

**Politechnika Wrocławska**

**Wydział Chemiczny**

Wrocław ul. Norwida 4/6 50-373 tel. 71 320 24 25

dr inż. Wojciech Ludwig

**Hydrodynamika przepływu faz i powlekanie  
w aparatach fontannowych**

**autoreferat**

załącznik nr 2 do wniosku o przeprowadzenie postępowania habilitacyjnego  
(wersja polska)

Wrocław 2018

## Spis treści

1. Dane osobowe.....	3
2. Posiadane dyplomy, stopnie naukowe/ artystyczne – z podaniem nazwy, miejsca i roku ich uzyskania oraz tytułu rozprawy doktorskiej.....	3
3. Informacje o zatrudnieniu i jednostkach naukowych .....	3
4. Wskazanie osiągnięcia wynikającego z art. 16 ust. 2 ustawy z dnia 14 marca 2003 r. o stopniach naukowych i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki (Dz. U. 2016 r. poz. 882 ze zm. w Dz. U. z 2016 r. poz. 1311.):.....	4
4.1 Tytuł.....	4
4.2 Wykaz dorobku naukowego będącego podstawą wniosku .....	4
4.3 Omówienie tematyki badań będącej podstawą wniosku .....	8
5. Wykaz prac i omówienie pozostałych osiągnięć naukowych po uzyskaniu stopnia doktora.....	25
5.1 Wykaz ważniejszych prac opublikowanych po uzyskaniu stopnia doktora.....	25
5.2 Omówienie pozostałych osiągnięć naukowych po uzyskaniu stopnia doktora .....	30
6. Zestawienie ilościowe dorobku naukowego .....	34
7. Udział w krajowych projektach badawczych.....	35
8. Udział w konferencjach krajowych i międzynarodowych .....	35
9. Działalność dydaktyczna.....	36

## 1. Dane osobowe

- Imię i nazwisko: **Wojciech Ludwig**
- Data i miejsce urodzenia: **31 sierpnia 1969, Głuszycza**
- Obecnie zajmowane stanowisko: **adiunkt**
- Miejsce pracy: **Politechnika Wrocławska**

## 2. Posiadane dyplomy, stopnie naukowe/ artystyczne – z podaniem nazwy, miejsca i roku ich uzyskania oraz tytułu rozprawy doktorskiej.

- **Magister inżynier, Politechnika Wrocławska, Wydział Chemiczny, 1993**

Pracę magisterską pt. „Minibaza własności fizykochemicznych” wykonałem pod kierunkiem dr hab. Jacka Jezowskiego w Instytucie Inżynierii Chemicznej i Urządzeń Ciepłych Politechniki Wrocławskiej

- **Doktor nauk technicznych w zakresie inżynierii chemicznej, Politechnika Wrocławska, Wydział Chemiczny, 1997**

Pracę doktorską pt. „Model przepływu dwufazowego gaz-ciało stałe w aparacie fluidyzującym z centralną rurą wznoszącą” wykonałem pod kierunkiem prof. dr hab. Andrzeja Kmiecica w Instytucie Inżynierii Chemicznej i Urządzeń Ciepłych Politechniki Wrocławskiej.

Recenzentami pracy byli: dr hab. Roman Ulbrich (Politechnika Opolska) oraz prof. dr hab. Jan Bandrowski (Politechnika Śląska)

## 3. Informacje o zatrudnieniu i jednostkach naukowych

- **1998 – obecnie adiunkt**, w Instytucie Inżynierii Chemicznej i Urządzeń Ciepłych Politechniki Wrocławskiej, przekształconym w Zakład Inżynierii Chemicznej

4. Wskazanie osiągnięcia wynikającego z art. 16 ust. 2 ustawy z dnia 14 marca 2003 r. o stopniach naukowych i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki (Dz. U. 2016 r. poz. 882 ze zm. w Dz. U. z 2016 r. poz. 1311.):

#### 4.1 Tytuł

Hydrodynamika przepływu faz oraz powlekanie w aparatach fontannowych

#### 4.2 Wykaz dorobku naukowego będącego podstawą wniosku

Podstawą do ubiegania się o uzyskanie stopnia naukowego doktora habilitowanego nauk technicznych w dyscyplinie inżynieria chemiczna jest

a) cykl następujących publikacji powiązanych tematycznie:

(wartości IF – impact factor i M – liczbę punktów z listy ministerialnej podano z roku wydania pracy)

Ich sumaryczny Impact Factor wynosi  $\sum IF = 15.852$ , suma punktów z listy ministerialnej  $\sum M = 249$ .

- H1. Ludwig W., Kmieć A., Powlekanie kształtek pierścieniowych warstwą katalizatora w aparacie fontannowym, Inżynieria Chemiczna i Procesowa, 2005, 26, 2, 317-323, **IF 0.087, M 13**.

*Mój wkład polegał na zaplanowaniu i wykonaniu badań powlekania katalizatora, opracowaniu wyników, napisaniu tekstu i wykonaniu rysunków.*

*Mój udział szacuję na 90 %.*

- H2. Kmieć A., Ludwig W., Szafran R., 2009, Minimum circulation velocity in a spouted bed apparatus with draft tube, Chemical Engineering & Technology, 32, 3, 450-453, **IF 1.266, M 27**.

*Mój wkład polegał na wykonaniu badań eksperymentalnych określających minimalną prędkość cyrkulacji, wyprowadzeniu korelacji obliczającej tę wielkość, napisaniu i redakcji tekstu, wykonaniu części rysunków.*

*Mój udział szacuję na 80 %.*

- H3. Szafran, R.G., Ludwig W., Kmieć A., 2012, New spout-fluid bed apparatus for electrostatic coating of fine particles and encapsulation, Powder Technology, 225, 52-57, **IF 2.024, M 32**.

*Mój udział polegał na wykonaniu badań eksperymentalnych suchego powlekania, napisaniu części tekstu manuskryptu oraz korekcie angielskiej i polskiej wersji artykułu.*

*Mój udział szacuję na 30 %.*

- H4. Ludwig W., Szafran R., Kmiec A., Dziak J., 2012, Dry powder coating in a modified Wurster apparatus, *Procedia Engineering*, 42, 480-490, **M 2**.  
*Mój udział polegał na wykonaniu badań eksperymentalnych suchego powlekania, opracowaniu części wyników, napisaniu tekstu, wykonaniu części rysunków.*  
*Mój udział szacuję na 70 %.*
- H5. Ludwig W., 2016, Hydrodynamika przepływu cząstek w aparacie z cyrkulującym złożem rzadkim, *Inżynieria i Aparatura Chemiczna*, 2016, 55, 5, 189-190, **M 9**.  
*Mój udział wynosi 100 %.*
- H6. Ludwig W., Dziak J., 2016, Modelowanie przepływu gazu w aparacie do suchego powlekania, *Inżynieria i Aparatura Chemiczna*, 55, 6, 237-239, **M 9**.  
*Mój udział polegał na opracowaniu i rozwiązaniu metodami CFD modelu opisującego przepływ powietrza w aparacie fontannowo-fluidalnym, opracowaniu wyników, napisaniu tekstu artykułu, wykonaniu rysunków.*  
*Mój udział szacuję na 90 %.*
- H7. Ludwig W., Dziak J., 2016, Modelowanie przepływu gazu w zmodyfikowanym aparacie Wurster, 22. Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Spała, 5-9.09.2016 r., materiały konferencyjne, Łódź, Wydawnictwo Exall, 800-808.  
*Mój udział polegał na opracowaniu i rozwiązaniu modelu przepływu gazu w zmodyfikowanym aparacie Wurster, opracowaniu wyników, wykonaniu rysunków, napisaniu tekstu artykułu*  
*Mój udział szacuję na 90 %.*
- H8. Ludwig W., 2016, Hydrodynamics of particles flow in the modified Wurster apparatus operating in a fast circulating dilute spout-fluid bed regime, 22. Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Spała, 5-9.09.2016 r., materiały konferencyjne, Łódź, Wydawnictwo Exall, 788-799.  
*Mój udział wynosi 100 %.*
- H9. Ludwig W., Mączka T., 2016, Oznaczanie podstawowych własności elektrostatycznych cząstek używanych w procesie suchego powlekania, 22. Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Spała, 5-9.09.2016 r., materiały konferencyjne, Łódź, Wydawnictwo Exall, 809-816.  
*Mój udział polegał na wykonaniu części pomiarów własności elektrostatycznych cząstek nośnikowych, opracowaniu wyników pomiarów, napisaniu i korekcie tekstu, wykonaniu części rysunków, wykonaniu wykresów.*  
*Mój udział szacuję na 80 %.*
- H10. Ludwig W., Mączka T., 2017, Determination of cores electrification during the flow in the modified Wurster apparatus, *Technical Sciences*, 20, 1, 5-15, **M 11**.

*Mój udział polegał na zaplanowaniu i wykonaniu badań eksperymentalnych określających stopień elektryzacji cząstek nośnikowych, opracowaniu wyników, napisaniu i korekcie tekstu, wykonaniu rysunków i wykresów.*

*Mój udział szacuję na 80 %.*

- H11. Ludwig W., Zając D., 2017, Modeling of particle velocities in an apparatus with a draft tube operating in a fast circulating dilute spout- fluid bed regime, Powder Technology, 319, 332-345, **IF 3.23, M 35.**

*Mój udział polegał na opracowaniu i rozwiązaniu metodami CFD modelu opisującego przepływ złoża w aparacie fontannowo-fluidalnym, opracowaniu wyników, napisaniu i korekcie tekstu oraz wykonaniu części wykresów i rysunków.*

*Mój udział szacuję na 60 %.*

- H12. Ludwig W., 2017, Minimum stable circulation velocity in a spout-fluid bed apparatus, Chemical Technology and Engineering: international scientific conference, materiały konferencyjne, Ukraine, Lviv, June 26-30<sup>th</sup> 2017, 141-142.

*Mój udział wynosi 100 %.*

- H13. Ludwig W., 2017, The impact of the construction material on the particle electrification in the spout-fluid bed apparatus, Chemical Technology and Engineering: international scientific conference, materiały konferencyjne, Ukraine, Lviv, June 26-30<sup>th</sup> 2017, 139-140.

*Mój udział wynosi 100 %.*

- H14. Ludwig W., Płuszka P., 2018, Euler-Lagrange model of particles circulation in a spout-fluid bed apparatus for dry coating, Powder Technology, 328, 375-388, **IF 3.23, M 35.**

*Mój udział polegał na opracowaniu części modelu zderzeń, opracowaniu metod i rozwiązaniu równań modelu metodami CFD, zaplanowaniu eksperymentów numerycznych, opracowaniu wyników, napisaniu części tekstu oraz wykonaniu części wykresów i rysunków.*

*Mój udział szacuję na 70 %.*

- H15. Ludwig W., 2018, Particles electrification in an apparatus with a draft tube operating in a fast circulating dilute spout-fluid bed regime, Particuology, <https://doi.org/10.1016/j.partic.2018.03.008>, **IF 2.785, M 30.**

*Mój udział wynosi 100 %.*

- H16. Ludwig W., Płuszka P., 2018, The analysis of the influence of the normal restitution coefficient model on calculated particles velocities by means of Eulerian-Lagrangian approach, Powder Technology, <https://doi.org/10.1016/j.powtec.2018.12.004>, **IF 3.23, M 35.**

*Mój udział polegał na opracowaniu części modeli zderzeń, rozwiązaniu równań opisujących cyrkulację cząstek metodami CFD, zaplanowaniu eksperymentów numerycznych, opracowaniu wyników, napisaniu części tekstu oraz wykonaniu części wykresów i rysunków.*

*Mój udział szacuję na 70 %.*

- H17. Ludwig W., 2018, Impact of friction coefficient on particles circulation velocity calculated by Euler-Lagrange model in spouted bed apparatus for dry coating, Technical Sciences, 21, 4, **M 11**.

*Mój udział wynosi 100 %.*

**b) patenty krajowe:**

- H18. Szafran R., Ludwig W., Kmieć A., 2014, Patent Polska, nr 215693. Urządzenie do powlekania drobnoziarnistych cząstek mikro- i nanoproszkami.

*Mój udział polegał na pomiarach hydrodynamiki przepływu cząstek i rozkładu temperatur powietrza w aparacie fontannowo-fluidalnym oraz weryfikacji eksperymentalnej poprawności jego działania w trakcie powlekania.*

*Mój udział szacuję na 30 %.*

- H19. Szafran R., Ludwig W., Kmieć A., 2014, Patent Polska, nr 215691, Sposób powlekania drobnoziarnistych cząstek mikro- i nanoproszkami.

*Mój udział polegał na wykonaniu części badań eksperymentalnych suchego powlekania w aparacie fontannowo-fluidalnym. Opracowaniu optymalnych parametrów tego procesu.*

*Mój udział szacuję na 30 %.*

- H20. Szafran R., Ludwig W., Kmieć A., 2014, Patent Polska, nr 215692. Układ do powlekania drobnoziarnistych cząstek mikro- i nanoproszkami

*Mój udział polegał na weryfikacji eksperymentalnej poprawności działania całego układu do suchego powlekania, ustalenia zakresu możliwych do uzyskania zmiennych procesowych.*

*Mój udział szacuję na 30 %.*

**c) komunikaty konferencyjne:**

- H21. Ludwig W., Polowczyk I., 2017, Particle electrification in the spout-fluid bed apparatus, 10<sup>th</sup> World Congress of Chemical Engineering, Barcelona, Spain, 1st-5th October 2017, Joint Event - 7<sup>th</sup> International Symposium on Spouted Beds, materiały konferencyjne, 3045-3045.

