

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS
FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA
ÁREA DE CONCENTRAÇÃO
DESENVOLVIMENTO DE PROCESSOS QUÍMICOS

**DESENVOLVIMENTO DE MODELOS
DETERMINÍSTICO DINÂMICO E HÍBRIDO NEURAL
PARA REATORES MULTIFÁSICOS
“AIR-LIFT”**

Autor: Aluizio Sales Junior
Orientador: Prof. Dr. Rubens Maciel Filho

Dissertação de Mestrado
apresentada à Faculdade de
Engenharia Química como parte
dos requisitos exigidos para a
obtenção do título de mestre em
Engenharia Química.

CAMPINAS - SÃO PAULO
MARÇO DE 2002

IDADE 32
CHAMADA UNICAMP
Sa32d
EX
DMBO BCI 49415
COC 16-837102
DX
REÇO R\$ 17,00
ATA
º CPD

CM00168401-7

BID 242786

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DA ÁREA DE ENGENHARIA - BAE - UNICAMP

Sa32d

Sales Junior, Aluizio

Desenvolvimento de modelos determinístico dinâmico e híbrido neural para reatores multifásicos "air-lift" / Aluizio Sales Junior.-- Campinas, SP: [s.n.], 2002.

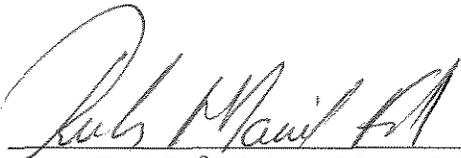
Orientador: Rubens Maciel Filho.

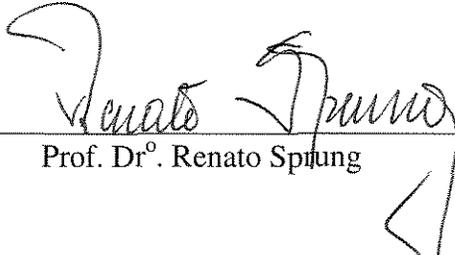
Dissertação (mestrado) - Universidade Estadual de Campinas, Faculdade de Engenharia Química.

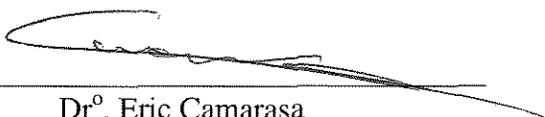
1. Redes neurais (Computadores). 2. Reatores químicos. 3. Simulação (Computadores). 4. Modelos matemáticos. 5. Escoamento multifásico. I. Maciel Filho, Rubens. II. Universidade Estadual de Campinas. Faculdade de Engenharia Química. III. Título.

Folha de Aprovação

Dissertação de mestrado defendida por Aluizio Sales Junior em 18 de março de 2002 pela banca examinadora constituída pelos doutores:


Prof. Dr^o. Rubens Maciel Filho


Prof. Dr^o. Renato Sprung


Dr^o. Eric Camarasa

00220062

UNICAMP
BIBLIOTECA CENTRAL
SEÇÃO CIRCULANTE

Folha de Versão Final

Este exemplar corresponde à versão final da Dissertação de Mestrado em Engenharia Química.



Prof. Dr. Rubens Maciel Filho

Dedicatória

Aos meus pais , Maria Elizabeti e Aluizio Sales...

Ao meu irmão Marcus...

A minha Madrinha e família ...

A minha namorada Mayra pela força e pelo carinho tão especial...

A todos os marinheiros destemidos, que nunca relutaram em conduzir de forma certa, a nossa “caravela” chamada Brasil, tão assolada pelas tempestades e tormentas.

A todos os Guardiões da Natureza que não medem esforços para salvar os últimos remanescentes selvagens deste planeta.

E a todos os Engenheiros, que desafiam o universo caótico e criam a ordem na desordem, inventando o inimaginável.

Agradecimentos

Ao Professor Rubens pelo apoio e confiança e todo o suporte. Sem o qual esse trabalho não seria possível.

Ao mestre Luiz Augusto da Cruz Meleiro pela cooperação em Redes Neurais.

À FAPESP, pelo apoio financeiro.

À UNICAMP e ao ESTADO DE SÃO PAULO por todo o investimento em tecnologia e pesquisa e pela seriedade e respeito prestados à soberania deste país.

