]</sup> showed similar results for copper concentrate particles oxidized under suspended-smelting conditions. Therefore, this may be a common feature in the oxidation of a variety of sulfide particles. Although the cause for such a behavior is unknown, this is likely the result of the mechanical interactions between the fluids inside the particle and the oxide shell that maintains the particle integrity.

A practical concern in flash converting and flash smelting operations is the estimation of the amount of dust generated in the reactor. Whereas the CFM is capable of computing the value of  $G_d$  from Eq. [4] at any location along the reactor, it would be helpful to find an experimental measurement capable of providing a good estimate of this quantity without conducting the extensive calculations involved in this model. Based on the

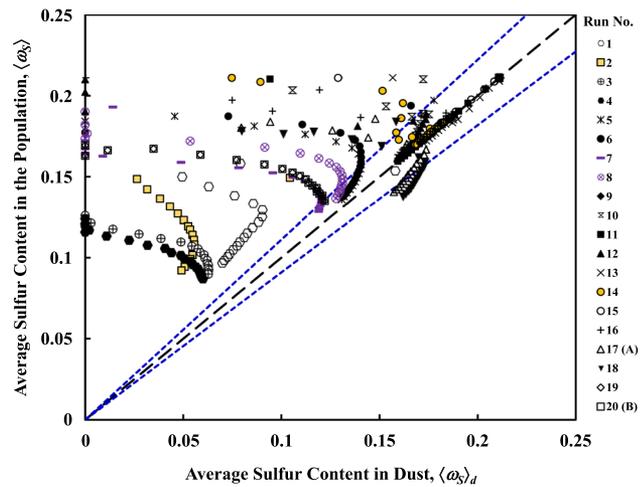


Fig. 5—Correlation of average sulfur content in the population against average sulfur content in dust for all runs in Table I. The area enclosed by the blue dashed lines represents the locations where the difference in the values of  $\langle\omega_S\rangle$  and  $\langle\omega_S\rangle_d$  is less than 10 pct of the value of  $\langle\omega_S\rangle$ .

stoichiometry of Reaction [5], the complete oxidation of the solid feed leads to  $m_p \approx 0.9m_f$ . Because the particle population includes both partially oxidized and completely oxidized particles, the assumption  $\Delta F_d \approx G_d$  is a reasonable approximation of the actual process. This relationship was confirmed by the calculations, which are not shown for the sake of brevity.

A final discussion regards the experimental measurement of the average chemical composition of dust particles shown in Figure 3. This may be a difficult task because it requires either a careful classification of the particle population prior to its chemical analysis or the use of sophisticated technology, such as a QEMSCAN unit.<sup>[5,19]</sup> In contrast, the chemical analysis of the whole population can be readily obtained by conventional AAS techniques. From a practical perspective, it is of interest to investigate whether the average sulfur content of the particle population  $\langle\omega_S\rangle$  can be used to represent the average sulfur content of dust  $\langle\omega_S\rangle_d$ . To clarify this issue, Figure 5 shows the values of  $\langle\omega_S\rangle$  against  $\langle\omega_S\rangle_d$  computed from Eqs. [8] and [7], respectively, for all runs shown in Table I. The simultaneous evolution of  $\langle\omega_S\rangle_d$  and  $\langle\omega_S\rangle$  may be tracked by following the sequence of symbols from left to right. The dashed diagonal represents the locations where  $\langle\omega_S\rangle$  and  $\langle\omega_S\rangle_d$  are equal.

Considering the experimental uncertainties that are typically associated with the sampling and chemical analysis in this type of system, two blue dashed lines are also shown. The area enclosed by the blue lines represents the locations where the difference in the values of  $\langle\omega_S\rangle$  and  $\langle\omega_S\rangle_d$  is less than 10 pct of the value of  $\langle\omega_S\rangle$ . Within this area, the hypothesis  $\langle\omega_S\rangle = \langle\omega_S\rangle_d$  may be assumed to be valid for most practical purposes. Figure 5 shows that the large majority of the data points lay to the left of the dashed diagonal. Therefore, in most runs, the amount of sulfur in the population  $\langle\omega_S\rangle$  was higher than that in the dust  $\langle\omega_S\rangle_d$ . This implies that, on

average, dust is made up of particles that underwent a more extensive oxidation than the whole population. The exception to this trend are Runs 17 and 18, in which the values of  $\langle\omega_S\rangle$  are lower than  $\langle\omega_S\rangle_d$  along the second half of the reactor. Therefore, in those runs, dust mostly consisted of particles that underwent a less extensive oxidation than the whole population.