*Mój udział polegał na zaplanowaniu i wykonaniu badań eksperymentalnych określających ładunek elektrostatyczny zgromadzony na złożu w aparacie fontannowo-fluidalnym, opracowaniu wyników, napisaniu tekstu.*

*Mój udział szacuję na 90 %.*

H22. Ludwig W., Bastrzyk A., 2017, CFD modelling of powder spraying by the pneumatic nozzle, 10th World Congress of Chemical Engineering, Spain, 1st-5th October 2017, Joint Event - CFD in Chemical Engineering Symposium, materiały konferencyjne, 2750-2750.

*Mój udział polegał na opracowaniu i rozwiązaniu metodami CFD modelu opisującego rozpylanie proszku powlekającego, opracowaniu wyników, napisaniu tekstu.*

*Mój udział szacuję na 90 %.*

H23. Ludwig W., 2018, Effect of friction coefficient on results of particles velocity calculation using Euler-Lagrange model in spout-fluid bed apparatus, 2nd Workshop on Porous Media, Olsztyn, 28-30 czerwca 2018, materiały konferencyjne, 29-29.

*Mój udział wynosi 100 %.*

### **4.3 Omówienie tematyki badań będącej podstawą wniosku**

#### **Wstęp**

W roku 1997 obroniłem pracę doktorską, w której przedstawiłem jednowymiarowy model przepływu cząstek w aparacie fluidyzacyjnym z rurą wznoszącą. Model ten umożliwił wyznaczenie prędkości cyrkulacji złoża na podstawie pomiaru lub obliczenia spadku ciśnienia powietrza. Od czasu uzyskania stopnia doktora szczególnie interesowałem się badaniem przepływów wielofazowych oraz powlekaniami w aparatach fontannowych o różnorodnej konstrukcji, a więc zarówno klasycznych stożkowych, stożkowych z rurą wznoszącą, a także z cyrkulującym złożem rzadkim. Część tych badań miała charakter typowo eksperymentalny i dotyczyła pomiarów prędkości faz, wyznaczania nowych wielkości charakteryzujących złoża (minimalna prędkość cyrkulacji i minimalna prędkość stabilnej cyrkulacji), opracowania technologii powlekania; zarówno mokrego jak i suchego do zastosowań w przemyśle chemicznym i farmaceutycznym oraz wyznaczania parametrów związanych ze zjawiskami elektrostatycznymi występującymi w urządzeniach fontannowych. Moje zainteresowania koncentrowały się także na modelowaniu metodami numerycznej mechaniki płynów CFD (ang. Computational Fluid Dynamics) układów wielofazowych w urządzeniach do powlekania.

W badaniach starałem się udowodnić, że aparaty fontannowo-fluidalne z rurą wznoszącą po dokonaniu szeregu zmian konstrukcyjnych, ustalonych na podstawie danych empirycznych i w wyniku symulacji modelowych, mogą spełniać rolę urządzeń służących do efektywnego powlekania cząstek ciała stałego nie tylko metodą wilgotną ale także suchą.

Aparaty fontannowe powstały jako modyfikacja klasycznych urządzeń fluidalnych. Wyeliminowały one ich podstawową wadę tj. możliwość użycia jedynie drobnych cząstek. Umożliwiły



operacje jednostkowe na złożach materiałów o średnicach do kilku milimetrów (klasa D Geldarta) [H11, H14]. Jest to związane z unikalną charakterystyką przepływu złoża w takich urządzeniach. Gaz podawany jedynie poprzez otwór w osi aparatu unosi cząstki w tzw. kanale centralnym (ang. spout zone). Następnie tworzą one fontannę ponad powierzchnią złoża i opadają swobodnie do strefy pierścieniowej (ang. annular zone, annulus), gdzie zostają ponownie porwane do kanału centralnego. Biorąc pod uwagę ruch cząstek obie strefy różnią się zasadniczo. W części centralnej mamy do czynienia z transportem pneumatycznym, dużymi prędkościami przepływu obu faz oraz małym ułamkiem objętościowym ciała stałego. Przeciwnie – w części pierścieniowej – dochodzi do utworzenia wolno poruszającego się w dół złoża usypanego. Taki sposób działania spowodował, że urządzenia fontannowe od samego początku znalazły zastosowanie w wielu dziedzinach gospodarki. Fontannowanie jest szeroko stosowane do suszenia materiałów lepkich np. past, szlamów oraz ziarna o wysokiej wilgotności, a w przemyśle spożywczym do dehydratacji owoców i warzyw. Urządzeń tego typu używa się też do pirolizy, spalania oraz zgazowywania materiałów odpadowych np. biomasy, osadów poprodukcyjnych, zużytych tworzyw sztucznych oraz opon [H3, H11, H14]. Uporządkowany w porównaniu do złoża fluidalnego ruch cząstek powoduje, że aparaty fontannowe idealnie nadają się do powlekania zarówno w przemyśle farmaceutycznym jak i spożywczym. W kanale centralnym nanoszona jest warstwa powlekająca, a w części pierścieniowej dochodzi do suszenia materiału. W klasycznych rozwiązaniach urządzeń fontannowych cząstki porywane są do kanału centralnego z dowolnego miejsca części pierścieniowej, co powoduje ich różną wilgotność i losowy rozkład czasów przebywania w strefie powlekania. Rozwiązaniem tego problemu jest zastosowanie rury wznoszącej, która fizycznie oddziela obie strefy i w ten sposób porządkuje cyrkulację cząstek. Mogą być one porwane do kanału centralnego jedynie na krótkim odcinku pomiędzy dolną krawędzią rury a dnem. Poza tym rura wznosząca zmniejsza minimalną prędkość fontannowania i umożliwia zastosowanie złóż o dużej wysokości (brak maksymalnej wysokości fontannowania) [H11, H14].

Początkowo powlekanie prowadziło się w aparatach fontannowych, w których dysza rozpylająca znajdowała się w górnej części komory ze złożem. Jednakże zarówno wydajność takiego procesu jak i jakość otrzymanej powłoki były niskie. W związku z tym wprowadzono aparaty z urządzeniem rozpylającym ulokowanym w dolnej części złoża. W tym systemie prawdopodobieństwo zderzeń cząstek z kroplami roztworu powlekającego jest większe, a czas suszenia krótszy, występuje jednakże ryzyko aglomeracji zwilżonych cząstek złoża z powodu ich dużej koncentracji tuż nad dyszą. Można zapobiec temu niekorzystnemu zjawisku poprzez zastosowanie dodatkowego strumienia powietrza fluidyzującego złożę (układ fontannowo-fluidalny). Pewną modyfikacją opisanego powyżej rozwiązania jest aparat Wurster – urządzenie fontannowo-fluidalne

z rurą wznoszącą oraz dyszą w dnie. Uważany jest on za najlepszą konstrukcję w przypadku mokrego powlekania okresowego drobnych materiałów ziarnistych [H3, H4, H11, H14].

Podstawową wadą klasycznych metod powlekania filmowego z użyciem wody, która wyparła rozpuszczalniki organiczne, jest jej duża zawartość w produkcie. W przypadku powlekania leków lub innych produktów biologicznie czynnych zawilgocenie produktu może prowadzić do ich inaktywacji lub rozpadu. W związku z tym konieczne jest długotrwałe łagodne suszenie produktu, co wymaga znacznych dodatkowych nakładów finansowych oraz wydłuża cały proces. Roztwory lub zawiesiny substancji powlekającej cechują się dużą lepkością, co pociąga za sobą niebezpieczeństwo zarówno zatykania dyszy rozpylającej jak i aglomeracji cząstek powlekanych. Rozwiązaniem tych problemów jest suche powlekanie, w którym wyeliminowano całkowicie lub częściowo zastosowanie jakichkolwiek cieczy [H3, H4]. Najpopularniejsze są trzy rozwiązania: na nośnik (rdzeń) nanoszona jest substancja powlekająca w postaci suchego proszku z dodatkiem plastyfikatora (ang. dry powder coating), w postaci stopionej (ang. hot melt coating) lub w postaci proszku po uprzednim naelektryzowaniu (ang. electrostatic coating). Metody te wymagają jeszcze wielu badań i optymalizacji w celu ograniczenia strat proszku powlekającego. Spośród metod suchego powlekania tylko powlekanie elektrostatyczne zapewnia możliwość wykorzystania całego proszku powlekającego i pozwala na precyzyjną kontrolę grubości naniesionej warstwy. W związku z tym znalazła ona zastosowanie w szeroko wykorzystywanym malowaniu proszkowym. W przeciwieństwie do bardzo bogatej literatury odnoszącej się do malowania proszkowego, dostępnych jest niewiele prac dotyczących powlekania elektrostatycznego materiałów farmaceutycznych. Związane jest to z tym, że wydajność metody elektrostatycznej zależy ściśle od własności elektrycznych mediów uczestniczących w procesie. Dotychczas brak jest takich danych dla typowych substancji stosowanych w przemyśle farmaceutycznym. Jedynie firma Phoqus rozwija technologię powlekania elektrostatycznego leków. Jej urządzenia znane są z kilku patentów. Są to powlekarki tacowe i bębnowe o złożonej konstrukcji, nadające się jedynie do powlekania tabletek. Do tej pory nie zaimplementowano tej metody w aparatach fontannowych, które potencjalnie dzięki bardzo prostej konstrukcji i możliwości cyrkulacji złożeń o cząstek o różnorodnych kształtach mogłyby być dobrą alternatywą dla dotychczasowych rozwiązań.

Podstawą modelowania procesu powlekania w aparatach fontannowych jest prawidłowy opis hydrodynamiki przepływu faz. Ze względu na intensywny rozwój modeli opisujących przepływy wielofazowe, algorytmów numerycznych oraz wzrost mocy sprzętu komputerowego daje się zaobserwować rosnącą rolę numerycznej mechaniki płynów (CFD) w modelowaniu złożeń fontannowych. W przypadku układów gaz-ciało stałe mamy do czynienia z dwoma podejściami Eulerowsko-Eulerowskim (EE) oraz Eulerowsko-Lagrange'owskim (EL) [H11, H14, H16, H17].

Pierwsze podejście traktuje obie fazy jako wzajemnie przenikające się kontinua płynne. Równania opisujące obie fazy mają podobną strukturę, różnią się tylko ułamkiem objętościowym danej fazy. Są one rozwiązywane dla każdej fazy osobno. Wzajemne oddziaływanie faz uwzględniamy poprzez ciśnienie oraz wprowadzenie tzw. członów oddziaływań międzyfazowych. Modele EE nie mają ograniczeń dotyczących ułamka objętościowego poszczególnych faz, można je stosować w urządzeniach dowolnej skali. Niestety, konieczne jest w ich przypadku opracowanie modelu opisującego reologię fazy rozproszonej. Modele EE nie dają dokładnych informacji dotyczących ruchu cząstek – znamy jedynie ich ułamek objętościowy i uśrednioną prędkość. Koszt obliczeniowy tych metod jest mały, dlatego znajdują często zastosowanie. Konieczna jest jednak w tym przypadku walidacja wartości parametrów modelowych np. stopnia upakowania, współczynnika restytucji itp. Muszą być one określone poprzez porównanie wyników symulacji z danymi eksperymentalnymi dla danej konstrukcji aparatu. W literaturze można zauważyć brak zadawalającej ilości takich danych np. dla aparatów z cyrkulującym złożem.

Modele EL opisują dynamikę fazy zwartej za pomocą uśrednionych w komórce obliczeniowej równań przenoszenia pędu. Natomiast ruch fazy rozproszonej jest modelowany poprzez rozwiązanie równań ruchu dla każdego z jej elementów z osobna, co pociąga za sobą duże zapotrzebowanie na moc obliczeniową oraz pamięć operacyjną. Złoża fluidalne i fontannowe cechują się występowaniem przepływów granularnych o dużym ułamku objętościowym fazy rozproszonej. W związku z tym w ujęciu EL tego typu przepływy najczęściej opisuje się z wykorzystaniem techniki DEM (*Discrete Element Method*). Badacze skupiali się na opisie oddziaływań pomiędzy elementami fazy rozproszonej, gdyż w przypadku jej dużej koncentracji, zderzenia między cząstkami istotnie dominują w stosunku do zderzeń ze ścianami urządzenia. Zaniedbano rozwijanie metod opisujących oddziaływanie cząstek ze ścianami aparatu, co w przypadku cyrkulującego złoża rzadkiego ma podstawowe znaczenie [H14].

### **Omówienie badań własnych**

Moje badania dotyczące aparatów fontannowych składały się z dwóch części: eksperymentalnej oraz symulacyjnej. W części eksperymentalnej zajmowałem się opracowywaniem nowych technologii powlekania różnych nośników za pomocą zawiesin lub proszków (suche powlekanie) [H1, H3, H4, H18, H19, H20]. Jednocześnie rozszerzałem dostępną wiedzę na temat przepływu faz poprzez pomiary ich prędkości i wyznaczanie podstawowych parametrów przepływowych [H2, H5, H8, H12]. Dodatkowo zająłem się dotąd niewykonywanym pomiarem elektryzacji złoża w urządzeniach fontannowych [H9, H10, H13, H15, H21]. W części symulacyjnej

rozwijałem metody numerycznej mechaniki płynów do opisu ruchu faz w trakcie fontannowania [H6, H7, H11, H14, H16, H17, H22, H23].