Epígrafe

...Não importa quantas tempestades terei que enfrentar no oceano da vida, sempre estarei ajustando as velas. Não importa quanta ganância e depredação houver neste planeta, estarei sempre nas trincheiras desta guerra ao lado de Gaia. Não importa se eu for o último engenheiro e todas as cidades deste planeta estiverem em ruínas, reconstruiria uma por uma, tijolo por tijolo, até o fim dos meus dias...

Resumo

Três modelos computacionais diferentes foram desenvolvidos, comparados e analisados em função dos dados experimentais obtidos. Ambos os modelos correlacionam transferência de massa e hidrodinâmica para um reator “air-lift” de “loop” externo. Um dos modelos é apresentado como **Modelo de Equações Empíricas (MEE)**, que é uma combinação de equações algébricas e diferenciais ordinárias, prognosticadas por diversos especialistas em sistemas multifásicos e em reatores “air-lifts”. O segundo é o **Modelo Determinístico Dinâmico (MDD)**, fundamentado nas Equações de Fick e Navier-Stokes e estendido para sistemas bifásicos. O terceiro e o último é o **Modelo Híbrido Neural (MHN)** que usa redes neurais em associação com as equações determinísticas desenvolvidas. O primeiro depende de uma metodologia de otimização integrada com as equações, o segundo de condições iniciais bem definidas, enquanto que o terceiro de uma rede neural bem treinada e de muitos dados de entrada. Os algoritmos desenvolvidos possibilitaram entender o comportamento associado da hidrodinâmica e da transferência de massa para o “riser” de um reator “air-lift” no sistema bifásico ar-água. As respostas dos três modelos concordaram com resultados empíricos obtidos de uma planta piloto.

Abstract

Three different algorithm models were compared, the numerical output analyzed and a correlation established with the experimental data. Both models correlate mass transfer and hydrodynamic for an External Loop Air-lift Reactor. One of them is presented as the **Empirical Equations Models (EEM)**, which is the combination of algebraic and Ordinary Differential Equations (ODEs). Such equations were predicted for air-water multiphase systems by Air-lift reactors specialists. The second one is the **Deterministic Dynamic Model (DDM)**. It was based on the Fick's laws and the Navier-Stokes equations extended for the biphasic systems. The last one is the **Hybrid Neuronal Model (HNM)**, which combines neuronal network with the deterministic equations developed. The first one depends on an optimization methodology combined with the algebraic equations, the second one must have initial condition very well defined, while the last one needs a network very well trained and a several entry data. The developed algorithm allowed to improve the knowledge of the hydrodynamic and mass transfer behaviors. Both models outputs agreed with the empirical data obtained from a pilot plant.

-ÍNDICE-

| | |
|---|-------------|
| <i>Folha de Aprovação</i> | <i>ii</i> |
| <i>Folha de Versão Final</i> | <i>iii</i> |
| <i>Dedicatória</i> | <i>iv</i> |
| <i>Agradecimentos</i> | <i>v</i> |
| <i>Epígrafe</i> | <i>vi</i> |
| <i>Resumo</i> | <i>vii</i> |
| <i>Abstract</i> | <i>viii</i> |
| <i>Índice</i> | <i>ix</i> |
| <i>Nomenclatura</i> | <i>xiii</i> |
| | |
| 1. - Introdução | 01 |
| | |
| 1.1 - Objetivo | 03 |
| 1.2 – Organização da Tese | 04 |
| | |
| 2.- Fundamentos Teóricos | 05 |
| | |
| 2.1 - Reatores Multifásicos - Colunas Aeradas | 05 |
| 2.2 - Considerações Preliminares sobre a Hidrodinâmica em Sistemas Multifásicos | 09 |
| 2.3 - Considerações Preliminares sobre a Transferência de Massa em Sistemas Multifásicos | 16 |
| 2.4 - Desenvolvimento das Equações Diferenciais do Modelo Dinâmico | 18 |
| 2.4.1 - Hidrodinâmica | 18 |
| 2.4.2 - Transferência de Massa | 22 |
| 2.4.3 - Termo de Transferência de Massa (M_k) | 26 |