As expected, the largest discrepancies in the values of  $\langle\omega_S\rangle$  and  $\langle\omega_S\rangle_d$  correspond to those locations at a short distance from the burner tip, in which the average sulfur content in dust  $\langle\omega_S\rangle_d$  was close to zero. The cause for such a behavior was explained in the discussion of Figure 3. Such data points are located on and in the vicinity of the vertical axis in Figure 5. Overall, as the particle population traveled through the reaction shaft, the values of  $\langle\omega_S\rangle$  and  $\langle\omega_S\rangle_d$  approached each other. With the exception of Runs 1 to 4, at the end of the reactor most data points lay within the area enclosed by the blue dashed lines. Figure 5 thus indicates that for most practical purposes, the composition of the particle population at the reactor exit may be assumed to represent that of the accompanying dust and *vice versa*.

#### IV. CONCLUDING REMARKS

The compositional fragmentation model (CFM) previously developed by the authors proved to be a useful tool for analyzing the role of expansion and fragmentation phenomena with respect to the generation and chemical composition of dust particles in a flash converting reactor. For that purpose, a fragmentation index was introduced to represent the predominance of expansion and fragmentation in the particle population. Dust generation was found to be the result of two competing phenomena in the reaction shaft: the expansion of dust particles in the feed to produce large particles, and the production of dust from the fragmentation of large particles. At short distance from the burner tip, dust mostly consists of particles in the feed undergoing oxidation and expansion, whereas farther down the reactor, it mostly consists of fragments of partially reacted particles.

Based on the computer simulation under a variety of operating conditions, general trends concerning the generation and the average sulfur content of dust were determined. The results of this investigation indicate that further advances in this area should incorporate a mechanistic model to represent the expansion of the reacting particles prior to fragmentation.

#### ACKNOWLEDGMENT

CADR and VRPS express their gratitude to CONACyT (National Council of Science and Technology, Mexico) for providing the scholarship grants for their graduate studies during this work.

#### REFERENCES

1. D.M. Jones and W.G. Davenport: *EPD Congress 1996*, G.W. Warren, ed., TMS, Warrendale, PA, 1996, pp. 81–94.
2. E. Nurminen, L. Stykki, and K. Fagerlund: *EPD Congress 2005*, M.E. Schlesinger, ed., TMS, Warrendale, 2005, pp. 429–36.
3. D.R. Swinbourne, E. Simak, and A. Yazawa: *Sulfide Smelting 2002*, R.L. Stephens and H.Y. Sohn, eds., TMS, Warrendale, 2002, pp. 247–59.
4. J.T. Yli-Penttilä, E.J. Peuraniemi, A. Jokilaakso, and K.M. Riihilahti: *Min. Metall. Proc.*, 1998, vol. 15, pp. 41–47.
5. E. Balladares, U. Kelm, S. Helle, R. Parra, and E. Araneda: *DYNA*, 2014, vol. 81, pp. 11–18.
6. V. Montenegro, H. Sano, and T. Fujisawa: *Mater. Trans.*, 2008, vol. 49, pp. 2112–18.
7. V. Montenegro, H. Sano, and T. Fujisawa: *Miner. Eng.*, 2013, vol. 49, pp. 184–89.
8. A.T. Jokilaakso, R.O. Suominen, P.A. Taskinen, and K.R. Lilius: *Trans. Inst. Min. Metall. C*, 1991, vol. 100, pp. C79–C90.
9. A. Otero, J.K. Brimacombe, and G.G. Richards: *Copper 91-Cobre 91*, C. Díaz, C. Landolt, A. Luraschi, and C.J. Newman, eds., Pergamon, Ottawa, 1991, pp. 459–73.
10. M. Pérez-Tello, H.Y. Sohn, K. St Marie, and A. Jokilaakso: *Metall. Mater. Trans. B*, 2001, vol. 32B, pp. 847–68.
11. A.A. Shook, G.G. Richards, and J.K. Brimacombe: *Metall. Mater. Trans. B*, 1995, vol. 26B, pp. 719–29.
12. K.M. Riihilahti, H.Y. Sohn, M. Pérez-Tello, and A. Jokilaakso: *Sulfide Smelting '98: Current and Future Practices*, J.A. Asteljoki and R.L. Stephens, eds., TMS, Warrendale, 1998, pp. 261–73.
13. M. Pérez-Tello: Ph.D. Dissertation, University of Utah, Salt Lake City, 1999.
14. M. Pérez-Tello, I. Madrid-Ortega, and H.Y. Sohn: *Min. Metall. Proc.*, 2008, vol. 25, pp. 53–60.
15. V.R. Parra-Sánchez, M. Pérez-Tello, C.A. Duarte-Ruiz, and H.Y. Sohn: *Metall. Mater. Trans. B*, 2014, vol. 45B, pp. 726–42.
16. Y.H. Kim and N.J. Themelis: *The Reinhardt Schuhmann International Symposium on Innovative Technology and Reactor Design in Extractive Metallurgy*, D.R. Gaskell, J.P. Hager, J.E. Hoffman, and P.J. Mackey, eds., TMS, Warrendale, 1986, pp. 349–69.
17. M. Pérez-Tello, J.A. Tirado-Ochoa, H.Y. Sohn, and V.M. Sánchez-Corrales: *JOM*, 2002, vol. 54 (10), pp. 27–30.
18. V.R. Parra-Sánchez, M. Pérez-Tello, R. Parra-Figueroa, E. Balladares-Varela, V.M. Sánchez-Corrales, A. Araneda, and A. Gómez-Alvarez: *Nickolas Themelis Symposium on Pyrometallurgy and Process Engineering, Copper 2013 International Copper Conference*, R. Bassa, R. Parra, A. Luraschi and S. Demetrio, eds., IIMCh, Santiago, 2014, pp. 267–78.
19. A.M. Hagni: *JOM*, 2008, vol. 60, pp. 33–37.

