

INVESTIGAÇÃO EXPERIMENTAL DE PARÂMETROS FÍSICOS EM UM REATOR DE LEITO FIXO TRIFÁSICO EMPREGANDO MÉTODOS DE TRAÇADOR

EXPERIMENTAL INVESTIGATION OF PHYSICAL PARAMETERS IN A THREE-PHASE FIXED-BED REACTOR USING TRACER METHODS

INVESTIGACIÓN EXPERIMENTAL DE PARÁMETROS FÍSICOS EN UN REACTOR DE LECHO FIJO TRIFÁSICO MEDIANTE MÉTODOS DE TRAZADORES



10.56238/IXSevenInternationalMultidisciplinaryCongress-030

Anderson Rodrigo Geromel

Mestrando em Engenharia de Sistemas

E-mail: arg@poli.br

Jornandes Dias da Silva

Doutor em Engenharia Nuclear

E-mail: jornandesdias@poli.br

RESUMO

Foi realizada avaliação experimental e modelagem dinâmica do fluxo líquido (H_2O com traçador NaOH) em reatores de leito gotejante. Um modelo dinâmico gás-líquido-sólido foi desenvolvido, tratando a fase líquida e o traçador como um contínuo e resolvido usando condições iniciais e de contorno apropriadas. Medições de concentração do traçador foram realizadas em um reator de leito fixo sob fluxo gotejante em uma faixa de condições operacionais. A dispersão axial da fase líquida ($D_{ax,L}$) e o coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global ($(K_a)_{LS}$) foram identificados como parâmetros-chave. As previsões do modelo foram validadas contra dados experimentais de dois casos, e os valores ótimos de $D_{ax,L}$ e $(K_a)_{LS}$ foram obtidos simultaneamente usando uma função objetivo quadrática. Correlações empíricas foram então propostas para descrever ambos os parâmetros como funções da vazão volumétrica do líquido.

Palavras-chave: Reator de Leito Gotejante. Técnica de Traçador NaOH. Fluxo Gás-Líquido-Sólido. Modelagem Dinâmica. Análise Experimental.

ABSTRACT

Experimental evaluation and dynamic modeling of liquid flow (H_2O with NaOH tracer) in trickle-bed reactors were performed. A dynamic gas-liquid-solid model was developed, treating the liquid phase and the tracer as a continuum and solved using appropriate initial and boundary conditions. Tracer concentration measurements were performed in a fixed-bed reactor under trickle-bed flow across a range of operating conditions. The axial dispersion of the liquid phase ($D_{ax,L}$) and the overall liquid-solid mass transfer coefficient ($(K_a)_{LS}$) were identified as key parameters. The model predictions were validated against experimental data from two cases, and the optimal values of $D_{ax,L}$ and $(K_a)_{LS}$ were obtained simultaneously using a quadratic objective function. Empirical correlations were then proposed to describe both parameters as functions of the liquid volumetric flow rate.



Keywords: Trickle-Bed Reactor. NaOH Tracer Technique. Gas-Liquid-Solid Flow. Dynamic Modeling. Experimental Analysis.

RESUMEN

Se realizó una evaluación experimental y un modelado dinámico del flujo de líquido (H_2O con trazador de NaOH) en reactores de lecho percolador. Se desarrolló un modelo dinámico gas-líquido-sólido, considerando la fase líquida y el trazador como un continuo, y se resolvió utilizando condiciones iniciales y de contorno apropiadas. Se realizaron mediciones de la concentración del trazador en un reactor de lecho fijo bajo flujo percolador en un rango de condiciones de operación. La dispersión axial de la fase líquida ($D_{ax,L}$) y el coeficiente global de transferencia de masa líquido-sólido ($(K_a)_{LS}$) se identificaron como parámetros clave. Las predicciones del modelo se validaron con datos experimentales de dos casos, y los valores óptimos de $D_{ax,L}$ y $(K_a)_{LS}$ se obtuvieron simultáneamente mediante una función objetivo cuadrática. Posteriormente, se propusieron correlaciones empíricas para describir ambos parámetros en función del caudal volumétrico de líquido.

Palabras clave: Reactor de Lecho Percolador. Técnica de Trazador de NaOH. Flujo Gas-Líquido-Sólido. Modelado Dinámico. Análisis Experimental.