| | |
|---|----|
| 2.5 - <i>Redes Neurais</i> | 27 |
| 2.5.1 - <i>Considerações Preliminares</i> | 27 |
| 2.5.2 - <i>Treinamento</i> | 29 |
| 2.5.3 - <i>Classificação</i> | 31 |
| 2.5.4 - <i>Considerações sobre Modelos Híbridos Neurais</i> | 32 |
| 2.6 - <i>Conclusão</i> | 33 |
| | |
| 3. - <i>Revisão Bibliográfica Cronológica</i> | 35 |
| | |
| 3.1 - <i>Reatores Multifásicos - Colunas Aeradas</i> | 35 |
| 3.2 - <i>Modelos Dinâmicos e Estacionários para Reatores Multifásicos</i> | 36 |
| 3.2.1 – <i>Modelos Hidrodinâmicos</i> | 36 |
| 3.2.2 - <i>Modelos de Transferência de Massa</i> | 38 |
| 3.3 - <i>Redes Neurais</i> | 39 |
| | |
| 4. - <i>Materiais e Métodos</i> | 41 |
| | |
| 4.1 - <i>Metodologia experimental</i> | 41 |
| 4.1.1 - <i>Reator “Air-lift” Piloto de “Loop” Externo</i> | 41 |
| 4.1.1.A - <i>Medições de Pressão Local</i> | 41 |
| 4.1.1.B - <i>Determinação da Vazão e Velocidade do Líquido</i> | 42 |
| 4.1.1.C - <i>Determinação do Diâmetro Equivalente das Bolhas</i> | 42 |
| 4.1.1.D - <i>Sistemas Multifásicos Estudados</i> | 43 |
| 4.1.2 - <i>Distribuidores (Dispersores ou Spargers)</i> | 43 |
| 4.2 - <i>Modelo de Equações Empíricas (MEE)</i> | 44 |
| 4.2.1 - <i>Programas Desenvolvidos</i> | 45 |
| 4.2.2 - <i>Equações Modelos</i> | 46 |
| 4.2.2.A - <i>Velocidade Gasosa</i> | 48 |
| 4.2.2.B - <i>Gás “Hold-Up”</i> | 48 |
| 4.2.2.C – <i>Reynolds Teórico e Velocidade Terminal das Bolhas</i> | 50 |
| 4.2.2.D - <i>Perda de Carga</i> | 51 |
| 4.2.2.E - <i>Pressão Local</i> | 52 |
| 4.2.2.F - <i>Transferência de Massa</i> | 53 |

| | |
|--|----|
| 4.2.3 - Algoritmo para Descrição do “Riser” (regime heterogêneo) | 54 |
| 4.3 - Modelo Determinístico Dinâmico (MDD) | 54 |
| 4.3.1 - Metodologia Numérica | 55 |
| 4.3.2 - Discretização das EDPs | 55 |
| 4.3.3 - Condições Iniciais e Finais | 56 |
| 4.3.3.A - Retenção gasosa (Gás “hold up”) | 57 |
| 4.3.3.B - Velocidade gasosa | 58 |
| 4.3.3.C - Fração Molar | 59 |
| 4.3.4 - Condições de Contorno | 60 |
| 4.3.3.A - Retenção gasosa (Gás “hold up”) | 61 |
| 4.3.3.B - Velocidade gasosa | 62 |
| 4.3.3.C - Fração Molar | 63 |
| 4.3.5 - Programas Desenvolvidos | 64 |
| 4.3.6 - Equações Auxiliares do Modelo Dinâmico | 66 |
| 4.3.7 - Algoritmo para o Modelo Dinâmico (“riser”) | 69 |
| 4.4 - Modelo Híbrido Neural (MHN) | 70 |
| 4.4.1 - Treinamento | 70 |
| 4.4.2 - Desenvolvimento do Modelo Híbrido Neural | 73 |
| 4.5 - Conclusão | 75 |
| | |
| 5.0 - Resultados | 76 |
| | |
| 5.1 - Modelo de Equações Empíricas (MEE) | 76 |
| 5.1.1 - Considerações preliminares sobre o MEE | 76 |
| 5.1.2 - Analogia entre os Resultados do MEE e Experimento | 77 |
| 5.2 - Modelo Determinístico Dinâmico | 84 |
| 5.2.1 - Considerações Preliminares sobre o MDD | 84 |
| 5.2.2 - Analogia entre os Resultados do MDD e MEE | 86 |
| 5.2.3 - Análise da Performance da Metodologia Numérica | 91 |
| 5.2.4 - Analogia entre os Resultados de Modelos Dinâmicos com EDPs Completas e Simplificada | 92 |
| 5.3 - Modelo Híbrido Neural (MHN) | 94 |