## Simulación de un reactor industrial para la producción de cobre

Duarte-Ruiz, C. A. y Pérez-Tello, M.

Departamento de Ingeniería Química y Metalurgia, Universidad de Sonora.

Hermosillo, México 83000.

andresduarteruiz@gmail.com

mperez@iq.uson.mx

### 1. RESUMEN

En el proceso de conversión instantánea para la producción de cobre se tienen problemas operativos como la dificultad del control térmico y la generación sustancial de polvos, los cuales tienen posibles implicaciones al medio ambiente. En el presente trabajo se aplicó un modelo computacional desarrollado en este laboratorio<sup>[1]</sup> para predecir el comportamiento del reactor y generar criterios de operación y optimización. Se realizaron simulaciones en condiciones típicas de operación en ausencia y presencia de dispersión de la energía radiante y se compararon las predicciones del modelo. Los resultados indican que la dispersión de la energía radiante afecta significativamente al comportamiento de las partículas y de la fase gaseosa en la cámara de reacción, por lo que se enfatiza la necesidad de determinar experimentalmente las propiedades ópticas de las partículas de mata, con el fin de mejorar en el futuro las predicciones del modelo computacional para fines de optimización del proceso.

### 2. INTRODUCCIÓN

El cobre es uno de los metales más importantes para la humanidad. A nivel industrial, este metal se obtiene mayormente a partir del mineral conocido como calcopirita ( $\text{CuFeS}_2$ ). La ruta de producción del cobre involucra las siguientes etapas: minado, molienda del mineral, flotación, fusión de concentrado para producir mata de cobre, conversión de la mata para producir cobre blíster, y refinación electrolítica para producir cobre de 99% de pureza.

El presente trabajo se enfoca a la etapa de conversión instantánea (Figura 1) en la cual partículas sólidas finamente divididas de mata de cobre se oxidan en un reactor a temperaturas del orden de 1200 °C en presencia de oxígeno gaseoso para producir cobre fundido con una pureza de 98% en peso. La mata de cobre es una solución sólida de  $\text{Cu}_2\text{S}$  y  $\text{FeS}$  en proporciones que varían de acuerdo al mineral de origen.

A pesar de ser una tecnología probada, el proceso de conversión instantánea presenta una serie de problemas operativos, tales como dificultad para su control térmico y la generación sustancial de polvos con posibles implicaciones al medio ambiente. Debido a la complejidad de los fenómenos que ocurren simultáneamente en su interior, la disponibilidad de un modelo computacional que represente

razonablemente los fenómenos relevantes que ocurren en el reactor sería de utilidad porque permitiría predecir su comportamiento y generar criterios de operación tendientes a la optimización del proceso.