1 INTRODUÇÃO

Reatores de leito gotejante (TBRs) podem ser definidos como leitos fixos de partículas de catalisador em contato com os fluxos descendentes cocorrentes de fases gasosa e líquida em baixas velocidades superficiais. Esses reatores assumem maior importância entre os sistemas de reação gás-líquido-sólido trifásicos encontrados em processos industriais. Os TBRs são extensivamente usados em muitas indústrias de processos. Esses reatores são amplamente empregados em refinarias de petróleo para aplicações de hidrotratamento, hidrodessulfurização e hidrocraqueamento. Por outro lado, eles também são amplamente usados para realizar uma variedade de processos como petroquímico, químico, bioquímico e tratamento de resíduos. Há muitos trabalhos na literatura para modelar e descrever o comportamento de processos desses TBRs. O comportamento de muitos desses trabalhos pode ser estudado aplicando modelagem matemática.

Modelos matemáticos de TBRs representam uma ferramenta auxiliar para minimizar os esforços experimentais necessários para desenvolver este importante equipamento em plantas industriais. Experimento e desenvolvimento de protótipo são os principais requisitos para projeto de engenharia preciso em qualquer processo industrial. No entanto, modelagem matemática e simulação numérica estão em contínuo desenvolvimento, contribuindo de forma crescente para a melhor compreensão de processos e fenômenos físicos, e assim para o projeto. Além disso, modelos matemáticos requerem experimento para serem validados e os experimentos requeridos envolvem medições complexas de difícil realização. Portanto, a modelagem matemática também representa um incentivo para o desenvolvimento de novos métodos e técnicas experimentais.

Existem vários modelos matemáticos de partículas de catalisador completamente ou parcialmente molhadas que podem existir em TBRs. Cada um desses modelos é baseado em muitas suposições e é forçado a usar simplificações para resolver os complexos sistemas de equações. Normalmente, modelos matemáticos de TBRs podem envolver os mecanismos de convecção forçada, dispersão axial, transferências de calor e massa interfásicas, difusão intrapartícula, adsorção e reação química[1][2][3][4].

Vários regimes de fluxo existem em um TBR dependendo das taxas de fluxo de massa do líquido e do gás, das propriedades dos fluidos e das características geométricas do leito empacotado[5]. Uma compreensão fundamental da hidrodinâmica dos TBRs é indispensável em seu projeto, ampliação de escala e desempenho. A hidrodinâmica é afetada de forma diferente em cada regime de fluxo. Os parâmetros hidrodinâmicos básicos para o projeto, ampliação de escala e operação são o gradiente de pressão e a saturação do líquido. O gradiente de pressão está relacionado à dissipação de energia mecânica devido ao fluxo bifásico através do leito fixo de partículas sólidas. A saturação do líquido, que ocupa parcialmente o volume de vazios do leito empacotado, está relacionada a outros parâmetros hidrodinâmicos importantes como o gradiente de pressão, o molhamento externo das partículas de

catalisador, o tempo médio de residência da fase líquida no reator e os fenômenos de transferência de calor e massa[6].

O objetivo do trabalho é estimar e descrever o comportamento do coeficiente de dispersão axial da fase líquida, $D_{ax,L}$, e do coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global, $(Ka)_{LS}$, usando um conjunto de experimentos realizados em um TBR em escala de laboratório. Comparando o modelo matemático com dados experimentais. Analisando as correlações de $D_{ax,L}$ e $(Ka)_{LS}$ como função da vazão volumétrica.

2 MODELO MATEMÁTICO

Para modelar a modelagem matemática de acordo com o modelo líquido-sólido, no qual a fase líquida ($H_2O +$ traçador NaOH) foi tratada como um contínuo em um leito fixo de partículas sólidas. Um modelo matemático unidimensional foi adotado no qual os fenômenos de dispersão axial, transferência de massa líquido-sólido, molhamento parcial e reação estão presentes. Este modelo tem sido usado para a fase líquida usando o NaOH como traçador e está restrito às seguintes suposições: (i) sistema isotérmico; (ii) todas as vazões são constantes ao longo do reator; (iii) a resistência de difusão intrapartícula foi negligenciada; (iv) em qualquer posição do reator, a taxa de reação química dentro do sólido é igual à taxa de transferência de massa líquido-sólido.

- Balanço de massa para o líquido:

$$h_L S_L \frac{\partial C_L(z,t)}{\partial t} + \frac{4Q_L}{\pi d_r^2} \frac{\partial C_L(z,t)}{\partial z} - D_{ax,L} \frac{\partial^2 C_L(z,t)}{\partial z^2} = -(1 - \varepsilon_s) PWE (Ka)_{LS} [C_L(z,t) - C_S(z,t)] \quad (1)$$