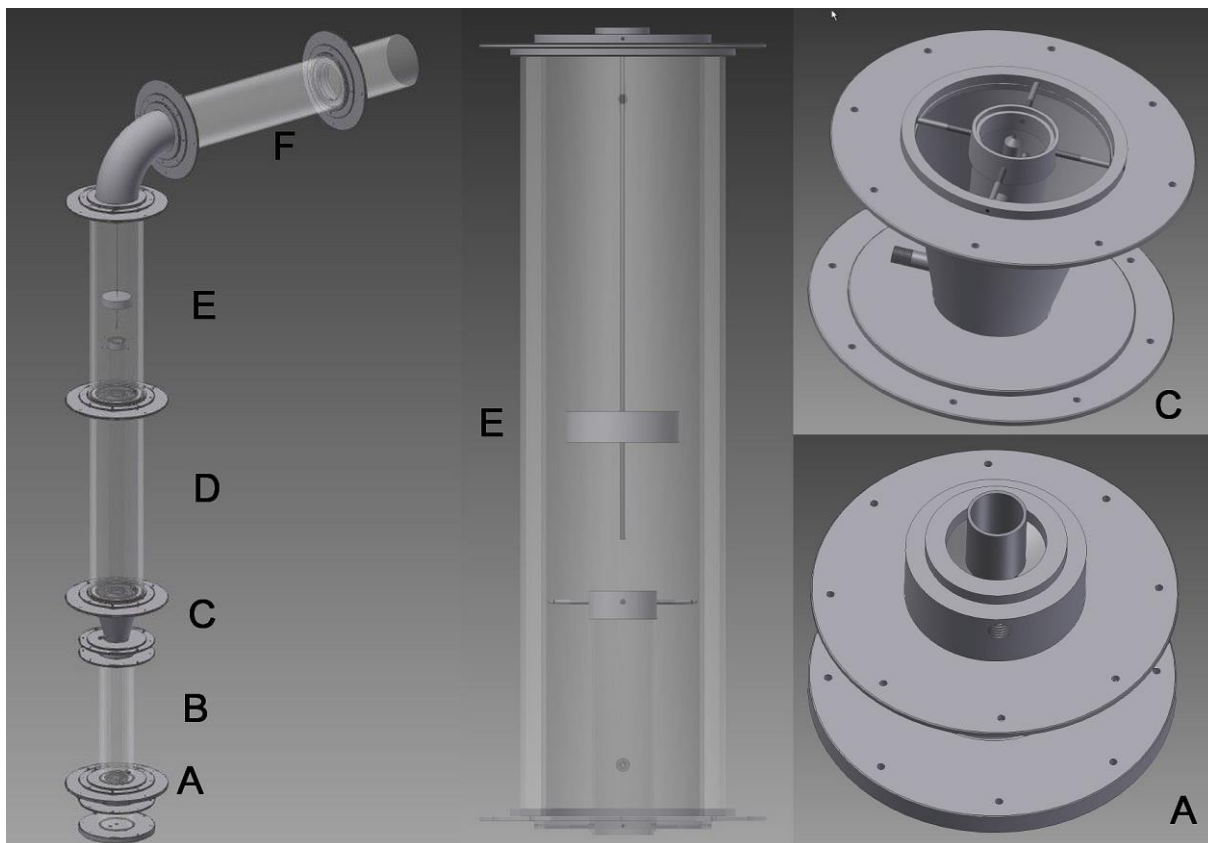
Pomimo tego, że aparaty fontannowe są wykorzystywane od wielu lat do powlekania, to każdy przypadek ich stosowania w danej technologii stanowi osobny problem związany z optymalizacją zmiennych ruchowych i składu mieszanki powlekającej. Na wstępie badań podjąłem współpracę z laboratorium badawczym Zakładów Azotowych „Kędzierzyn” S. A., gdzie prowadzone były od wielu lat prace nad preparatyką katalizatora utleniania o-ksylenu do bezwodnika kwasu ftalowego. Jednym z etapów otrzymywania gotowego wsadu do reaktora jest proces nanoszenia katalitycznej masy aktywnej na obojętny nośnik (kształtki pierścieniowe). Najważniejszymi parametrami tego procesu są: jakość powstałej warstwy, wpływająca na aktywność katalityczną wsadu oraz straty cennej masy aktywnej zwiększające koszty produkcji. Powlekania nośnika dokonywano zazwyczaj poprzez długotrwałe (ok. 4800 s) natryskiwanie alkoholowej zawiesiny masy aktywnej w bębnie obrotowym, w wysokiej temperaturze (powyżej 100 °C). Przy tak prowadzonym procesie straty surowca wynosiły powyżej 10 %, a powtarzalność wyników była niezadowalająca. Ponadto powstała warstwa katalityczna charakteryzowała się niską jakością (różna grubość w różnych miejscach nośnika). W związku z tym zająłem się opracowaniem technologii nanoszenia masy aktywnej na nośnik w klasycznym, stożkowym aparacie fontanowym [H1]. W trakcie badań stwierdziłem, że zastosowany aparat fontanowy po odpowiedniej adaptacji (montaż w dnie dyszy rozpylającej) doskonale nadaje się do powlekania kształtek pierścieniowych zawiesiną tlenku tytanu i masy aktywnej. Jeden cykl procesu (wyprodukowanie 800 cm<sup>3</sup> katalizatora) zachodził w stosunkowo niskiej temperaturze (średnio ok. 55 °C) i w bardzo krótkim czasie (ok. 750 s). Efektywność tego procesu mierzona przyrostem masy nośnika i stratami surowca zależała przede wszystkim od takich parametrów jak: objętościowe natężenie przepływu gazu z wentylatora i kompresora, natężenie przepływu i skład zawiesiny. Ustaliłem, że objętościowe natężenia przepływu poszczególnych strumieni gazu powinny być utrzymywane na poziomie minimalnym pozwalającym na fontannowanie złoża (0.046 m<sup>3</sup>/s) i rozpylanie zawiesiny (4.17·10<sup>-4</sup> m<sup>3</sup>/s). Natomiast objętościowe natężenie przepływu zawiesiny tlenku tytanu w alkoholu etylowym można zwiększyć do poziomu 6.67·10<sup>-7</sup> m<sup>3</sup>/s. Opracowana technologia posłużyła do wyprodukowania kilkunastu kilogramów katalizatora, który został z powodzeniem zastosowany w reaktorze, wykazując wysoką aktywność.

W następnym etapie badałem aparat o zmienionej konstrukcji. Po zamontowaniu rury wznoszącej przeprowadzono w nim badania eksperymentalne przepływu cząstek wyznaczając podstawowe wielkości takie jak: minimalna prędkość fontannowania, spadek ciśnienia na złożu i jego ekspansja. W przypadku rury wznoszącej, której górna krawędź znajdowała się ponad złożem, aby doprowadzić do pełnej wewnętrznej cyrkulacji cząstek i prawidłowego działania urządzenia prędkość gazu musiała być większa niż minimalna prędkość fontannowania. Tę nową wielkość

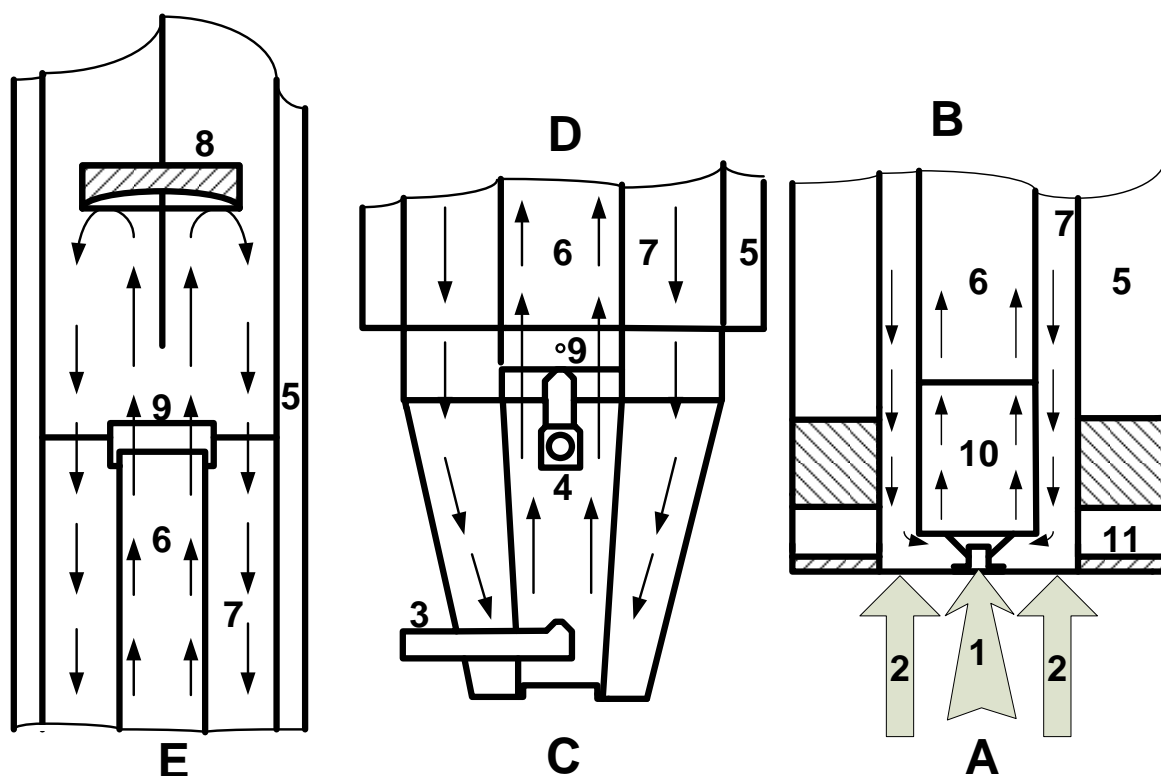
nazwałem minimalną prędkością cyrkulacji (ang. minimum circulation velocity – MCV) i wypracowałem korelację do jej wyznaczenia [H2]. Stwierdziłem, że MCV maleje wraz ze wzrostem wysokości statycznej złoża i spadkiem liczby Archimedesesa cząstek fontannowanych. Gdy wyspane złoże osiągnie górną krawędź rury wznoszącej MCV zrównuje się z minimalną prędkością fontannowania.

Na tym etapie moich badań zainteresowałem się powlekaniami materiałów farmaceutycznych, m. in. leków dojelitowych. Okazało się, że największym problemem w przypadku klasycznej technologii mokrej jest użycie rozpuszczalnika organicznego lub wody, która może inaktywować składnik aktywny. Zdecydowano się więc na zmianę technologii na suchą, której nie można było zastosować w dotychczas używanych urządzeniach. Wiązało się to z budową zupełnie nowego aparatu fontannowo-fluidalnego z rurą wznoszącą z cyrkulującym złożem rzadkim, który powstał w ramach realizacji projektu badawczego „Sucha kapsulacja produktów wrażliwych w aparacie Wurstera” [H18, H20]. Zbudowany aparat ma bardzo nietypową konstrukcję, będącą rozwinięciem pomysłu Wurstera (Rys. 1 i 2). Jego główną część stanowi bardzo długa kolumna (wysokości 3 m) składająca się z trzech, cylindrycznych, szklanych segmentów B, D i E oraz aluminiowego stożka C z dyszami doprowadzającymi powietrze, plastyfikator, a także substancję powlekającą, który w przeciwieństwie do klasycznych rozwiązań został umieszczony pomiędzy dolnym segmentem B (strefa rozpędzania cząstek) a górną częścią D urządzenia (strefa powlekania).

W osiach segmentów znajduje się szklana rura wznosząca 6, ponad którą umieszczono metalowy deflektor 8 pozwalający na ograniczenie wywiewania złoża i umożliwiający zastosowanie dużych prędkości powietrza fontannującego. Podawane jest ono przez strumienicę 10 zasysającą gaz ze strefy pierścieniowej. Cząstki wyspane do aparatu swobodnie opadają na dno segmentu dolnego B. Po włączeniu strumienia gazu fontannującego 1 cząstki zostają zasysane i rozpędzane tak, by uzyskać odpowiednią prędkość cyrkulacji, przelatują przez stożek C wyposażony w dysze proszku 3 oraz plastyfikatora 4, a następnie przez górną rurę wznoszącą 6 w segmencie D, gdzie są powlekane. Wylatując z rury wznoszącej kolejno odbijają się od deflektora 8, wpadają do strefy pierścieniowej 7 (strefa suszenia) i opadają na dno. W strefie załadunku A są ponownie zasysane.



Rys. 1. Schemat aparatu fluidalno-fontannowego z cyrkulującym złożem rzadkim do suchego powlekania [H11]: A – strefa porywania (załadunku) cząstek, B – dolny segment (strefa rozpędzania), C – stożek z dyszami rozpylającymi plastyfikator i proszek powlekający, D – środkowy segment (strefa powlekania), E – górny segment (strefa fontanny), F – wylot (strefa odpylania).