| | |
|---|------------|
| 5.3.1 - Analogia entre o Resultado do MHN, MEE e MDD | 95 |
| 6. – Conclusões e Trabalhos Futuros | 97 |
| 6.1 - Progressos e Discussão dos Resultados | 97 |
| 6.2 - Novas Propostas de Estudo | 99 |
| 7. - Bibliografia | 100 |
| Anexos | 104 |
| Anexo 01 - Planta Piloto do “Air-lift” de oxidação | 105 |
| Anexo 02 - Tabela com as dimensões do reator “Air-lift” Piloto | 106 |
| Anexo 03 - Tela de Aquisição de Dados do Labview | 107 |
| Anexo 04 - Definição do “Drift-Flux” | 108 |
| Anexo 05 - Dados de Simulação | 111 |
| Anexo 06 - Vazões gasosa e de líquido usado no experimento e na simulação | 112 |
| Anexo 07 - Exemplo de matriz resultado do MEE | 113 |

-NOMENCLATURA-

| | |
|---------------------|---|
| a | Área interfacial gás-líquido, m^2/m^3 |
| A | Área transversal, m^2 |
| C_0 | Parâmetro do modelo drift-flux |
| C_1 | Parâmetro do modelo drift-flux, m/s |
| $C_{D,\infty}, C_w$ | Coefficiente de arraste no meio infinito |
| d_B | Diâmetro equivalente de bolha, m |
| D_i | Diâmetro da coluna, m |
| D | Difusividade mássica de um soluto no líquido, m^2/s |
| e | Fator de rugosidade |
| Eo | Número de Eotvos |
| f | Fator de atrito |
| g | Constante gravitacional, m/s^2 |
| G | Fluxo molar de gás inerte, kmol/s |
| H, L | Altura do reator, m |
| He | Coefficiente de Partição, $kPa \cdot m^3/kgmol$ |
| k_L | Coef. de transferência de massa global, m/s |
| M | Parâmetro de transferência de massa, $kg/m^3 \cdot s$ |
| N | Parâmetro da equação para deter. de Reynolds |
| P | Pressão, kN/m^2 |
| P_0, P_{2L}, p^* | Pressão na superfície da mistura, kN/m^2 |
| p_z | Pressão local, kN/m^2 |
| ΔP_f | Perda de carga por atrito, kN/m^2 |
| Q | Vazão volumétrica, m^3/s |
| r | Variável radial, m |
| R | Const. universal dos gases ideais, $J/(kmol \cdot K)$ |
| Re | Número de Reynolds |
| t | Tempo, s |
| S | Termo fonte |
| T | Temperatura, K |
| u_g | Velocidade gasosa local, m/s |
| u_l | Velocidade líquida local, m/s |
| u'_{yb} | Componente de intensidade de turbulência devido a presença de bolhas, m/s |
| V_s | Velocidade interfacial, m/s |
| $V_{b,\infty}$ | Velocidade terminal das bolhas, m/s |
| V_L | Velocidade líquida superficial, m/s |
| V_g | Velocidade gasosa superficial, m/s |
| w | Peso da conexão para Redes Neurais |
| x | Variável |
| Y | Razão molar de oxigênio em relação ao inerte; Variável |
| y | Fração molar de oxigênio; variável |
| yk_t | Variável |
| z | Coordenada axial, m |

SUB ESCRITOS

| | |
|----------------|---|
| b | Referente a bolhas |
| D | “Downcomer” |
| ef | Efetivo |
| f | Inerente ao atrito |
| ftp | Inerente ao atrito bifásico |
| g | Gás |
| in | Entrada |
| L | Líquido |
| out | Saída |
| R | Riser |
| y _b | Na direção transversal, devido a bolhas |
| z | Posição no eixo axial |

LETRAS GREGAS

| | |
|---------------|--|
| θ | Bias |
| ε | Retenção gasosa, taxa de aeração ou “hold up” do gás |
| μ | Viscosidade , Kg/m.s |
| ρ | Densidade, kg/m ³ |
| σ | Número de Prandtl |
| Φ^2_L | Fator de atrito multiplicativo bifásico |
| Φ | Variável |

1. - Introdução

Desenvolver modelos dinâmicos tem conotações teóricas, mas na verdade existe uma importância industrial sem precedentes. A simulação numérica de sistemas multifásicos é reconhecido como uma ferramenta muito útil para otimizar o desempenho de equipamentos em escala real. Outras possíveis aplicações dos modelos envolvem novos equipamentos com novas geometrias e sistemas com componentes mais adequados ao propósito. Modelos dinâmicos mais robustos, podem ser empregados em um sistema de controle, melhorando o tempo de resposta, reduzindo oscilações e aumentando a qualidade dos produtos obtidos.