- As condições iniciais e de contorno para a Eq. (1) são:

$$C_L(z, 0) = C_{L,0} \quad (2)$$

$$D_{ax,L} \frac{\partial C_L(z,t)}{\partial z} \Big|_{z=0^+} + \frac{4Q_L}{\pi d_r^2} [C_L(z,t) - C_L(0,z)] \Big|_{z=0^+} = 0 \quad (3)$$

$$\frac{\partial C_L(z,t)}{\partial z} \Big|_{z=L} = 0 \quad (4)$$

- Combinando a taxa de reação química com a taxa de transferência de massa:

$$(Ka)_{LS} [C_L(z,t) - C_S(z,t)] = \eta k_r C_S(z,t) \quad (5)$$

As Eqs. (1) a (5) podem ser analisadas com termos de variáveis adimensionais, veja a Tabela

(1):

Tabela 1: Resumo das variáveis adimensionais

Concentrações líquida e sólida, adimensional	Tempo e coordenada na direção axial, adimensional
$\theta_L(\xi, \tau) = \frac{C_L(z, t)}{C_{L,0}}$	$\tau = \frac{4Q_L t}{\pi d_r^2 h_L L}$
$\theta_S(\xi, \tau) = \frac{C_S(z, t)}{C_{L,0}}$	$\xi = \frac{z}{L}$

Fonte: Autores.

Escrevendo as Eqs. (1) a (5) em formas adimensionais:

$$\frac{\partial \theta_L(\xi, \tau)}{\partial \tau} + \frac{\partial \theta_L(\xi, \tau)}{\partial \xi} - \frac{1}{P_E} \frac{\partial^2 \theta_L(\xi, \tau)}{\partial \xi^2} = -\beta_{LS}[\theta_L(\xi, \tau) - \theta_S(\xi, \tau)] \quad (6)$$

$$\theta_L(\xi, 0) = 1 \quad (7)$$

$$\frac{\partial \theta_L(\xi, \tau)}{\partial \xi} \Big|_{\xi=0^+} + P_E[\theta_L(\xi, \tau) - 1] \Big|_{\xi=0^+} = 0 \quad (8)$$

$$\frac{\partial \theta_L(\xi, \tau)}{\partial \xi} \Big|_{\xi=1} = 0 \quad (9)$$

$$\theta_S(\xi, \tau) = \frac{\beta_{LS}}{\beta_S + \beta_{LS}} \theta_L(\xi, \tau) \quad (10)$$

As Eqs. (6) a (10) incluem os seguintes parâmetros adimensionais:

$$\beta_{LS} = \frac{(1-\varepsilon_s)PWE(Ka)_{LS}F_M L \pi d_r^2}{Q_L 4} \quad (11)$$

$$P_E = \frac{Q_L L}{\pi d_r^2 D_{ax,L}} 4 \quad (12)$$

$$\beta_S = \frac{\eta k_r}{(Ka)_{LS}} \quad (13)$$

3 SOLUÇÃO ANALÍTICA

A solução de problemas de transporte em sistemas trifásicos é muito complexa e geralmente métodos de aproximação numérica são usados. Por outro lado, soluções analíticas são usadas para os

modelos simples. Embora as soluções analíticas sejam simples, as condições de contorno propostas para esses modelos precisam de atenção cuidadosa. A maioria das soluções analíticas pertencem a campo infinito e semi-infinito. As soluções analíticas para o campo finito foram desenvolvidas por Feike e Torid[7] e Dudukovic[8]. Nesses trabalhos, os autores adotam o procedimento analítico na região de campo finito ($0 \leq z \leq L \rightarrow 0 \leq \xi \leq 1$) onde o método de separação de variáveis é usado. O $\theta_S(\xi, \tau)$ foi isolado da Eq. (10) e foi introduzido na Eq. (6), reduzindo-a a:

$$\frac{\partial \theta_L(\xi, \tau)}{\partial \tau} + \frac{\partial \theta_L(\xi, \tau)}{\partial \xi} - \frac{1}{P_E} \frac{\partial^2 \theta_L(\xi, \tau)}{\partial \xi^2} = -\gamma \theta_L(\xi, \tau) \quad (14)$$

onde:

$$\gamma = \frac{\beta_{LS}\beta_S}{\beta_S + \beta_{LS}} \quad (15)$$

A solução analítica da Eq. (14) foi obtida pelo método de separação de variáveis usando a seguinte relação:

$$\theta_L(\xi, \tau) = N_L(\tau)Z_L(\xi) \quad (16)$$

Então, a Eq. (14) foi separada em duas equações diferenciais ordinárias com coeficientes constantes:

$$\frac{d^2 Z_L(\xi)}{d\xi^2} + \lambda^2 Z_L(\xi) = 0 \quad (17)$$

$$\frac{d^2 N_L(\tau)}{d\tau^2} - \left(\frac{\lambda^2}{P_E} - \gamma \right) N_L(\tau) = 0 \quad (18)$$