Rys. 2. Szczegóły wybranych fragmentów aparatu fontannowo-fluidalnego z cyrkulującym złożem rzadkim do suchego powlekania (strzałki pokazują trajektorie ruchu cząstek powlekaných) [H8]: A – strefa porywania ze strumienicą, B – dolny segment (strefa rozpędzania), C – stożek z dyszami, D – środkowy segment (strefa powlekania), E – górny segment (strefa fontanny), 1 – główny strumień powietrza fontannującego, 2 – strumień powietrza fluidyzującego, 3 – dysza rozpylająca proszek, 4 – dysza rozpylająca plastyfikator, 5 – podwójna, szklana ściana zewnętrzna aparatu, 6 – szklana rura wznosząca, 7 – strefa pierścieniowa (strefa suszenia), 8 – aluminiowy deflektor, 9 – aluminiowe pierścienie łączące, 10 – metalowa strumienica, 11 – otwory do wyładunku złoża.

Aby potwierdzić prawidłowe działanie aparatu opracowałem optyczne metody pomiarowe prędkości przepływu i koncentracji cząstek. Następnie wykonałem badania eksperymentalne mierząc te wielkości dla różnych objętości (od 150 do 500 cm<sup>3</sup>) wsypanego złoża cząstek Cellets 500, 700 i 1000 z celulozy mikrokrystalicznej, które są często stosowane jako nośniki leków w przemyśle farmaceutycznym [H5, H8]. Badania potwierdziły, że zastosowanie nowatorskich rozwiązań konstrukcyjnych – strumienicy w dolnej części urządzenia A i deflektora w strefie fontanny E, spowodowało znaczną zmianę charakteru przepływu ciała stałego w strefie pierścieniowej 7. Zamiast opadać swobodnie są one rozpędzane do prędkości porównywalnych z tymi w rurze wznoszącej (kilka metrów na sekundę). To powoduje wzrost intensywności cyrkulacji. Aparat pracuje w reżimie złoża rozrzedzonego (ułamek objętościowy ciała stałego 10<sup>-3</sup>-10<sup>-4</sup>), szybkiego. Jednocześnie zaobserwowałem, że po przekroczeniu przez gaz minimalnej prędkości cyrkulacji aparat nie pracuje

prawidłowo. Złoże co prawda wydostaje się z rury wznoszącej, ale dochodzi do jego pulsacji i zmian prędkości cząstek. Minimalne natężenie powietrza fontannującego, przy którym nie występowały te niekorzystne zjawiska nazwałem minimalną prędkością stabilnej cyrkulacji (ang. minimum stable circulation velocity – MSCV) [H8]. Okazało się, że MSCV jest znacznie większa od minimalnej prędkości cyrkulacji i nieznacznie mniejsza od prędkości wywiewania cząstek. Aparat pracuje zatem prawidłowo jedynie w wąskim zakresie natężeń przepływu powietrza fontannującego. Zaobserwowałem także, zwłaszcza dla najmniejszych cząstek Cellets 500, oblepianie przez nie ścian kolumny, szczególnie w części pierścieniowej aparatu, co związane było najprawdopodobniej z ich silną naturalną elektryzacją.

Postanowiono to wykorzystać w procesie powlekania elektrostatycznego, ładując proszek powlekający ładunkiem przeciwnym do złoża za pomocą zestawu do malowania proszkowego. Wykonałem pierwsze próby tego typu powlekania [H3, H4, H19], w których na 200 cm<sup>3</sup> złoża cząstek Cellets barwionych błękitem metylenowym nanoszono powłokę HPMCAS (octanobursztynianu hydroksypropylometylcelulozy) o selektywnej rozpuszczalności. Do aparatu wprowadzano także plastyfikator, którym był cytrynian trietylu. Następnie przeprowadziłem próby rozpuszczalności utwardzonej w 60 °C powłoki cząstek w roztworze kwasu i buforze zasadowym, które miały symulować środowisko odpowiednio: żołądka i jelita cienkiego. W czasie 0 – 900 s, otrzymano w przybliżeniu linowe zależności stężenia barwnika w roztworze od czasu uwalniania. W środowisku kwaśnym szybkość uwalniania markera była 25 razy mniejsza niż w środowisku zasadowym. Parametry te uznałem za zadawalające dla leków dojelitowych, jednak w trakcie procesu stwierdzono duże straty proszku (20-30 %) oraz częściową aglomerację złoża wokół podpór strumienicy gazu fontannującego. Aby wyeliminować te zjawiska koniecznym okazało się przeprowadzenie obliczeń modelowych mających na celu optymalizację konstrukcji aparatu oraz dalszych badań elektryzacji złoża. Wykonano je w ramach finansowanego przez Narodowe Centrum Nauki projektu „Modelowanie procesu suchego powlekania elektrostatycznego leków dojelitowych w zmodyfikowanym aparacie Wurstera”, którego byłem kierownikiem.

Pierwszym etapem części obliczeniowej było opracowanie modelu CFD przepływu gazu w aparacie fontannowo-fluidalnym z cyrkulującym złożem rzadkim [H6, H7]. Posłużył on do zbadania wpływu zmiennych hydrodynamicznych i konstrukcyjnych na prędkości cyrkulacji gazu (masowego natężenia przepływu gazu w rurze wznoszącej), która wpływa bezpośrednio na prędkość cyrkulacji cząstek w procesie powlekania. W ten sposób uzyskałem pierwsze wskazówki dotyczące koniecznych zmian konstrukcji urządzenia oraz doboru natężeń przepływu strumieni powietrza. Wynioskowałem, że należy zastosować maksymalne możliwe do osiągnięcia masowe natężenie powietrza fontannującego, zapewniające maksymalną prędkość cyrkulacji cząstek. Z kolei masowe natężenie przepływu bocznego strumienia powietrza fluidyzującego powinno utrzymywać się



na minimalnym poziomie uniemożliwiającym zlepianie się cząstek w strefie załadunku (porywania cząstek) aparatu. Zaobserwowałem, że warto także rozważyć zmianę konstrukcji dysz rozpylających (zmniejszenie przekroju poprzecznego korpusu i przewodów doprowadzających powietrze oraz plastifikator) i strumienicy (usunięcie pionowych podpór i korpusu), w celu ograniczenia oporu przepływu powietrza. Takie zmiany konstrukcyjne spowodowały wzrost masowego natężenia przepływu gazu w rurze wznoszącej i części pierścieniowej odpowiednio od 4 do 25 % i od 5 do 32 %.

Następnie opracowałem model typu EE przepływu dwufazowego gaz-ciało stałe, który zweryfikowałem na podstawie wartości prędkości cząstek uzyskanych doświadczalnie metodą DPIV (Digital Particle Image Velocimetry) we współpracy z Politechniką Opolską [H11]. Zbadałem wpływ parametrów modelu na obliczoną prędkość fazy rozdrobnionej w strefie rury wznoszącej oraz w strefie pierścieniowej urządzenia dla różnych objętości początkowych złoża (od 100 do 400 cm<sup>3</sup>) i prędkości gazu fontannującego w dyszy (od 189 do 407 m/s). Pod uwagę wziąłem międzyfazowy współczynnik wymiany pędu, współczynnik restytucji oraz stopień upakowania. Największy wpływ na prędkość cząstek miał międzyfazowy współczynnik wymiany pędu. W specyficznych warunkach hydrodynamicznych panujących w aparacie (duża prędkość cyrkulacji cząstek, bardzo mały ułamek objętościowy fazy rozdrobnionej we wszystkich strefach) największą dokładność uzyskano przy zastosowaniu modelu Gidaspowa. Najlepszy zestaw parametrów modelu jaki uzyskałem to: stopień upakowania 0.55, współczynnik restytucji 0.9. Przy ich zastosowaniu średni błąd obliczonej prędkości cząstek dla wszystkich wysokości początkowych złoża wyniósł maksymalnie 9 % w strefie rury wznoszącej oraz 19 % w strefie pierścieniowej.

W związku z tym, że model EE nie daje pełnej informacji o cyrkulacji fazy rozproszonej (brak możliwości śledzenia trajektorii cząstek) zdecydowałem się na zmianę typu modelowania na EL [H14, H16, H17, H23]. W przypadku opisywanego aparatu fontannowo-fluidalnego ułamek objętościowy cząstek jest tak mały, że można zaniedbać wpływ zderzeń międzycząstkowych na hydrodynamikę ich przepływu. Zasadniczą rolę odgrywają natomiast zderzenia cząstek ze ścianami urządzenia, które do tej pory nie zostały w pełni opisane. Po raz pierwszy do obliczeń w aparatach fontannowych zastosowałem model typu „hard sphere”, w którym prędkość cząstki oraz kąt jej odbicia po zderzeniu wyznacza się na podstawie współczynników restytucji stycznego i prostopadłego wg zależności [H14]:

$$e_{n,t} = \frac{V_{r\ n,t}}{V_{i\ n,t}} \quad (1)$$

gdzie  $e$  - współczynnik restytucji,  $V_r$  – prędkość cząstki po zderzeniu ze ścianą  $V_i$  – prędkość cząstki przed zderzeniem ze ścianą, a indeksy  $n$  i  $t$  oznaczają odpowiednio składową prostopadłą i styczną prędkości.

Wykonałem szereg symulacji dla różnych objętości wsypanego złoża (od 100 do 400 cm<sup>3</sup>) i prędkości gazu fontannującego w dyszy (od 189 do 407 m/s), w których przyjąłem stałe wartości współczynników restytucji (od 0.8 do 1). Zastosowałem także model, w którym wartości współczynników restytucji zależą od prędkości zderzenia oraz kąta padania. Początkowo zdecydowałem się na wyznaczenie współczynników restytucji prostopadłego i stycznego na podstawie odpowiednio równania Thortona (2) i Wu (3):

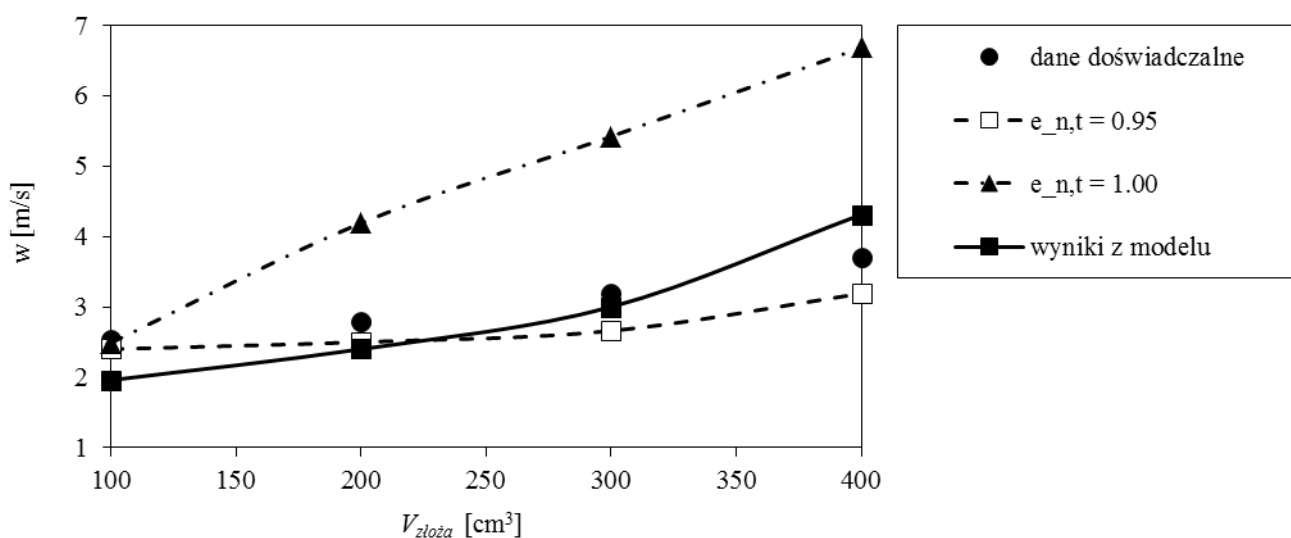
$$e_n = \left\{ \left( \frac{6\sqrt{3}}{5} \right) \left[ 1 - \frac{1}{6} \left( \frac{V_y}{V_{ni}} \right)^2 \right] \right\}^{1/2} \left\{ \left( \frac{V_y}{V_{ni}} \right) \left[ \left( \frac{V_y}{V_{ni}} \right) + 2 \sqrt{1.2 - 0.2 \left( \frac{V_y}{V_{ni}} \right)^2} \right] \right\}^{1/4} \quad (2)$$

$$e_t = 1 - f \frac{(1 - e_n)}{\tan(90^\circ - \theta)} \quad (3)$$

gdzie  $e_n$  – normalny (prostopadły) współczynnik restytucji,  $e_t$  – styczny współczynnik restytucji,  $V_y$  – prędkość uplastyczniana zależna od własności fizycznych cząstki i ściany,  $V_{ni}$  – składowa normalna prędkości uderzenia cząstki o ścianę,  $\theta$  – kąt uderzenia cząstki,  $f$  – współczynnik pulsacji.

Otrzymane z obliczeń wartości prędkości fazy rozproszonej porównałem z danymi eksperymentalnymi (Rys. 3). W przypadku zastosowania stałych współczynników restytucji największą dokładność obliczeń uzyskałem w rurze wznoszącej dla ich wartości równej 0.95 (błąd względny maksymalny -14 % i minimalny -5 %). W strefie pierścieniowej najlepszym okazało się założenie, że oba współczynniki restytucji wynoszą 1 (błąd względny maksymalny -28 % i minimalny -10 %). Wprowadzenie modelu zderzeń spowodowało osiągnięcie dokładności porównywalnej z wynikami przy założeniu stałych współczynników restytucji (Rys. 3).