Desenvolver modelos matemáticos tornou-se mais aplicado na última década do milênio passado, com os sistemas computacionais mais integrados, velozes e robustos. O que era um privilégio dos grupos de mais alta tecnologia do mundo em meados de 1980, hoje pode ser desenvolvido, de forma acessível, por diversos grupos de pesquisas em modelagem, simulação e programação científica. Para tal, deve-se conhecer e ter os ingredientes certos para alcançarmos as metas propostas. Dessa forma, a nível de matemática aplicada, é necessário conhecer o mecanicismo das equações de Navier-Stokes específicas à Quantidade de Movimento, Transferência de Massa e de Energia; conhecer metodologias de resolução numérica de equações diferenciais ordinárias e parciais lineares ou não lineares, que sejam implícitas, de resolução computacional com relativo dinamismo e com erros associados desprezíveis. É necessário conhecer metodologias como o tradicional Euler, técnicas de Diferenciação Finita, Colocação Ortogonal, Runge-Kutta, Elementos e Volumes Finitos. Por fim, é necessário estar atualizado com as inovações, como redes neurais e saber aplicá-las conforme as necessidades. Com essas “ferramentas” pode-se modelar e simular situações típicas encontradas em Engenharia Química, mas tudo isso seria inviável numa dimensão de tempo adequada, se não tivesse disponível um computador com tempo de processamento rápido e o domínio de uma linguagem de programação que correspondesse com a sofisticação dos modelos matemáticos, que fariam parte de rotinas e subrotinas. Então, a nível de informática é necessário dominar

linguagem como Fortran 77/90 e programas que suportem essa linguagem nos sistemas operacionais atuais. Até o momento, mencionou-se meras ferramentas, ou “ingredientes”, mas que não são a essência do projeto. Entra-se, agora, nas particularidades, que envolvem o assunto que será abordado na íntegra. Entre essas particularidades, o desenvolvimento deste projeto engloba uma especialidade de equipamento industrial: os reatores “air-lifts” (ALRs), os quais abrangem sistemas multifásicos tipo gás-líquido e reações de oxidação de primeira ordem ou pseudo primeira ordem. Essas particularidades irão transformar as equações matemáticas conforme o *design* do equipamento e seus parâmetros de projeto; conforme as características do sistema multifásico como: propriedades dos componentes (difusividade, viscosidade, $k_L a$) e as forças de interação (gradiente de pressão, força de arraste, força de massa agregada, força de Basset, força Magnus e a força de soerguimento de Saffman) e conforme os parâmetros cinéticos (temperatura, concentração, taxa reacional e ordem da reação).

Até esse ponto, percebe-se que mencionou-se assuntos que foram previamente estudado, o que mostra que sustentar o projeto de pesquisa em bases literárias consolidadas e em pesquisas precedentes é, também, de fundamental importância. A Figura 1 mostra de forma esquemática as etapas necessárias para o desenvolvimento deste Projeto.

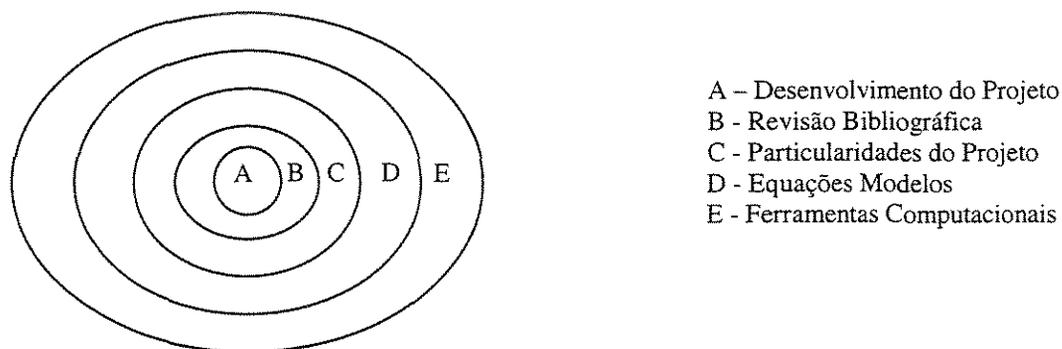


Fig. 1.1 - Abrangência dos assuntos no projeto.