A solução global das Eqs. (17) e (18) para $\xi = 1$ é dada por:

$$\theta_L(\xi, \tau) = 1.6 \sum_{n=0}^{\infty} \frac{T_{n,1}T_{n,2}+T_{n,3}T_{n,4}}{T_{n,1}T_{n,4}-T_{n,2}T_{n,3}} \left[\frac{\cos(\lambda_n \xi) + \cos(\lambda_n)}{\sin(\lambda_n)} - \frac{\sin(\lambda_n \xi)}{\sin(\lambda_n)} \right] e^{-\lambda_n^2 \tau} \quad (19)$$

Onde,

$$T_{n,1} = \left[1 + \frac{16}{3.2\sin(\lambda_n) + 1.3\sin^2(\lambda_n)} \right] \left[1 + \frac{25.6}{\lambda_n^2 + 0.8\sin(\lambda_n) + 0.6\cos(\lambda_n)} \right] \quad (20)$$

$$T_{n,2} = \left[1 + \frac{16}{3.3 \sin(\lambda_n)} \right] \left[\frac{13.2 \sin(\lambda_n) + 4.0 \cos(\lambda_n)}{\lambda_n} \right] \quad (21)$$

$$T_{n,3} = \left[1 + \frac{16}{3.3 \cos(\lambda_n)} \right] \left[1 + \frac{\lambda_n^2}{13.2 \cos(\lambda_n) + 2.10 \sin(\lambda_n)} \right] \quad (22)$$

$$T_{n,4} = \left[1 + \frac{16}{1.6 \sin(\lambda_n)} \right] \left[1 + \frac{\lambda_n^2}{16.3 \sin(\lambda_n) + 4.10 \cos(\lambda_n)} \right] \quad (23)$$

$$\lambda_n = \left(\frac{1}{2} + \frac{P_E^2}{4} \left[\frac{1}{2} - \left(\frac{1}{2} + n \right)^{-1} \right] \right)^{1/2}; \quad n = (2n + 1/2); \quad (n = 0, 1, 2, 3, \dots) \quad (24)$$

4 MATERIAIS E MÉTODOS

Os experimentos foram realizados em um reator trifásico de leito gotejante, que consiste de um leito fixo com altura de 0,22 m e diâmetro interno de 0,030 m com partículas catalíticas contatadas por um fluxo cocorrente gás-líquido descendente transportando o traçador líquido na fase líquida. Os experimentos foram realizados em condições onde as vazões volumétricas das fases gasosa e líquida foram mantidas em tal nível para garantir um regime de baixa interação com QL na faixa de $7,068 \times 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ a $2,122 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ e QG na faixa de $1,414 \times 10^{-5} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ a $3,181 \times 10^{-4} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ em reatores de leito gotejante em planta piloto[9].

Análise contínua do traçador NaOH, em uma concentração de 10 mol m^{-3} , foram feitas usando HPLC/UV-CG 480C na saída do leito fixo. Os resultados foram expressos em termos das concentrações do traçador versus tempo.

As metodologias aplicadas para avaliar a dispersão axial da fase líquida e os efeitos globais de transferência de massa líquido-sólido para o sistema ($\text{N}_2/\text{H}_2\text{O}-\text{NaOH}/\text{carvão ativado}$) foram:

- Comparação dos resultados experimentais com a Eq. (19) desenvolvida para o sistema;
- Avaliação dos parâmetros $D_{ax,L}$ e $(K_a)_{LS}$ do modelo matemático, nos quais os valores iniciais são obtidos das correlações na Tabela (2);
- Otimização dos parâmetros $D_{ax,L}$ e $(K_a)_{LS}$ pela comparação entre os dados experimentais e calculados pela Eq. (19).

O coeficiente de dispersão axial da fase líquida e o coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global foram determinados simultaneamente pela comparação entre os dados experimentais e teóricos, obtidos na saída do leito fixo, sujeitos à minimização da função objetivo (F), dada por:

$$F(D_{ax,L}, (Ka)_{LS}) = \sum_{k=1}^N \left[\theta_L^{Exp}(k) - \theta_L^{Eq.(19)}(k) \right]^2 \quad (25)$$

Tabela 2: Correlações para obtenção de Dax, kLS e PWE, os valores iniciais

Correlações	Referências
$D_{ax,L} = 0.55Re_L^{0.61}$	Lange et al.[10]
$(Ka)_{LS} = 2.514 \left[1 - \frac{h_L}{D_{ex}} \right] \frac{d_p^2}{\varepsilon_L} \left(\frac{R_G}{R_L} \right)^{0.73} \left(\frac{d_p}{d_r} \right)^{0.2} Sc_L^{0.5}$	Fukushima e Kusaka[11]
$PWE = 3.40Re_L^{0.22} Re_G^{-0.08} Ga_L^{-0.51}$	Burghardt et al.[12]

Fonte: Autores.