Następnie dokonałem selekcji i oceny dostępnych w literaturze teorii zderzeń umożliwiających obliczenie prostopadłego współczynnika restytucji [H16]. Sprawdziłem ich wpływ na prędkość cyrkulujących cząstek. Okazało się, że zastosowanie modelu Li, Wu i Thortona dawało największą zbieżność z danymi eksperymentalnymi.



Rys. 3. Porównanie wyników średniej prędkości cząstek w połowie wysokości rury wznoszącej otrzymanych z obliczeń przy założeniu stałych współczynników restytucji i przy zastosowaniu modelu zderzeń z danymi eksperymentalnymi dla różnych objętości wsypanego złoża [H14].

W kolejnym etapie badań opracowałem i rozwiązałem model EL przepływu cząstek proszku powlekającego, który umożliwił analizę jakościową pracy dyszy rozpylającej w zmodyfikowanym aparacie Wurstera w zależności od ciśnienia gazu rozpylającego [H22]. Stwierdziłem równomierny rozkład prędkości cząstek oraz ich koncentracji w osi urządzenia. Zaobserwowałem jednak występowanie niekorzystnych zjawisk związanych z ruchem cząstek w strefie stożka i rury wznoszącej. W związku z umieszczeniem dyszy proszku w niewielkiej odległości poniżej dolnej krawędzi dyszy plastyfikatora dochodzi do odbicia cząstek i zaburzeń ich dystrybucji wewnątrz stożka. Dysza plastyfikatora jest zbyt duża, jej korpus zajmuje znaczną część przekroju aparatu, co skutkuje przepływem większości proszku wąskim przekrojem przy ścianach stożka. Wywołuje to wzrost koncentracji proszku w pobliżu ścian rury wznoszącej i jego akumulację, nawet w przypadku wypływu gazu z dużą prędkością z dyszy plastyfikatora. Na podstawie wyników symulacji modelowych stwierdziłem, że opisywane zjawiska można ograniczyć poprzez zmiany konstrukcyjne aparatu tj. zwiększenie odległości między dyszami lub zmianę położenia dyszy proszku oraz w miarę możliwości zmniejszenie wielkości korpusu dyszy plastyfikatora i przewodów doprowadzających do niej gaz i ciecz, co powinno się przyczynić do obniżenia spadku ciśnienia powietrza w urządzeniu.

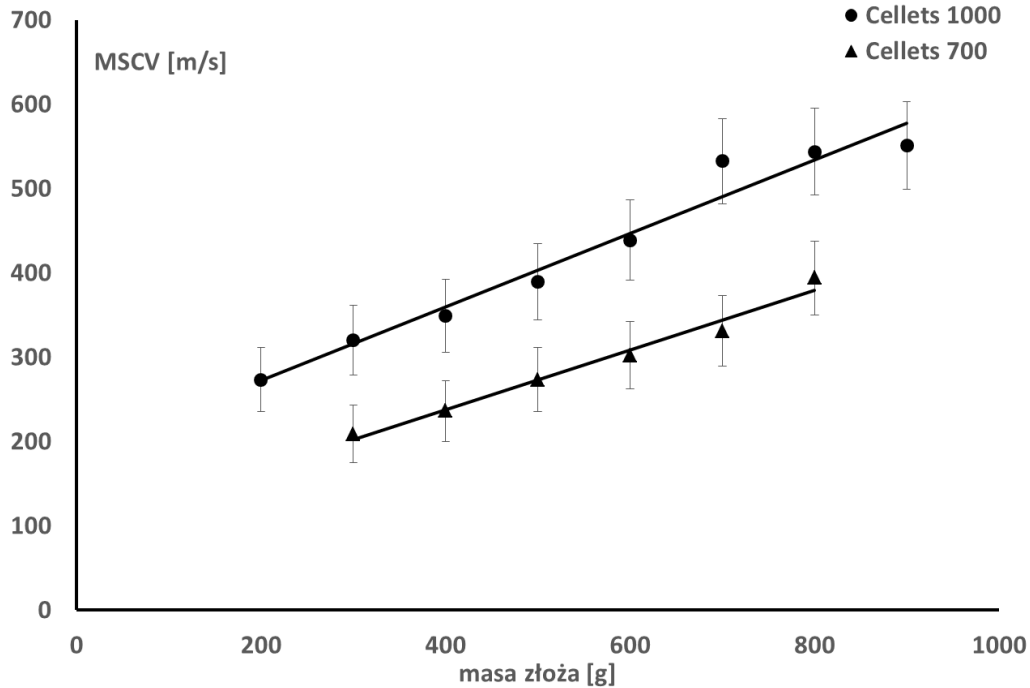
W kolejnym etapie opracowałem model typu EL rozpylania plastyfikatora, który umożliwił obliczenie średniej średnicy sauterowskiej powstałych kropeł, rozkładu ich prędkości oraz koncentracji w strefie powlekania aparatu. Model skalibrowałem na podstawie szeregu eksperymentów numerycznych i porównania wyników obliczeń średniej średnicy sauterowskiej

kropel wody z wynikami uzyskanymi z korelacji Nukiyamy i Tanasawy. W ten sposób opracowałem zestaw optymalnych ustawień modelu (ang. sheet constant 16, ligament constant 0.9, liczba wtryskiwanych strumieni cząstek 500). Okazało się, że największy wpływ na wielkość kropel mają zjawiska wtórne: koalescencja i rozbijanie. Dopiero po ich uwzględnieniu uzyskano zadawalającą zgodność wyników obliczeń z korelacją empiryczną. Na podstawie modelu dokonałem wstępnej analizy parametrów rozpylania plastyfikatora (cytrynian trietylu) stosowanego w trakcie suchego powlekania proszkowego. Ustaliłem, że proces należy prowadzić przy ściśle ustalonym ciśnieniu gazu rozpylającego ( $2 \cdot 10^5$  Pa). Przy tej wartości w odległości 30 cm od wylotu dyszy dochodzi o ujednoczenia średnicy oraz prędkości kropel w strefie powlekania. Jednocześnie posiadają one właściwy rozmiar (około 20  $\mu\text{m}$ ), co zapewnia dobrą jakość powstałej w trakcie powlekania powłoki. Przy większych ciśnieniach gazu powstają bardzo drobne krople o średnicy rzędu kilku mikrometrów, które są łatwo wywiewane z urządzenia.

Następnie wykonałem symulacje jednoczesnego rozpylania proszku powlekającego i plastyfikatora, uzyskując rozkłady prędkości oraz ułamka objętościowego obu substancji w zależności od ciśnienia wtrysku i natężenia przepływu mediów. Zaobserwowałem korzystną równomierną koncentrację cząstek i ich wyrównaną prędkość w strefie powlekania już w odległości 30 cm od wylotu dyszy plastyfikatora dla mniejszych ciśnień wtrysku (do  $2 \cdot 10^5$  Pa). Przy większych ciśnieniach dochodziło do akumulacji cząstek na ścianach deflektora i ich wywiewania poza aparat.

Na wstępnym etapie badań eksperymentalnych dokonano modyfikacji konstrukcji aparatu fontannowo-fluidalnego do suchego powlekania na podstawie obliczeń modelowych. Usunięto podpory strumienicy uzyskując powiększenie strefy załadunku cząstek ułatwiając w ten sposób ich cyrkulację. Jednocześnie skonstruowano nową dyszę proszku i przeniesiono jej wylot ponad dyszę plastyfikatora. Zastosowano wysokowydajny kompresor umożliwiający cyrkulowanie złóż o większej masie (do 1 kg). Użycie drugiej nagrzewnicy powietrza pozwoliło na uzyskiwanie temperatury wlotowej powietrza fontannującego do 70 °C. Taka temperatura jest wystarczająca do przeprowadzenia procesu spiekania wewnątrz aparatu. W zmienionej instalacji przeprowadzono szersze badania podstawowych parametrów hydrodynamicznych tj. minimalnej prędkości stabilnej cyrkulacji (ang. minimum stable circulation velocity - MSCV) [H12] oraz prędkości cząstek.

Wyzaczyłem MSCV dla różnych mas złoża (od 200 do 1000 g), jego wilgotności (od 0 do 10 %) oraz wielkości cząstek (Cellets 200, 700 i 1000) [H12].

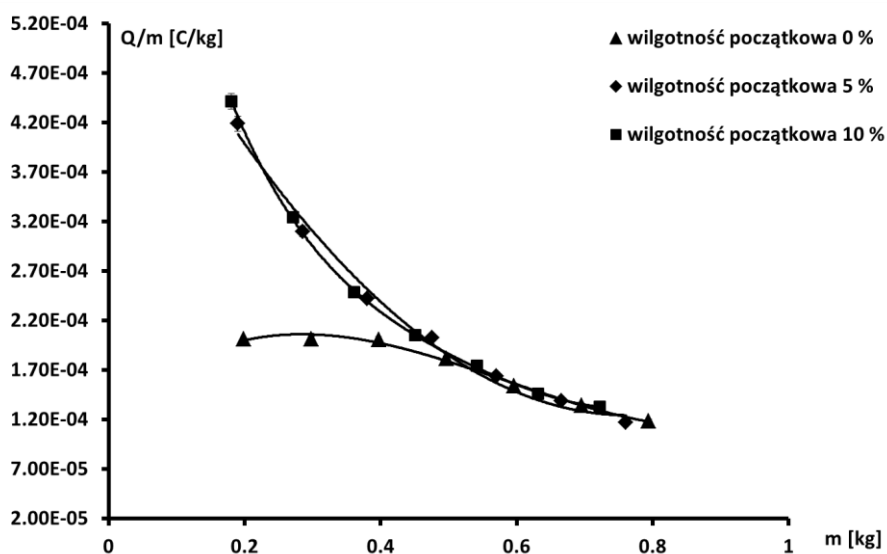


Rys. 4. Zależność MSCV od masy wsypanego złoża i rodzaju cząstek o wilgotności 4 % [H12].

MSCV rosła wraz ze wzrostem masy wsypywanego złoża, co niezgodne jest z doniesieniami literaturowymi dotyczącymi minimalnej prędkości cyrkulacji w klasycznych urządzeniach z rurą wznoszącą (Rys. 4). Badany aparat pracował jednak w reżimie złoża rozrzedzonego – wysokość złoża usypanego była zbyt mała w stosunku do wysokości urządzenia, aby wpływać na minimalną prędkość cyrkulacji. Wraz ze zmniejszeniem średnicy cząstek podobnie jak w aparatach klasycznych MSCV malała (Rys. 4). Wilgotność złoża wpływała na minimalną prędkość stabilnej cyrkulacji jedynie dla cząstek o mniejszej średnicy (Cellets 700 i 200). Dla tych cząstek wraz ze wzrostem wilgotności złoża zaobserwowałem wzrost MSCV, co związane było ze zmianą ich własności elektrycznych, które zbadano w następnym etapie.

W warunkach laboratoryjnych określono rezystancję skrośną, względną przenikalność dielektryczną, czas relaksacji ładunku oraz stopień naelektryzowania dla różnych cząstek Cellets (100, 700 i 1000), o różnej wilgotności (od 0 do 10 %) [H9]. Stwierdzono, że cząstki o wilgotności zbliżonej do 0 posiadają za dużą rezystywność skrośną, by mogły być użyte jako rdzenie do powlekania elektrostatycznego (powyżej  $10^{16} \Omega m$ ). Taka wartość tego parametry powoduje długotrwałą akumulację ładunku elektrycznego na ich powierzchni (długi czas relaksacji), a przez to problem z wytworzeniem dostatecznie grubej warstwy powlekającej. Poza tym duża elektryzacja cząstek sprzyja ich silnemu przyciąganiu do ścian aparatu, czasami wręcz uniemożliwiając stabilną cyrkulację (zwłaszcza dla Cellets 100). Parametry elektryczne cząstek mogą być zmodyfikowane do pożądaných wartości poprzez zwiększenie ich wilgotności powyżej 5 %.