En el presente trabajo se aplicó el modelo computacional previamente desarrollado en este laboratorio<sup>[1]</sup> para simular la cámara de reacción de un horno industrial de conversión instantánea. Un punto de interés en esta área es determinar si la dispersión de la energía radiante en la cámara de reacción por efecto de la nube de partículas puede afectar el balance térmico del horno y/o el grado de conversión global de las reacciones de oxidación. Este es un punto que ha recibido poca atención en la literatura. Algunos autores<sup>[2-3]</sup> han llegado a conclusiones contradictorias. Con el fin de esclarecer este punto, se realizaron simulaciones en condiciones típicas de operación en ausencia y presencia de dispersión de la energía radiante y se compararon las predicciones del modelo computacional. Para representar la dispersión de energía radiante isotrópica se utilizó la función de fase del modelo de Henyey-Greenstein<sup>[4]</sup>, y para la no isotrópica se usó el modelo de gran esfera difusa<sup>[5]</sup>.

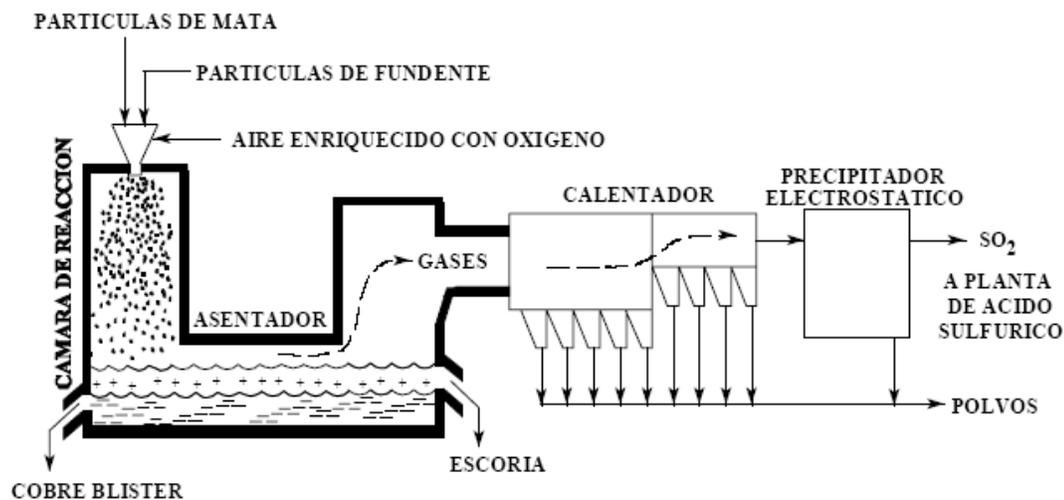


Figura 1. Proceso de conversión instantánea para la producción de cobre<sup>[6]</sup>.

### 3. ESTRATEGIA DE SIMULACIÓN

Para la simulación se empleó el modelo tridimensional reportado por Pérez-Tello et al<sup>[1]</sup>. El modelo incluye la transferencia de momentum, calor y masa en tres dimensiones y la cinética heterogénea de las reacciones de oxidación de las partículas en la cámara de reacción en condiciones de turbulencia. La fase gaseosa se trata desde un enfoque Euleriano, se resuelven la ecuación de continuidad global, las ecuaciones de continuidad para el oxígeno y el dióxido de azufre, la ecuación de energía y las ecuaciones de energía cinética turbulenta y su rapidez de disipación. Separadamente se resuelve el campo de radiación en el interior del horno. La fase partícula se resuelve utilizando un enfoque Lagrangiano, se resuelven la ecuación de

## II CONGRESO MULTIDISCIPLINARIO DE CIENCIAS APLICADAS EN LATINOAMÉRICA

### COMCAPLA 2014

7 al 10 de Octubre, Guatemala, Guatemala

movimiento, energía, y las expresiones que describen la cinética de las reacciones de oxidación de las partículas. La dispersión turbulenta de partículas se describe mediante el modelo de nubes de partículas de Baxter y Smith<sup>[7]</sup>. Las ecuaciones que describen ambas fases se acoplan a través de términos fuente en las ecuaciones de la fase gaseosa, los cuales se actualizan periódicamente hasta alcanzar la convergencia mediante un método iterativo. La solución numérica se realiza utilizando un método de volumen finito. En la Tabla 1 se muestran los parámetros utilizados para las simulaciones. Dichos valores corresponden a condiciones típicas de operación del horno industrial.