1.1) - Objetivo

O objetivo desta tese se enquadra em propósitos bem definidos como:

- I. Desenvolver modelos de hidrodinâmica integrados com transferência de massa para o sistema multifásico ar-água em reatores tipo “air-lift” de “loop” externo.
- II. Desenvolver três modelos integrados, distintos. Um Modelo de Equações Empíricas, (MEE) estruturado por correlações propostas na literatura. Um Modelo Determinístico Dinâmico (MDD) transiente e bidimensional e um Modelo Híbrido Neural (MHN), que envolve equações determinísticas associadas a redes neurais.
- III. Desenvolver programas específicos para cada um dos modelos.
- IV. Comparar os resultados e o desempenho dos modelos entre si e com os resultados experimentais obtidos por *Camarasa, et al (1999)*.
- V. Avaliar a hidrodinâmica e a transferência de massa no “riser” a partir dos resultados gerados pelos programas.

O desenvolvimento dos modelos foi seqüencial e o êxito do desenvolvimento de um novo modelo dependeu da boa precisão dos resultados do modelo desenvolvido previamente. Assim, numa primeira etapa foi desenvolvido o Modelo de Equações Empíricas (MEE), esse modelo engloba diversas correlações que caracterizam a hidrodinâmica e a transferência de massa para o reator em questão. Essas equações foram levantadas na revisão bibliográfica e serão mencionadas posteriormente. Numa segunda etapa, desenvolveu-se o Modelo Determinístico Dinâmico (MDD) suportada pelo MEE e por equações diferenciais parciais estendida para sistemas multifásicos. Por sua vez, o Modelo Híbrido Neural (MHN) foi estruturado pelas EDPs que caracterizavam a hidrodinâmica no MDD e pela rede neural *feedforward* tipo MLP (*Multy Layer Perceptron*). As variáveis de saída da rede definem a transferência de massa no modelo.

1.2) – Organização da Tese

No Capítulo 2, foram descritos os fundamentos teóricos da tese que abrange as peculiaridades do reator estudado, os fenômenos de sistemas multifásicos, que ocorrem nos reatores “air-lift” e a dinâmica do processo. Além disso, neste capítulo é descrito passo a passo as equações modelos da hidrodinâmica e transferência de massa usados nos programas desenvolvidos e os fundamentos de redes neurais.

No Capítulo 3, a revisão bibliográfica é feita em ordem cronológica e é segmentado conforme o assunto: reatores multifásicos; modelos hidrodinâmicos e de transferência de massa ou redes neurais.

A metodologia desta tese é descrita no Capítulo 4. Neste Capítulo, comentou-se sobre as medições experimentais realizadas anteriormente. Em seguida, descreveu-se os programas desenvolvidos para os três novos modelos (MEE, MDD e o MHN) para cada um deles foi proposto uma seqüência de cálculo, englobando todas as equações específicas, além de um algoritmo que corresponde a lógica do programa.

Os resultados desses programas e as devidas analogias foram dispostos no Capítulo 5, neste capítulo as considerações e particularidades são comentadas. Os resultados dos três modelos são comparados entre si e a performance da simulação numérica avaliada. Por fim, os avanços e o desenvolvimento que esta tese proporcionou além das sugestões de trabalhos futuros são descritos no Capítulo 6 dessa Tese.