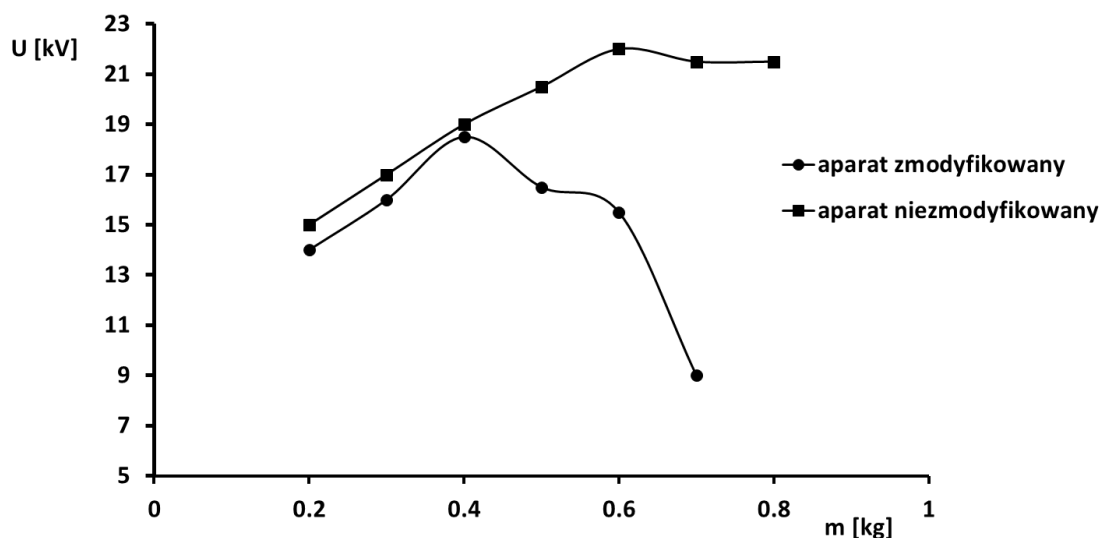
Aby dokonać pomiarów elektryzacji w warunkach dynamicznych w trakcie cyrkulacji w urządzeniu skonstruowałem układ pomiarowy wykorzystujący elementy wewnętrznej zabudowy aparatu (deflektor, mocowanie rury wznoszącej), który nie wymagał poważnej ingerencji w konstrukcję. Dzięki niemu określono wartości parametrów elektryzacji (potencjał elektryzacji oraz prąd elektryzacji) w czasie cyrkulacji cząstek w aparacie, w zależności od masy złoża (od 0.2 do 0.8 kg), jego wilgotności (od 0 do 10 %) oraz objętościowego natężenia przepływu gazu fontannującego (od 0.011 do 0.018 m<sup>3</sup>/s) [H10]. Stwierdziłem, że różnica potencjałów w kolumnie, pomimo uziemienia jej metalowych elementów, osiągała bardzo duże wartości – od kilkunastu do kilkudziesięciu kilowoltów, co potwierdziło przypuszczenie o elektrostatycznym mechanizmie obserwowanych wcześniej niekorzystnych zjawisk takich jak m.in. oblepianie wnętrza kolumny. Następnie układ pomiarowy zmodyfikowano poprzez zastosowanie kondensatora wysokonapięciowego, tak aby wyznaczyć ładunek zgromadzony na złożu [H15, H21]. Okazało się, że cząstki osiągają bardzo szybko stan wysokiego nasycenia elektrostatycznego (10<sup>-4</sup>-10<sup>-5</sup> C/kg) około dziesięć razy większego niż w tradycyjnych złożach fluidalnych (Rys. 5).



Rys. 5. Przykładowa zależność wartości ładunku względnego na złożu od jego masy i różnych wilgotności początkowych cząstek (Cellets 1000, objętościowe natężenie przepływu gazu fontannującego 0.018 m<sup>3</sup>/s) [H15].

W celu obniżenia niekontrolowanej elektryzacji cząstek w aparacie, postanowiłem zastąpić części szklane przez elementy wykonane ze stali i aluminium (dwa górne segmenty i rury wznoszące), a następnie uziemić je. Zmierzylem potencjał oraz prąd elektryzacji w tych samych warunkach co w poprzednich doświadczeniach [H13]. Eksperymenty potwierdziły skuteczność zastosowania stalowych ścian kolumny oraz ich uziemienia w ograniczeniu niekontrolowanej elektryzacji cząstek

w aparacie fontannowo-fluidalnym, zwłaszcza przy większej masie złoża (powyżej 400 g) – potencjał elektryzacji w tych warunkach był znacznie mniejszy niż w urządzeniu szklanym (Rys. 6).



Rys. 6. Zależność potencjału elektryzacji od masy cyrkulującego złoża (Cellets 1000 o wilgotności 0 %) [H13].

W toku badań opracowałem technologię nanoszenia składnika aktywnego (paracetamolu) na cząstki nośnikowe Cellets 1000 w klasycznym, stożkowym aparacie fontannowym. Ustalono skład roztworu powlekającego: 4.5 g HPMC (hydroksymetylopropylocelulozy jako substancji błonotwórczej), 45 g wody, 600 cm<sup>3</sup> 96 % alkoholu etylowego, 0.45 g PEG 4000 (glikolu polietylenowego) jako lepiszcza oraz 96 g acetaminofenu do naniesienia na 800 g rdzeni. Dokonałem także doboru parametrów ruchowych procesu: objętościowe natężenie przepływu roztworu powlekającego 3.33·10<sup>-7</sup> m<sup>3</sup>/s, objętościowe natężenie przepływu powietrza rozpylającego 9.16·10<sup>-4</sup> m<sup>3</sup>/s, objętościowe natężenie przepływu powietrza fontannującego 0.015 m<sup>3</sup>/s, temperatura wewnątrz kolumny 50 °C. Kończącym etapem było wyprodukowanie 10 kg półproduktu do dalszego powlekania.

Moje badania przyczyniły się do rozszerzenia wiedzy związanej z modelowaniem CFD przepływu faz w aparatach fontannowo-fluidalnych z szybko cyrkulującym rozrzedzonym złożem. Przedstawiłem dane dotyczące najlepszych ustawień modułu rozwiązującego (solvera) przy zastosowaniu podejścia EE w takich urządzeniach [H11]. Opublikowałem brakujące w literaturze wyniki prędkości fazy rozproszonej otrzymane po zastosowaniu modeli mechanicznych zderzeń do opisu oddziaływań cząstek ze ścianami aparatu za pomocą podejścia EL [H14].

Uzyskałem dane empiryczne opisujące własności elektryczne celulozy mikrokrystalicznej [H9]. Jednocześnie po raz pierwszy wykonałem pomiary elektryzacji złoża w aparatach fontannowo-fluidalnych z szybko cyrkulującym rozrzedzonym złożem oraz przedstawiłem proste metody pomiaru potencjału oraz prądu elektryzacji i ładunku zgromadzonego w złożu [H10, H15, H21]. Udowodniłem,

że wbrew doniesieniom literaturowym, dzięki zupełnie różnej od klasycznych urządzeń hydrodynamicie przepływu, można skutecznie ograniczyć w takich aparatach niekontrolowaną elektryzację cząstek poprzez zmianę materiału konstrukcyjnego płaszczka i jego uziemienie [H13].

Analiza materiału eksperymentalnego zgromadzonego w trakcie prac przyczyniła się do lepszego zrozumienia zjawisk elektrostatycznych zachodzących w urządzeniach fontannowo-fluidalnych z cyrkulującym złożem rzadkim i może posłużyć do optymalizacji procesu powlekania elektrostatycznego.

Za osiągnięcia przeprowadzonych badań uznaję:

- Opracowanie technologii nanoszenia katalizatora i substancji aktywnej na nośniki w złożu fontannowym.
- Opracowanie technologii nanoszenia warstwy selektywnie rozpuszczalnej metodą suchego powlekania.
- Ustalenie metod pomiarowych oraz uzyskanie wartości parametrów elektrycznych cząstek celulozy mikrokrystalicznej.
- Opracowanie metody pomiaru oraz wykonanie badań elektryzacji złoża w aparacie fontannowo-fluidalnym.
- Wprowadzenie pojęcia minimalnej prędkości cyrkulacji opisującej przepływ cząstek w aparatach fontannowych z rurą wznoszącą oraz wyprowadzenie korelacji, którą oblicza.
- Ustalenie nowej wielkości charakteryzującej przepływ cząstek w aparacie fontannowo-fluidalnym z cyrkulującym złożem rzadkim – minimalnej prędkości stabilnej cyrkulacji.
- Zastosowanie modelu EE do opisu przepływu cząstek w aparacie fontannowo-fluidalnym z cyrkulującym złożem rzadkim.
- Użycie mechanicznych teorii zderzeń do opisu przepływu cząstek w aparacie fontannowo-fluidalnym z cyrkulującym złożem rzadkim.
- Opisanie modelem EL przepływu kropli plastyfikatora.



## 5. Wykaz prac i omówienie pozostałych osiągnięć naukowych po uzyskaniu stopnia doktora

### 5.1 Wykaz ważniejszych prac opublikowanych po uzyskaniu stopnia doktora

#### A. Artykuły w czasopismach znajdujących się w bazie Journal Citation Reports (JCR)

(wartości IF – impact factor i M – liczbę punktów z listy ministerialnej podano z roku wydania pracy)

- A1. Ludwig W., Kmieć A., 1998, Model przepływu dwufazowego gaz-ciało stałe w aparacie fluidyzacyjnym z rurą wznoszącą : I. Wyprowadzenie modelu, Inżynieria Chemiczna i Procesowa, 19, 3, 557-573, **IF 0.238**.
- A2. Ludwig W., Kmieć A., 1998, Model przepływu dwufazowego gaz-ciało stałe w aparacie fluidyzacyjnym z rurą wznoszącą : II. Rozwiązanie modelu, Inżynieria Chemiczna i Procesowa, 19, 3, 575-589, **IF 0.238**.
- A3. Ludwig W., Kmieć A., 1999, Hydrodynamika fontannowania w aparacie z rurą wznoszącą, Inżynieria Chemiczna i Procesowa, 20, 2, 245-263, **IF 0.192**.
- A4. Ludwig W., Kmieć A., 2001, Wpływ parametrów konstrukcyjnych na pracę aparatu fontannowego z centralną rurą wznoszącą, Inżynieria Chemiczna i Procesowa, 22, 3D, 881-886, **IF 0.473**.
- A5. Szafran R., Kmieć A., Ludwig W., 2005, CFD modeling of a spouted-bed dryer hydrodynamics, Drying Technology, 23, 8, 1723-1736, **IF 1.09, M 32**.
- A6. Koźlecki T., Sawiński W., Sokołowski A., Ludwig W., Polowczyk I., 2008, Extraction of organic impurities using 1-butyl-3-methylimidazolium hexafluorophosphate [BMIM][PF6], Polish Journal of Chemical Technology, 10, 1, 79-83, **M 9**.
- A7. Ludwig W., Dziak J., Sawiński W., Królikowski K., Kapłon J., Tuta J., 2008, Modelling of hydrodynamics of a thin-layer evaporator with gravitational liquid flow using CFD methods, Chemical and Process Engineering, 29, 1, 215-220, **IF 0.199, M 13**.
- A8. Ludwig W., Dziak J., 2009, CFD modelling of a laminar film flow, Chemical and Process Engineering, 30, 3, 417-430, **IF 0.18, M 13**.
- A9. Szafran R., Witek-Krowiak A., Ludwig W., 2010, Nowe heterogeniczne katalizatory reakcji Friedela i Craftsa. Cz. 2, Nanokompozyty Nafion/SiO<sub>2</sub>, Przemysł Chemiczny, 89, 9, 1221-1224, **IF 0.29, M 13**.

- A10. Szafran R., Ludwig W., Patronik P., 2011, Bezinwazyjne metody pomiaru pól prędkości płynu. Cz. 1, Opis układu pomiarowego, Przemysł Chemiczny, 90, 4, 580-586, **IF 0.414, M 13.**
- A11. Szafran R., Ludwig W., Patronik P., 2011, Bezinwazyjne metody pomiaru pól prędkości płynu. Cz. 2, Walidacja zestawu pomiarowego oraz kodów numerycznych, Przemysł Chemiczny, 90, 4, 587-590, **IF 0.414, M 13.**
- A12. Ludwig W., Zając D., 2017, Modification of a recuperator construction with CFD methods. Chemical and Process Engineering, 38, 4, 567-576, **IF 0.892, M 15.**

#### **B. Artykuły w czasopismach zagranicznych (spoza JCR)**

- B1. Ludwig W., Szafran R., Kmieć A., Dziak J., 2012, Measurements of flow hydrodynamics in a jet-loop reactor using PIV method, Procedia Engineering, 42, 1266-1277, **M 2.**

#### **C. Artykuły w czasopismach krajowych (spoza JCR)**

- C1. Kmieć A., Ludwig W., Szafran R., Stal J., 2004, Wymiana ciepła w suszarce fontannowej z wirowym strumieniem bocznym, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 43, 3, 12-14, **M 6.**
- C2. Dziak J., Kapłon J., Królikowski L., Ludwig W., 2007, Sawiński W., Sprawność rozdzielu ciekłych mieszanin o podwyższonej lepkości w wyparce cienkowarstewkowej z rozcieranym filmem, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 46, 4/5, 55-59, **M 6.**
- C3. Polowczyk I., Sawiński W., Ludwig W., Koźlecki T., 2007, Hydrodynamika i wymiana masy w kolumnie z posuwisto-zwrotnym ruchem pótek sitowych dla układu z wymianą masy z fazy rozproszonej do fazy ciągłej, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 46, 4/5, 99-103, **M 6.**
- C4. Ludwig W., Dziak J., Sawiński W., 2007, Modelowanie metodami CFD hydrodynamiki strumienicy jednocieczowej, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 46, 6, 18-21, **M 6.**
- C5. Dziak J., Kapłon J., Królikowski L., Ludwig W., Sawiński W., 2008, Ruch ciepła i masy podczas cienkowarstewkowego odparowania roztworów o podwyższonej lepkości, Termodynamika w nauce i gospodarce, T. 1, Wrocław, Oficyna Wydawnicza Politechniki Wrocławskiej, 240-245.
- C6. Ludwig W., Dziak J., Sawiński W., 2010, Optymalizacja pompy strumieniowej za pomocą metod CFD. Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 49, 1, 67-68, **M 6.**
- C7. Dziak J., Kubala M., Kapłon J., Ludwig W., 2010, Wyznaczanie współczynników wnikania masy podczas odparowania cienkowarstewkowego roztworu przy wykorzystaniu wyników destylacji lub wyników badań ruchu ciepła, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 49, 2, 37-38, **M 6**

- C8. Sokołowski A., Sawiński W., Polowczyk I., Koźlecki T., Ludwig W., Feder-Kubis J. M., 2010, Równowagi ciecz - ciecz w trójskładnikowych układach [BMIM][PF6] – alkohol – woda, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 49, 1, 101-102, **M 6**.
- C9. Sawiński W., Feder-Kubis J. M., Ludwig W., 2013, Ekstrakcja jonów miedzi w ceramicznym kontaktorze membranowym, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 52, 5, 471-472, **M 5**.
- C10. Ludwig W., Sawiński W., 2013, Modelowanie CFD mieszalnika strumieniowego, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 52, 6, 543-544, **M 5**.
- C11. Ludwig W., Szafran R., Feder-Kubis J. M., 2014, Hydrodynamika przepływu cieczy w reaktorze strumieniowo-pętlicowym z przegrodą lamelową, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 53, 3, 157-159, **M 5**.
- C12. Ludwig W., Sawiński W., 2014, Zastosowanie metody PIV do pomiaru burzliwych pól prędkości w mieszalniku strumieniowym, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 53, 3, 160-161, **M 5**.
- C13. Sawiński W., Feder-Kubis J. M., Ludwig W., 2014, Modelowanie CFD wypływu kropli z dystrybutora, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 53, 1, 36-37, **M 5**.
- C14. Ludwig W., Zając D., 2016, Analiza metodą CFD równomierności rozptywu gazu w wymienniku ciepła, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 55, 5, 191-193, **M 7**.
- C15. Dziak J., Jakielarz M., Ludwig W., 2017, Określenie współczynników wnikania masy w cieczy przy wykorzystaniu wyników destylacji lub badań wymiany ciepła w wyparce cienkoiwarstwowej, Inżynieria i Aparatura Chemiczna, 56, 1, 6-7, **M 7**.