Tabla 1. Parámetros para la simulación computacional de un horno industrial de conversión instantánea

Parámetro	Valor
Geometría del reactor*:	
Diámetro de la cámara de reacción, m	4.25
Longitud de la cámara de reacción, m	6.5
Distancia entre baño fundido y cámara, m	1.0
Temperatura de las paredes, K:	
Pared superior	1570
Pared lateral	1570
Baño fundido	1620
Emisividad superficial	0.85
Corriente de partículas:	
Temperatura de entrada, K	298
Velocidad de entrada, m s <sup>-1</sup>	30 §
Densidad de las partículas, kg m <sup>-3</sup>	5400
Número de puntos de inyección	6
Corriente gaseosa:	
Temperatura de entrada, K	298
Temperatura de salida, K	1570 ‡
Velocidad de entrada, m/s	46 §
Presión, kPa	86.1
Intensidad turbulenta	0.1 §

\*Adaptado de George et al.<sup>[6]</sup>

‡Sólo para cálculos de radiación

§Estimado

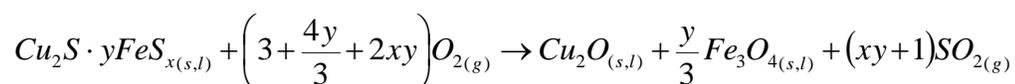
Se simularon tres casos: en el primero se despreció la dispersión de la energía radiante por las partículas; en los dos siguientes, la dispersión de la energía radiante se representó mediante las funciones de fase: isotrópica con Henyey-Greenstein<sup>[4]</sup> y no isotrópica con esferas difusas<sup>[5]</sup>, respectivamente.

#### 4. RESULTADOS Y DISCUSIÓN

Los resultados computacionales incluyen los campos de velocidad, temperatura, concentración de O<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> y grado de turbulencia de la fase gaseosa en el interior del reactor. Para las nubes de partículas se determinaron sus trayectorias dentro de la cámara de reacción, densidad de partículas, composición química y temperatura. La Figura 1 muestra un ejemplo de los resultados de las simulaciones, en la cual las paredes del horno se representan en color gris semitransparente. Dentro del reactor se muestran las trayectorias seguidas por partículas individuales durante su vuelo por la cámara de reacción hasta depositarse en el baño de metal fundido del fondo. En un plano vertical y en la superficie horizontal del baño fundido se muestran la región ocupada por la nube de partículas. La escala de colores en la Figura 1 indica la temperatura de las partículas en Kelvins.

La comparación de las imágenes de la Figura 1 muestra que la dispersión de la energía radiante por parte de la nube de partículas tiene un efecto significativo sobre la temperatura de las partículas. En presencia de dispersión radiante (Figuras 1b y 1c), las partículas adquieren una temperatura más alta en la parte superior de la cámara de reacción en comparación con la ausencia de dispersión radiante (Figura 1a). Una explicación de este resultado es que al dispersarse la energía radiante proveniente de las paredes del horno, las partículas distribuyen entre las demás el calor radiante incidente; esto a su vez permite que un número importante de las partículas alcancen su punto de ignición en un tiempo más corto. Puesto que las reacciones de oxidación son altamente exotérmicas, una vez alcanzada la ignición las partículas aumentan rápidamente su temperatura. En contraste, cuando la energía radiante no es dispersada por las partículas (Figura 1a), las partículas que viajan en la parte central de la nube no reciben energía radiante proveniente de las paredes debido a que las partículas de la periferia de la nube la absorben por completo. Esto obliga a las partículas del centro de la nube a viajar una mayor distancia en el horno antes de alcanzar su temperatura de ignición.

Un análisis similar se realizó en términos de la fracción de azufre remanente en las partículas. Esta variable es una medida del grado de oxidación, ya que el objetivo del proceso de conversión instantánea es eliminar el azufre contenido en las partículas para convertirlo a SO<sub>2</sub> de acuerdo a la siguiente reacción simplificada:



donde los símbolos x e y son valores determinados empíricamente a partir de la composición elemental de la mata de cobre alimentada al reactor. La comparación de los resultados de esta variable de respuesta (no mostrados) indicó que la dispersión de

la energía radiante tiene asimismo un efecto significativo sobre el grado de oxidación de las partículas.

Los efectos discutidos anteriormente pueden evaluarse de manera global al comparar la composición de  $\text{SO}_2$  gaseoso en la salida del reactor, la cual es representada por la saliente rectangular en la parte superior derecha de las imágenes en la Figura 1. Estos valores corresponden a 62 y 49% volumen para los casos de ausencia y presencia de dispersión radiante, respectivamente. Asimismo, el flujo total de energía radiante intercambiada entre las paredes del horno y las nubes de partículas varió entre 12 y 14.8 MW (ver Tabla 2). Este resultado indica que la presencia de dispersión radiante reduce el intercambio neto de radiación entre las partículas y las paredes del horno. La diferencia representa aproximadamente el 25% del valor de 12 MW, lo que es significativo y puede tener implicaciones en el control térmico del horno.