5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

Os resultados experimentais do traçador em um TBR em escala de laboratório foram realizados em vinte corridas variando a vazão volumétrica (QL) da fase líquida. Procedimentos experimentais e resultados são apresentados e discutidos em detalhe no regime de fluxo gotejante. Os resultados obtidos pelo modelo matemático foram comparados com ambos os conjuntos de experimentos. Uma função objetivo (F) foi calculada e apresentada. Valores desta função objetivo indicam uma concordância muito boa entre o modelo matemático e ambos os tipos de experimentos. A metodologia computacional para otimizar o coeficiente de dispersão axial (Dax,L) da fase líquida e os coeficientes de transferência de massa líquido-sólido global (Ka)LS teve que usar uma subrotina de otimização com minimização da função objetivo[13].

O cálculo das concentrações de NaOH do modelo matemático, para o sistema N₂/H₂O - NaOH / carvão ativado, inclui vários parâmetros fixos. Os valores dos parâmetros fixos usados nos cálculos de ajuste de parâmetros são dados na Tabela (3).

Tabela 3: Resumo dos intervalos de condições operacionais para partícula-fluido

Categoria	Propriedades	Valores Numéricos
Condições Operacionais	Pressão (P), atm	1,01
	Temperatura (T), K	298,00
	Vazões volumétricas da fase líquida (QL)×10 ⁶ , m ³ s ⁻¹	4,248-0,558
	Vazões volumétricas da fase gasosa (QG)×10 ⁵ , m ³ s ⁻¹	9,861
	Aceleração padrão da gravidade (g), m s ⁻²	9,81
Propriedades do empacotamento e leito	Altura total do leito (L)×10 ² , m	0,22
	Porosidade do leito (εs)	0,59
	Porosidade externa (εex)	0,39
	Diâmetro da partícula de catalisador (dp)×10 ⁴ , m	3,90
	Diâmetro do reator (dr)×10 ² , m	3,00

	Densidade da partícula (ρ_p) $\times 10^{-3}$, kg m $^{-3}$	2,56
	Constante de taxa de reação (k_r) $\times 10^{-1}$, kgmol kg $^{-1}$ s $^{-1}$	5,41
Propriedades do líquido	Densidade da fase líquida (ρ_L) $\times 10^{-3}$, kg m $^{-3}$	1,01
	Difusividade molecular do líquido (DL) $\times 10^{10}$, m 2 s $^{-1}$	5,81
	Viscosidade da fase líquida (μ_L) $\times 10^{-4}$, kg m $^{-1}$ s $^{-1}$	8,96
	Tensão superficial (σ_L) $\times 10^2$, N m $^{-1}$	5,51
	Retenção dinâmica de líquido (hL) $\times 10^1$	4,91
Propriedades do gás	Densidade da fase gasosa (ρ_G) $\times 10^1$, kg m $^{-3}$	6,63
	Viscosidade da fase gasosa (μ_G) $\times 10^5$, kg m $^{-1}$ s $^{-1}$	1,23

Fonte: Autores.

Os Dax,L e (Ka)LS foram otimizados a partir de diferentes vazões volumétricas da fase líquida e elas variam de $4,248 \times 10^{-6}$ a $5,581 \times 10^{-7}$ m 3 s $^{-1}$. O Dax,L da fase líquida estava variando de $3,186 \times 10^{-5}$ a $0,735 \times 10^{-5}$ m 2 s $^{-1}$ usando H $_2$ O e NaOH como fluidos líquidos. Por outro lado, o (Ka)LS também estava mudando de $2,496 \times 10^{-2}$ a $0,124 \times 10^{-2}$ s $^{-1}$. A faixa da função objetivo foi, respectivamente, de $1,572 \times 10^{-4}$ a $1,212 \times 10^{-4}$. A otimização dos Dax,L e (Ka)LS para todas as vinte corridas foi realizada com a minimização da função objetivo, Eq. (25). Os valores de Dax,L e (Ka)LS para todas as vinte corridas diferem em ordem de magnitude.

O método do traçador foi desenvolvido em nosso laboratório para avaliar a eficiência de contato fluido-sólido externo porque ele produz informação de contato rapidamente[14]. Portanto, o objetivo do presente trabalho foi uma investigação experimental e teórica com o traçador introduzido na corrente líquida. Primeiro, concentrações de traçador obtidas experimentalmente tiveram que ser unificadas com as respostas de traçador obtidas pelo modelo matemático. Nos experimentos, as concentrações do traçador foram determinadas no domínio do tempo usando HPLC/UV-CG480C na saída do TBR de leito fixo. Os perfis de concentração dinâmica adimensional são mostrados nas Figs. (1a) e (1b). A concordância dessas Figs. foi muito satisfatória especialmente entre resultados teóricos e experimentais. As Figs. (1a) e (1b) foram obtidas em diferentes vazões volumétricas. Essas Figs. mostram claramente a validação do modelo matemático, Eq. (19), com a realidade física.