#### **D. Opublikowane materiały z konferencji zagranicznych**

- D1. Kmiec A., Ludwig W., 2000, Hydrodynamics of spouting in the dryer with a draft tube, Proceedings of the 12th International Drying Symposium, IDS 2000, Noordwijkerhout, the Netherlands, 28-31 August 2000, Elsevier Science, 8 s.
- D2. Kmiec A., Ludwig W., Szafran R., 2008, The minimum circulation velocity in a spouted bed apparatus with a draft tube, proceedings of the 9th International Conference on Circulating Fluidized Beds in conjunction with 4th International VGB Workshop "Operating Experience with Fluidized Bed Firing Systems", Hamburg, Germany, May 13-16, 2008, Hamburg, TuTech Innovation, cop. 2008, 221-226.
- D3. Ludwig W., Dziak J., 2009, CFD Modeling of a jet-pump mixer, proceedings of the 19th European Symposium on Computer Aided Process Engineering, Cracow, Poland, June 14-17 2009, Elsevier, cop. 2009, 671-676.
- D4. Dziak J., Kapłon J., Królikowski L., Ludwig W., 2009, Liquid solutions evaporation accompanied with mass transfer resistance in liquid phase, proceedings of the 19th European Symposium

on Computer Aided Process Engineering, Cracow, Poland, June 14-17 2009, Elsevier, cop. 2009, 207-211.

D5. Zając D., Ligus G., Ludwig W., 2016, Modification of geometry of inlet and outlet parts of recuperators with the use of CFD and DPIV analysis, 11th Conference on Sustainable Development of Energy, Water and Environment Systems, September 4-9, 2016, Lisbon, Portugal, 0278, 1-16.

#### **E. Opublikowane materiały z konferencji krajowych**

E1. Ludwig W., 1998, Model przepływu dwufazowego gaz-ciało stałe w aparacie fluidyzacyjnym z rurą wznoszącą, XVI Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Kraków-Muszyna, 22-25 września 1998, materiały konferencyjne, T. 2. Przenoszenie pędu. Ochrona środowiska, s. 94-100.

E2. Ludwig W., Kmieć A., 1999, Powlekanie powierzchni kształtek pierścieniowych cienką warstwą masy aktywnej w złożu fontannowym, IX Sympozjum Suszarnictwa, 22-24 września 1999, materiały konferencyjne, 173-180.

E3. Sawiński W., Ludwig W., 2003, Hydrodynamika kolumny z posuwisto-zwrotnym ruchem półek sitowych dla układu z wymianą masy z fazy rozproszonej do fazy zwartej, IV Sympozjum Destylacja, Absorpcja i Ekstrakcja, Szklarska Poręba, 6-8 października 2003, materiały konferencyjne, 452-469.

E4. Szafran R., Kmieć A., Ludwig W., 2003, CFD modeling of a spouted bed dryer, X Sympozjum Suszarnictwa, Łódź, 17-19 września 2003, materiały konferencyjne, 219-230.

E5. Ludwig W., Dziak J., Sawiński W., Królikowski L., Kapłon J., Tuta J., 2007, Modelowanie hydrodynamiki wyparki cienkowarstewkowej z grawitacyjnym wpływem cieczy metodami obliczeniowej dynamiki płynów, XIX Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Rzeszów, 3-7 września 2007, materiały konferencyjne, T. 3. Modelowanie procesów i inżynieria systemów procesowych, 107-110.

E6. Ludwig W., Dziak J., Sawiński W., 2007, Analiza pracy strumienicy z wykorzystaniem modeli CFD, XIX Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Rzeszów, 3-7 września 2007, materiały konferencyjne, T. 3. Modelowanie procesów i inżynieria systemów procesowych, 103-106.

E7. Dziak J., Kapłon J., Królikowski L., Ludwig W., Sawiński W., 2007, Sprawność rozdziału ciekłych mieszanin o podwyższonej lepkości w wyparce cienkowarstewkowej z rozcieranym filmem, XIX Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Rzeszów, 3-7 września 2007, materiały konferencyjne, T. 1. Inżynieria chemiczna - procesy i aparaty, 135-138.

- E8. Sawiński W., Łupiński M., Koźlecki T., Polowczyk I., Ludwig W., 2007, Microwave irradiation effect on mass transfer driving force in liquid - liquid extraction, XIX Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Rzeszów, 3-7 września 2007, materiały konferencyjne, T. 2. Środowisko, energia, biosystemy, bezpieczeństwo, materiały, 219-222.
- E9. Koźlecki T., Sawiński W., Sokołowski A., Ludwig W., Polowczyk I., 2007, Extraction of organic impurities using 1-butyl-3-methyl hexafluorophosphate [BMIM][PF<sub>6</sub>], XIX Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Rzeszów, 3-7 września 2007, materiały konferencyjne, T. 2. Środowisko, energia, biosystemy, bezpieczeństwo, materiały, s. 141-144.
- E10. Polowczyk I., Sawiński W., Ludwig W., Koźlecki T., 2007, Hydrodynamic and mass transfer in reciprocating plate column for extraction system with direction of mass transfer from dispersed to continuous phase, XIX Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, 3-7 września 2007, materiały konferencyjne, T. 1. Inżynieria chemiczna – procesy i aparaty, 367-370.
- E11. Dziak J., Jakielarz M., Ludwig W., 2016, Określenie współczynników wnikania masy w cieczy z wyników destylacji lub badań wymiany ciepła w wyparce cienkowiarkowej, 22. Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Spała, 5-9.09.2016, materiały konferencyjne, Łódź, Wydawnictwo Exall, 349-356.
- E12. Ludwig W., Zajac D., 2016, Analiza przepływu gazu w ekonomizerze metodą CFD, 22. Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Spała, 5-9.09.2016, materiały konferencyjne, Łódź, Wydawnictwo Exall, 817-827.
- E13. Ludwig W., Zajac D., 2016, Optimization of the recuperator construction with the use of CFD methods, 22. Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Spała, 5-9.09.2016, materiały konferencyjne, Łódź, Wydawnictwo Exall, 828-838.

#### **F. Europejskie wzory przemysłowe**

- F1. Zajac D., Ludwig W., Ligus G., Czupała M., Rogowski G., 2016, europejski wzór przemysłowy, 003424639, Chłodnica morska.
- F2. Zajac D., Ludwig W., Ligus G., Czupała M., Rogowski G., 2016, europejski wzór przemysłowy, 003424688, Rekuperator.
- F3. Zajac D., Ludwig W., Ligus G., Czupała M., Rogowski G., 2016, europejski wzór przemysłowy, 003424662, Ekonomizer.

## 5.2 Omówienie pozostałych osiągnięć naukowych po uzyskaniu stopnia doktora

Oprócz moich badań podstawowych opisanych szczegółowo w rozdziale 4, w ramach działalności naukowej zajmowałem się modelowaniem metodami CFD różnych aparatów stosowanych w przemyśle chemicznym oraz zastosowaniem cyfrowej anemometrii obrazowej (DPIV) do pomiaru pól prędkości w reaktorach i mieszalnikach.

W ramach projektu badawczego „Badania równoczesnego transportu ciepła i masy w procesie cienkowarstewkowego odparowywania roztworów o podwyższonej lepkości” opracowałem i rozwiązałem metodami CFD model opisujący laminarny spływ filmu w wyparce cienkowarstewkowej z grawitacyjnym spływem cieczy [A7, E5]. Jednymi z podstawowych parametrów projektowych w tego typu urządzeniach jest grubość i prędkość spływającego filmu. Od wielu lat, począwszy od klasycznych prac Nusselta, wielu badaczy zajmuje się tymi zagadnieniami. Większość z nich wyprowadza na podstawie danych eksperymentalnych korelacje opisujące grubość filmu w funkcji takich zmiennych jak gęstość zraszania oraz gęstość i lepkość cieczy. Tak jak wszystkie tego typu zależności obowiązują one jedynie dla ściśle określonego aparatu w tym zakresie zmienności parametrów, dla których zostały przebadane. Tego typu wad nie mają modele CFD. Celem pracy było sprawdzenie przydatności dwóch komercyjnych pakietów oprogramowania Comsol Multiphysics i Ansys CFD (solver Fluent) do modelowania spływu laminarnego izotermicznego filmu [A8]. Jako przykładowy modelowany aparat zastosowano wyparkę cienkowarstewkową w kształcie walca. Spływającą cieczą była gliceryna o różnej temperaturze. Wyniki obliczonej grubości filmu porównano z otrzymanymi z teorii Nusselta. Oba testowane pakiety oprogramowania CFD nadawały się do obliczania hydrodynamiki spływu laminarnego filmu, zarówno pod względem jakościowym jak i ilościowym, przy czym Fluent w porównaniu z Comsolem posiadał szereg zalet. Przede wszystkim w celu obliczenia średniej grubości filmu możemy we Fluencie użyć solvera ustalonego, co znacznie skraca czas obliczeń. W Comsolu jesteśmy zmuszeni do użycia solvera nieustalonego, który i tak nie przedstawia poprawnie zjawisk powierzchniowych. Okazało się, że Comsol posiadał bardzo duże wymagania dotyczące pamięci operacyjnej. Spowodowało to brak możliwości modelowania całej wyparki. Błąd obliczeń w przypadku Fluentu był znacznie niższy i w większości przypadków zawierał się w przedziale podawanym w literaturze, jako odchylenie teorii Nusselta od danych eksperymentalnych.

W ramach tego samego projektu wykonano także badania eksperymentalne, których celem było określenie warunków transportu ciepła i masy (wartości współczynników wnikania ciepła i masy) podczas odparowywania z cienkiej warstwy dwuskładnikowego roztworu cieczy o dużej lepkości takich jak woda – glikol propylenowy, woda – gliceryna oraz woda - OM1M [C1] (1-metyl-3-oktylchloru imidazolu, ciecz jonowa) [C2, C5, C7, C15, D4, E7]. Badania prowadzone były dla różnych

intensywności zraszania powierzchni grzejnej wyparki, obciążenia cieplnego powierzchni grzejnej, stężenia roztworów oraz temperatury procesu. Eksperymenty wykonano wykorzystując dwa rodzaje instalacji z dwoma typami wyparek cienkowarstewkowych z rozcieranym filmem cieczy.

Jako wykonawca projektu „Odsalanie surowej ropy naftowej z wykorzystaniem układu hybrydowego strumienicowo-membranowego” modelowałem metodami CFD pracę strumienicy oraz całego mieszalnika. W pierwszym etapie badań opracowałem model 2D i 3D opisujący hydrodynamikę przepływu cieczy wewnątrz strumienicy [C4, C6, E6]. Za jego pomocą wyznaczyłem jej współczynnik eejkcji w funkcji zmiennych ruchowych i konstrukcyjnych. Dane numeryczne porównałem z danymi eksperymentalnymi. Model umożliwił z zadawalającą dokładnością obliczanie współczynnika eejkcji strumienicy (średni błąd względny 4 %). Jednocześnie pozwalał na wskazanie parametrów, których zmiana wpływa w zasadniczy sposób na działanie urządzenia. Były to: objętościowe natężenie przepływu cieczy roboczej oraz średnica dyszy zasilającej. Obliczenia wykazały, że badana strumienica miała zbyt długą komorę mieszania, która powodowała dodatkowe straty ciśnienia.