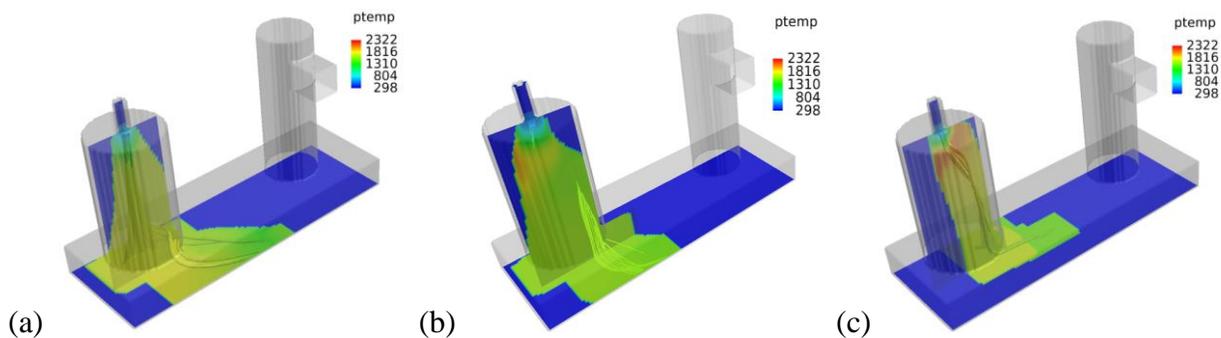


Figura 1. Regiones ocupadas por las partículas en un reactor de conversión instantánea y trayectorias de las nubes de partículas coloreadas de acuerdo a la temperatura de las partículas; (a) ausencia de dispersión de energía radiante, (b) dispersión isotrópica, (c) dispersión no isotrópica. Valores de la escala en Kelvins.

Tabla 2. Energía radiante intercambiada entre paredes y nubes de partículas, MW

Ausencia de dispersión	Dispersión isotrópica	Dispersión no isotrópica
14.8	12.8	12.0

En base a lo anterior, se considera que un aspecto relevante en relación a la futura optimización del proceso de conversión instantánea, consiste en determinar experimentalmente las propiedades ópticas de las partículas procesadas industrialmente. La incorporación de dicha información al presente modelo computacional permitirá predicciones más realistas del comportamiento del reactor industrial.

## 5. CONCLUSIONES

Los resultados del presente trabajo indican que la dispersión de la energía radiante puede afectar significativamente el comportamiento de las partículas y de la fase gaseosa en un horno de conversión instantánea cuando ambas corrientes se alimentan perpendicularmente a la pared superior del reactor. La dispersión de la energía radiante permite una ignición más rápida de las partículas durante el vuelo y la distribución más uniforme de la energía radiante entre las partículas vecinas, reduciendo simultáneamente el intercambio neto de energía radiante entre las partículas y las paredes del horno. En función de las predicciones del presente modelo, se enfatiza la necesidad de determinar experimentalmente las propiedades ópticas de las partículas de mata con el fin de mejorar en el futuro las predicciones del modelo computacional. Asimismo es recomendable extender el estudio a otras configuraciones de alimentación de gas y partículas al reactor.

## 6. BIBLIOGRAFÍA

1. Perez-Tello M., Sohn H. Y. y Smith P. J., *Metall. Mater. Trans. B* 2001, vol. 32B, pp. 869-886.
2. Hahn Y.B. y Sohn H.Y., *Metall. Trans. B* 1990, vol. 21B, pp. 959-966.
3. Varnas S.R. y Truelove J.S., *Appl. Math. Modelling*, vol. 19, pp. 456-464.
4. Kamiuto K., *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 1987, Volume 37, pp. 411-13.
5. Kamiuto K., Sato M., y Iwamoto M., *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 1989, Volume 42, pp. 85-168.
6. George D. B., Gottling R. J., y Newman C. J., *Proceedings of Copper 95-Cobre 95 International Conference Volume IV: Pyrometallurgy of Copper*; Chen W. J., Díaz C., Luraschi A., Mackey P. J., Eds., The Metallurgical Society of CIM: Montreal, 1995, pp. 41-52.
7. L. L. Baxter and P. J. Smith: *Energy Fuels*, 1993, vol. 7, pp. 945-958.