Figure 1: Perfis de concentração do traçador NaOH na saída do N $_2$ /H $_2$ O-NaOH/carvão ativado em condições operacionais de $4,248 \times 10^{-6} \leq Q_L \leq 5,581 \times 10^{-7}$ m 3 s $^{-1}$; $Q_G = 9,861 \times 10^{-5}$ m 3 s $^{-1}$ - (a)

Na Fig. (1a), a curva ajustada de acordo com o modelo experimental foi comparada com uma simulação de modelo matemático transiente para uma vazão volumétrica de $3,751 \times 10^{-5}$ m 2 s $^{-1}$. O coeficiente de dispersão axial da fase líquida para este experimento foi de $2,836 \times 10^{-5}$ m 2 s $^{-1}$. O coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global para esta corrida foi de $2,196 \times 10^{-2}$ s $^{-1}$. O número de Peclet para este experimento foi de 149,692. A função objetivo para este experimento foi de $1,423 \times 10^{-4}$. Pode-se notar que o tempo de computador foi de 9s na simulação. A saturação exibe

um comportamento de frente de propagação experimental e teórico em torno de $\tau = 190$, mostrando assim que o modelo matemático deste trabalho foi corretamente apresentado.

Figure 2: Perfis de concentração do traçador NaOH na saída do N_2/H_2O -NaOH/carvão ativado em condições operacionais de $4,248 \times 10^{-6} \leq Q_L \leq 5,581 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$; $Q_G = 9,861 \times 10^{-5} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ - (b)

Na Fig. (1b), a curva ajustada de acordo com o modelo experimental também foi comparada com uma simulação de modelo matemático transiente para uma vazão volumétrica de $1,096 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$. O coeficiente de dispersão axial da fase líquida para esta corrida foi de $1,105 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$. O coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global para este experimento foi de $0,975 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. A função objetivo para esta corrida foi de $1,015 \times 10^{-4}$. O número de Peclet para esta corrida foi de 112,256. Pode-se observar que o tempo de computador foi de 6s na simulação. A saturação mostra um comportamento de frente de propagação experimental e teórico em torno de $\tau = 120$, mostrando assim que o modelo matemático deste trabalho foi corretamente apresentado.

A análise do coeficiente de dispersão axial da fase líquida e do coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global nos reatores de leito gotejante com fluxo gás-líquido cocorrente foi principalmente realizada com correlações empíricas em uma faixa específica de condições operacionais. O coeficiente de dispersão axial foi calculado em termos da vazão volumétrica da fase líquida assim como o coeficiente de massa líquido-sólido global também foi computado em função da mesma vazão volumétrica da fase líquida. Pode-se observar que o coeficiente de dispersão axial, $D_{ax,L}$, da fase líquida e o coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global, $(Ka)_{LS}$, aumentam com um aumento na vazão volumétrica.

No regime de fluxo gotejante estudado, nossos resultados experimentais para o coeficiente de dispersão axial da fase líquida assim como o coeficiente de massa líquido-sólido global são bem correlacionados por meio das seguintes equações:

$$D_{ax,L} = 88.149Q_L^{1.248}, R^2 = 0.9967; 4.248 \times 10^{-6} \leq Q_L \leq 5.581 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}; Q_G = 9.861 \times 10^{-5} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1} \quad (29)$$

$$(Ka)_{LS} = 40.791Q_L^{2.127}, R^2 = 0.9978; 4.248 \times 10^{-6} \leq Q_L \leq 5.581 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}; Q_G = 9.861 \times 10^{-5} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1} \quad (30)$$

O expoente e o termo pré-vazão volumétrica das Eqs. (29) e (30) foram otimizados. A precisão desses quatro parâmetros foi muito satisfatória, particularmente, o expoente da vazão volumétrica. Pode-se ver na Tabela (4) os parâmetros com suas precisões.

Tabela 4: Intervalos de confiança de 95%

Equação (29)		Equação (30)	
Parâmetros	Precisão (%)	Parâmetros	Precisão (%)
88,149	9,16	40,791	10,32
1,248	3,78	2,127	4,13

Fonte: Autores.