Celem kolejnego etapu moich badań było opracowanie modelu CFD całego mieszalnika strumienicowego, a następnie sprawdzenie przydatności tego modelu do optymalizacji już istniejącej instalacji do odsalania ropy naftowej [C10, D3]. Na podstawie obliczeń stwierdziłem, że proces mieszania początkowo przebiega bardzo intensywnie, ułamki objętościowe ropy w poszczególnych punktach aparatu szybko zbiegają do wartości wynikającej z bilansu obu faz. Potem intensywność procesu mieszania spada. Przy dnie zbiornika tworzą się obszary, w których mamy do czynienia z cyrkulacją cieczy, a przez to ze słabym mieszaniem. Strefy te zanikają bardzo powoli, co wydłuża czas mieszania. W rogach dna zbiornika istnieją małe obszary martwe, w których pozostaje czysta woda. Symulacje wykazały, że strumienica powinna znajdować się jak najdalej od dna zbiornika. W celu uniknięcia stref martwych należy zastosować też zbiornik z innym dnem (zastąpienie dna płaskiego stożkowym).

Uczestniczyłem także w pracach dotyczących modelowania dystrybutora kropeł [C13]. Znajomość powierzchni wymiany masy jest jednym z kluczowych zagadnień związanych z ekstrakcją ciecz-ciecz. W aparacie kolumnowym podczas przepływu kropeł ustala się równowaga pomiędzy koalescencją a redispersją płynących obok siebie elementów fazy rozdrobnionej. Projektując kolumnę ekstrakcyjną należy dobrać odpowiedni dystrybutor dla docelowego układu ciecz-ciecz. Celem pracy było opracowanie modelu matematycznego opisującego powstawanie kropli w otworze wylotowym dystrybutora, a następnie jego weryfikacja na podstawie dostępnych w literaturze korelacji. Obliczenia wykonano dla układu woda-toluen przy użyciu pakietu Comsol Multiphysics, dla zmiennych trzech parametrów: średnicy dystrybutora, temperatury cieczy oraz jej prędkości. Uzyskane wyniki wskazały, że dla niskich prędkości fazy rozproszonej (poniżej prędkości powstawania

strugi) krople formowane są w sposób dwuetapowy. Średnice kropeł obliczone metodą CFD w całym przebadanym zakresie niewiele różnią się od wartości uzyskanych z korelacji Izarda (średnio o 2.4 %).

Moje umiejętności związane z posługiwaniem się metodami CFD wykorzystałem, aby we współpracy z Politechniką Opolską optymalizować konstrukcje komercyjnie produkowanych wymienników ciepła: rekuperatora i ekonomizera [A12, C14, D5, E12, E13]. Celem obliczeń było prześledzenie wpływu zmiennych ruchowych i konstrukcyjnych na równomierność rozptyłu gazu w przestrzeni międzyururowej urządzeń oraz na spadek ciśnienia. Pod uwagę brałem dopuszczalne wartości takich parametrów jak temperatura i prędkość powietrza w przestrzeni międzyururowej. W urządzeniach standardowych stwierdziłem, że gaz nie płynie całym przekrojem wymienników ciepła. Prędkości przepływu pomiędzy rurkami były największe w rzędach naprzeciw rury wlotowej. Im większa odległość od osi rury wlotowej, tym w danym rzędzie mniejsza prędkość powietrza. W dalszej części badań przetestowałem różne modyfikacje aparatów m.in. zmianę średnicy rury wlotowej, długości części rozbiegowej, wysokości obejścia wymiennika ciepła, przesunięcie wlotu gazu. Na tej podstawie wybrałem konstrukcje charakteryzujące się największą równomiernością rozprowadzenia gazu na rurki wymiennika ciepła przy jednoczesnym najmniejszym spadku ciśnienia. Wyniki pracy stały się elementem trzech europejskich wzorów przemysłowych [F1, F2, F3] oraz zgłoszenia patentu europejskiego (16460099.1-1602).

Będąc uczestnikiem projektu „Procesy zintegrowane – badania doświadczalne i modelowanie reaktora hybrydowego nowego typu” brałem udział w konstruowaniu i testowaniu układu do pomiarów prędkości cieczy metodą DPIV [A10, A11]. Celem pracy było opracowanie taniego zestawu pomiarowego DPIV bazującego na ogólnie dostępnych komponentach oraz oprogramowaniu open source. Jako źródło światła wybrano zielony laser liniowy firmy Z-laser, typ Z40RG SET o mocy 40 mW, urządzeniem rejestrującym była kamera cyfrowa HDTV Sony HDR-FX7E. Zapisany materiał opracowywano za pomocą programu GPIV. Wartość całego zestawu była bardzo niska (kilkanaście tysięcy złotych) w porównaniu do rozwiązań profesjonalnych (kilkaset tysięcy do kilku milionów złotych). Istotnym było określenie zakresu pomiarowego zaproponowanego zestawu oraz wykazanie, czy jest on w stanie zapewnić wystarczającą dokładność pomiaru w zastosowaniach inżynierskich. W celu walidacji zestawu przeprowadziłem pomiary na dwóch stanowiskach badawczych, dla przepływu laminarnego i burzliwego. Błąd względny dla przepływu laminarnego nie przekraczał 5%, natomiast dla przepływu burzliwego 10%. Zgromadzonych dane doświadczalne porównano z danymi otrzymanymi z obliczeń CFD. Uzyskano bardzo dobrą zgodność wyników doświadczalnych oraz zależności teoretycznej z wynikami symulacji komputerowej (średnia różnica 0.3 %).

Opisany powyżej układ DPIV został następnie przeze mnie wykorzystany do zbadania hydrodynamiki przepływu cieczy w laboratoryjnym reaktorze strumieniowo-pętlicowym oraz strumieniowo-pętlicowym z przegrodą lamelową [B1, C11]. Celem pracy było wyznaczenie



optymalnych parametrów geometrycznych i ruchowych obu aparatów. Kryterium optymalizacji była wartość natężenia przepływu w rurze wznoszącej. Wysoka wartość tego parametru zapewnia szybką cyrkulację cieczy w aparacie oraz wysoką burzliwość. Stwierdziłem, że hydrodynamika badanego reaktora strumieniowego z przegrodą lamelową nie różniła się zasadniczo od hydrodynamiki reaktora strumieniowo-pętlicowego, co było zjawiskiem korzystnym. Dzięki gęstemu upakowaniu kapilar w rurze lamelowej ograniczono przenikanie cieczy z wnętrza rury do strefy pierścieniowej, a przez to wymuszono regularną cyrkulację cieczy.

Prezentowany układ pomiarowy przetestowałem także w laboratoryjnym mieszalniku strumieniowym, potwierdzając jego przydatność do pomiaru burzliwych pól prędkości w przebadanych zakresie (do prędkości 300 mm/s) [C12]. Okazało się, że głównym czynnikiem ograniczającym pomiary pól o większych prędkościach była kamera, która rejestrowała jedynie z częstotliwością do 100 klatek/s oraz laser o zbyt małej mocy, aby móc oświetlić z właściwą intensywnością cały aparat.

## 6. Zestawienie ilościowe dorobku naukowego

	Rodzaj Publikacji	Przed uzyskaniem stopnia doktora	Po uzyskaniu stopnia doktora	Razem
1.	Artykuły w czasopismach znajdujących się w bazie JCR	-	19	19
2.	Artykuły w czasopismach zagranicznych (spoza bazy JCR)	-	2	2
3.	Artykuły w czasopismach krajowych (spoza bazy JCR)	-	19	19
4.	Publikacje w materiałach konferencji międzynarodowych	1	9	10
5.	Publikacje w materiałach konferencji krajowych	2	17	19
8.	Skrypty/książki/monografie	-	-	-
9.	Patenty krajowe	-	3	3
10.	Europejskie wzory przemysłowe	-	3	3

Mój dorobek naukowy po uzyskaniu stopnia doktora obejmuje łącznie **40** artykułów opublikowanych w czasopismach naukowych, **26** publikacji w materiałach konferencji krajowych i międzynarodowych **3** patenty krajowe i **3** wzory przemysłowe. **19** artykułów zostało opublikowanych w czasopismach znajdujących się w bazie Journal Citation Reports.

Ich sumaryczny Impact Factor wg daty wydania wynosi:  $\sum IF = 20.472$ ,

index Hirscha wg Web of Science: **H=5**,

liczba cytowań wg Web of Science (bez autocytaowań): **51**,

sumaryczna liczba punktów publikacji wg listy ministerialnej  $\sum M = 445$ .

## 7. Udział w krajowych projektach badawczych

a) jako wykonawca:

- 3 T09C 022 29 „Badania równoczesnego transportu ciepła i masy w procesie cienkowarstewkowego odparowywania roztworów o podwyższonej lepkości”,
- 1 T09C 006 30 „Procesy zintegrowane – badania doświadczalne i modelowanie reaktora hybrydowego nowego typu”,
- IVR14-0018-04/2008 „Odsalanie surowej ropy naftowej z wykorzystaniem układu hybrydowego struminiowo-membranowego”,
- N208 010 32/4251 „Sucha kapsulacja produktów wrażliwych w aparacie Wurstera”.

b) jako kierownik

- UMO-2013/09/B/ST8/00157 „Modelowanie procesu suchego powlekania elektrostatycznego leków dojelitowych w zmodyfikowanym aparacie Wurstera”

## 8. Udział w konferencjach krajowych i międzynarodowych

Wyniki moich badań po uzyskaniu stopnia doktora były prezentowane na następujących konferencjach krajowych i zagranicznych:

- Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Kraków-Muszyna, 22-25 września 1998.
- IX Sympozjum Suszarnictwa, 22-24 września 1999.
- IV Sympozjum Destylacja, Absorpcja i Ekstrakcja, Szklarska Poręba, 6-8 października 2003
- XIX Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Rzeszów, 3-7 września 2007.
- the 19th European Symposium on Computer Aided Process Engineering, Cracow, Poland, June 14-17 2009.
- 21. Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Kołobrzeg, 2-6.09.2013.
- 22. Ogólnopolska Konferencja Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Spała, 5-9.09.2016.
- 1<sup>st</sup> Workshop on Porous Media, Olsztyn, 1-3.07.2016.
- 2<sup>nd</sup> Workshop on Porous Media, Olsztyn, 28-30.06.2018.

Ponadto byłem członkiem komitetów organizacyjnych XVII Ogólnopolskiej Konferencji Inżynierii Chemicznej i Procesowej, Polanica, 17-21.09.2001 oraz IV Symposium Destylacja, Absorpcja i Ekstrakcja, Szklarska Poręba, 6-8.10.2003.

## 9. Działalność dydaktyczna

Na Wydziale Chemicznym Politechniki Wrocławskiej realizowałem zajęcia dydaktyczne (wykłady i laboratoria) z przedmiotów:

- Inżynieria chemiczna 1
- Transport pędu
- Projektowanie procesów biotechnologicznych
- Inżynieria bioprosesowa 1
- Informatyka 1
- Informatyka 2
- Elementy Programowania
- Technologie Informacyjne
- Procesy Suszarnicze
- Technologie informatyczne w projektowaniu 1
- Technologie informatyczne w projektowaniu 2
- Procesy destylacyjne i suszarnicze
- Procesy Ciepne i Aparaty
- Procesy Ciepne
- Symulacje procesów w aparaturze chemicznej metodą CFD
- Symulacja procesów w aparaturze chemicznej
- Komputerowe wspomaganie projektowania
- Zjawiska transportu w procesach chemicznych

Opracowałem programy następujących kursów obowiązkowych na pierwszym i drugim stopniu kierunku Inżynieria Chemiczna i Procesowa:

- Informatyka 1 (komputerowe ćwiczenia laboratoryjne)
- Informatyka 2 (komputerowe ćwiczenia laboratoryjne)
- Elementy Programowania (komputerowe ćwiczenia laboratoryjne)
- Technologie Informacyjne (komputerowe ćwiczenia laboratoryjne)
- Procesy Suszarnicze (wykład, ćwiczenia laboratoryjne)
- Technologie informatyczne w projektowaniu 1 (komputerowe ćwiczenia laboratoryjne)
- Procesy destylacyjne i suszarnicze (ćwiczenia laboratoryjne)
- Procesy Ciepłne i Aparaty (wykład, ćwiczenia projektowe)
- Procesy Ciepłne (wykład, ćwiczenia projektowe)
- Symulacje procesów w aparaturze chemicznej metodą CFD (wykład, komputerowe ćwiczenia laboratoryjne)
- Symulacja procesów w aparaturze chemicznej (komputerowe ćwiczenia laboratoryjne)
- Komputerowe wspomaganie projektowania (komputerowe ćwiczenia laboratoryjne)
- Zjawiska transportu w procesach chemicznych (wykład)

Byłem promotorem 27 prac magisterskich i 30 prac inżynierskich m.in. pracy Pawła Płuszki „Numeryczne modelowanie zjawisk hydrodynamicznych przy przepływie cząstek rdzeni celulozowych”, która wygrała XII finał ogólnopolskiego konkursu na najlepszą pracę magisterską dotyczącą zastosowania metod obliczeniowych do symulacji procesów ciepłno-przepływowych organizowany przez Instytut Techniki Ciepłej Politechniki Śląskiej (załącznik 6).

Kilkukrotnie pomagałem także kołu naukowemu studentów Gambrius w organizacji konkursu Inżynieria Sukcesu (załącznik 7).

Jestem również promotorem pomocniczym doktoranta realizującego pracę pt. „Model elektryzacji cząstek nośnikowych w aparacie fontannowo-fluidalnym do suchego powlekania”.

Wojciech Ludwig