O erro relativo médio entre os valores previstos e experimentais de $D_{ax,L}$ e $(Ka)_{LS}$ são computados de:

$$\overline{D_{ax,L}} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^m \frac{|D_{ax,L}^{Exp} - D_{ax,L}^{Pred}|}{D_{ax,L}^{Exp}} \quad (31)$$

$$\overline{(Ka)_{LS}} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^m \frac{|(Ka)_{LS}^{Exp} - (Ka)_{LS}^{Pred}|}{(Ka)_{LS}^{Exp}} \quad (32)$$

$D_{ax,L}$ e $(Ka)_{LS}$ são analisados a partir do desvio quadrático médio definido como a raiz quadrada da variância quadrática.

$$\sigma_{D_{ax,L}} = \left[\frac{1}{n} \sum_{k=1}^m (D_{ax,L} - \overline{D_{ax,L}})^2 \right]^{1/2} \quad (33)$$

$$\sigma_{(Ka)_{LS}} = \left[\frac{1}{n} \sum_{k=1}^m ((Ka)_{LS} - \overline{(Ka)_{LS}})^2 \right]^{1/2} \quad (34)$$

A Fig. (2) mostra as variações dos resultados experimentais do coeficiente de dispersão axial da fase líquida e previsões teóricas computadas da Eq. (29) como função da vazão volumétrica. Pode-se saber que a concordância entre valores teóricos e experimentais do coeficiente axial da fase líquida é satisfatória, especialmente em toda a faixa da vazão volumétrica. O erro relativo médio $\overline{D_{ax,L}}$ entre os resultados previstos e experimentais deste parâmetro hidrodinâmico foi calculado pela Eq. (31). Por outro lado, o desvio do erro relativo em torno do valor médio $\overline{D_{ax,L}}$ foi quantificado da Eq. (33). Os resultados do erro relativo médio e desvio quadrático foram obtidos para vinte corridas, respectivamente, de $\overline{D_{ax,L}} = 8,57\%$ e $\sigma = 6,21\%$.

Figure 3: Coeficiente de Dispersão Axial da Fase Líquida como Função da Vazão Volumétrica

A Fig. (3) apresenta as mudanças dos dados experimentais do coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global e previsões teóricas obtidas da Eq. (30). Pode-se ver que a comparação entre resultados teóricos e experimentais do coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global

é muito satisfatória, especialmente em todas as variações da vazão volumétrica. O erro relativo médio $\overline{(Ka)_{LS}}$ entre os valores previstos e experimentais deste parâmetro foi computado pela Eq. (32). Além disso, o desvio do erro relativo em torno do valor $\overline{(Ka)_{LS}}$ foi calculado da Eq. (34). Os valores do erro relativo médio e desvio quadrático foram estimados para vinte experimentos, respectivamente, de $\overline{(Ka)_{LS}} = 9,71\%$ e $\sigma = 6,83\%$.

Figure 4: Coeficiente de Transferência de Massa Líquido-Sólido Global como Função da Vazão Volumétrica

6 CONCLUSÕES

O objetivo deste artigo foi realizar uma análise do coeficiente de dispersão axial da fase líquida e do coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global usando o traçador NaOH em um TBR sob condições de fluxo gotejante. Em uma primeira etapa, foi mostrada a solução analítica do modelo matemático desenvolvido para o traçador NaOH no TBR. Em uma segunda etapa, foram otimizados os $D_{ax,L}$ e $(Ka)_{LS}$ simultaneamente pela comparação entre resultados experimentais e a Eq. (19) através da Eq. (25). Em uma terceira etapa, foi validado com base em uma comparação entre os resultados experimentais e previsões teóricas obtidas da Eq. (19) de acordo com as Figs. (1a) e (1b). Em uma quarta etapa, foram propostas as correlações para o coeficiente de dispersão axial da fase líquida e coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global como função da vazão volumétrica de acordo com as Eqs. (29) e (30). Em uma quinta etapa, foi mostrado o comportamento para o coeficiente de dispersão axial da fase líquida e coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global como função da vazão volumétrica de acordo com as Figs. (2) e (3). Além disso, a análise estatística através de intervalos de confiança mostrou que todos os parâmetros envolvidos nas correlações de $D_{ax,L}$ e $(Ka)_{LS}$ foram estimados muito precisamente.

NOMENCLATURA

- $C_L(z, t)$ - Concentração do traçador líquido na fase líquida, kg m^{-3}
- $C_S(z, t)$ - Concentração do traçador líquido na superfície externa do sólido, kg m^{-3}
- $D_{ax,L}$ - Coeficiente de dispersão axial para o traçador líquido na fase líquida, $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
- D_L - Difusividade molecular do líquido, $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$
- d_p - Diâmetro da partícula de catalisador, m
- d_r - Diâmetro do reator, m
- F - Função objetivo
- PWE - Fator de molhamento, adimensional



- Ga_L - Número de Galileo, $Ga_L = \frac{\rho_L^2 g d_p^3}{\mu_L^2}$
- h_L - Retenção dinâmica de líquido, adimensional
- i - Número complexo $\sqrt{-1}$
- $(Ka)_{LS}$ - Coeficiente de transferência de massa líquido-sólido global, s^{-1}
- k_r - Constante de reação, $kgmol\ kg^{-1}\ s^{-1}$
- L - Altura do leito de catalisador, m
- $N_L(\tau)$ - Função definida na Eq. (16)
- Pe - Número de Peclet, $Pe = V_{SL}L/D_{ax}$
- Q_L - Vazões volumétricas da fase líquida, $m^3\ s^{-1}$
- Q_G - Vazões volumétricas da fase gasosa, $m^3\ s^{-1}$
- Re_L - Número de Reynolds, $Re_L = V_{SL}\rho_L d_r/\mu_L$
- Re_G - Número de Reynolds, $Re_G = V_{SG}\rho_G d_r/\mu_G$
- Sc_L - Número de Schmidt, $Sc_L = \mu_L/\rho_L D_L$
- t - Tempo, s
- z - Distância axial do reator catalítico, m
- $Z_L(\xi)$ - Função definida na Eq. (16)

Letras Gregas

- β_{LS} - Parâmetro definido na Eq. (11), adimensional
- β_S - Parâmetro definido na Eq. (13), adimensional
- ε_{ex} - Porosidade externa, adimensional
- ε_S - Porosidade do leito, adimensional
- $\theta_i(\xi, \tau)$ - Concentração adimensional do traçador no líquido e sólido, $i = L, S$
- η - Fator de efetividade catalítica
- μ_L - Viscosidade da fase líquida, $kg\ m^{-1}\ s^{-1}$
- ξ - Parâmetro definido na Tabela 1, adimensional
- ρ_L - Densidade da fase líquida, $kg\ m^{-3}$



REFERÊNCIAS

- [1] Silva, J. D., Lima, F. R. A., Abreu, C. A. M., & Knoechelmann, A. (2003). Experimental analysis and evaluation of the mass transfer process in a trickle bed regime. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 20(4), 375-390.
- [2] Burghardt, A., Bartelmus, G., Jaroszynski, M., & Kolodziej, A. (1995). Hydrodynamics and mass transfer in a three-phase fixed bed reactor with concurrent gas-liquid downflow. *Chemical Engineering and Processing*, 28, 83-99.
- [3] Iliuta, I., Bildea, S. C., Iliuta, M. C., & Larachi, F. (2002). Analysis of trickle-bed and packed bubble column bioreactors for combined carbon oxidation and nitrification. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 19, 69-87.
- [4] Latifi, M. A., Naderifar, A., & Midoux, N. (1997). Experimental investigation of the liquid-solid mass transfer at the wall of trickle-bed - Influence of Schmidt Number. *Chemical Engineering Science*, 52, 4005-4011.
- [5] Charpentier, J. C., & Favier, M. (1975). Some liquid holdup experimental data in trickle bed reactors for foaming and non foaming hydrocarbons. *AIChE Journal*, 21, 1213-1221.
- [6] Specchia, V., & Baldi, G. (1977). Pressure Drop and Liquid Holdup for Two Phase Concurrent Flow in Packed Beds. *Chemical Engineering Science*, 32, 515-523.
- [7] Feike, J. L., & Toride, N. (1998). Analytical solutions for solute transport with binary and ternary exchange. *Soil Science Society of America Journal*, 56, 855-864.
- [8] Dudukovic, M. P. (1982). Analytical solution for the transient response in a diffusion cell of the wickle-kallenbach type. *Chemical Engineering Science*, 37, 153-158.
- [9] Ramachandran, P. A., & Chaudhari, R. B. (1983). *Three phase catalytic reactors*. Gordon and Breach Science Publishers, New York, U.S.A., Chap. 7, pp. 200-255.
- [10] Lange, R., Gutsche, R., & Hanika, J. (1999). Forced periodic operation of a trickle-bed reactor. *Chemical Engineering Science*, 54, 2569-2573.
- [11] Fukushima, S., & Kusaka, K. (1977). Interfacial area boundary of hydrodynamic flow region in packed column with cocurrent downward flow. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 10(6), 461-467.
- [12] Burghardt, A., Kolodziej, A. S., & Jaroszynski, M. (1990). Experimental studies of liquid-solid wetting efficiency in trickle-bed cocurrent reactors. *Chemical Engineering Journal*, 28, 35-49.
- [13] Box, P. (1965). A new method of constrained optimization and a comparison with other method. *Computer Journal*, 8, 42-52.
- [14] Silva, J. D., Lima, F. R. A., Abreu, C. A. M., & Knoechelmann, A. (2003). Experimental analysis and evaluation of the mass transfer process in a trickle bed regime. *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 20(4), 375-390.