2. - Fundamentos Teóricos

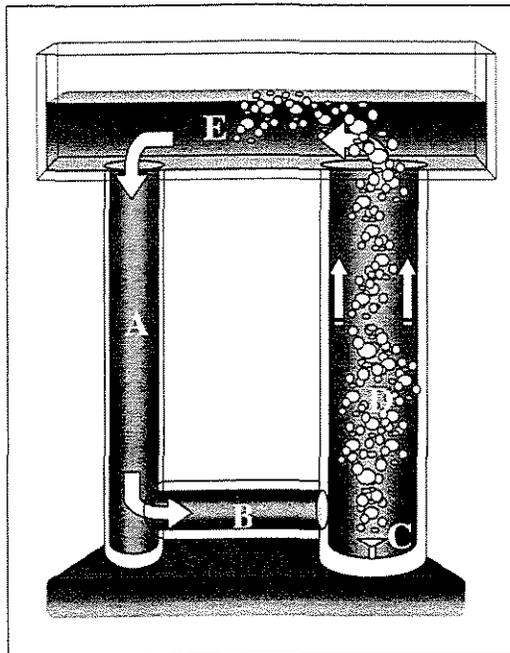
2.1) - Reatores Multifásicos - Colunas Aeradas

Reatores aerados de agitação contínua são os mais comuns dentre os reatores multifásicos. No entanto, este tipo de reator não fornece todos os requisitos para as mais variadas possibilidades existente na indústria e outras séries de reatores foram amplamente desenvolvidos com a finalidade de complementar e otimizar a produção de diversos produtos. Dentre essas gamas de reatores multifásicos, as colunas de bolhas foram desenvolvidas para se obter, principalmente, uma solubilidade maior de um componente na fase líquida. Isso é possível devido a altura avantajada da coluna. A geometria característica, também proporciona um tempo de residência maior da fase dispersa. Outros como os reatores tipos “air-lifts” com “loop” externo ou “loop” interno, são bem semelhantes a coluna de bolhas. No entanto, os “air-lifts” são mais eficientes pois possibilitam uma recirculação contínua da solução. Em ambos, o fluxo da mistura é gerado pela ascensão das bolhas.

Tanto nas colunas de bolhas quanto nos reatores “air-lifts”, o sistema multifásico industrialmente mais comum é o sistema bifásico gás-líquido, em que componentes na fase gasosa passam para a fase líquida para reagirem com outros componentes presentes nesta. As colunas aeradas são empregadas, principalmente, para oxidação, hidrogenação, cloração, fermentação e tratamento de efluente.

Os reatores “air-lifts” caracterizam-se pela ausência de partes mecânicas móveis e por serem de construção industrial simples, apresentando boa transferência de calor e de massa. Requerem baixa quantidade de energia em sua operação e podem ser construídos em pequenas áreas, devido a grande relação da altura/diâmetro. Apesar disso, são difíceis de dimensionar por causa da complexidade do comportamento hidrodinâmico. Isso torna a predição da taxa de aeração (volume de gás presente na fase líquida pelo volume total da dispersão)

fundamental para um bom dimensionamento e uma boa modelagem para este tipo de reator.



Os reatores "air-lifts" (ALR) mais simples são constituídos por seções denominadas: "riser", "downcomer", "distribuidor", zonas de mistura e separação gasosa. (Fig 2.1).

- A- "Downcomer"
- B- Zona de Mistura
- C- Distribuidor ("Sparger")
- D- "Riser"
- E- Zona de Separação gasosa

Fig. 2.1 - Seções de um "airlift" de "loop" externo.

O "riser" é a zona mais importante do reator. É onde ocorre a transferência multifásica dos componentes e onde se iniciará a reação química, quando o sistema for reativo. Como se pode observar pela Figura 2.2, uma coluna de bolhas só é constituída de uma zona de aeração, Essa observação é bastante válida para modelagem, pois pode-se considerar em algumas situações, que o comportamento hidrodinâmico do "riser" no reator "air-lift" seja semelhante a de uma coluna de bolhas.

O "downcomer" é um prolongamento de circulação descendente do líquido dispersante. Esta zona diferencia os tipos de reatores "air-lifts", que podem ser de circulação interna ou externa.

A zona de mistura, como sugere, mistura a solução em circulação com o gás proveniente do distribuidor. A zona de separação gasosa é o local, que separa o gás que não foi transferido para a fase dispersante no topo da coluna do líquido que é redirecionado para o "downcomer".

O coeficiente de retenção gasosa (taxa de aeração) e a velocidade de líquido vão depender da vazão de gás injetado, geometria do reator, características do fluido, dos coeficientes de transferência de massa e térmico, da cinética reacional do meio, do tempo de residência das bolhas e principalmente do tipo de distribuidor (dispersor ou “sparger”) usado. Isso irá definir o regime hidrodinâmico no interior do reator, que pode ser homogêneo, pseudo-homogêneo ou heterogêneo.

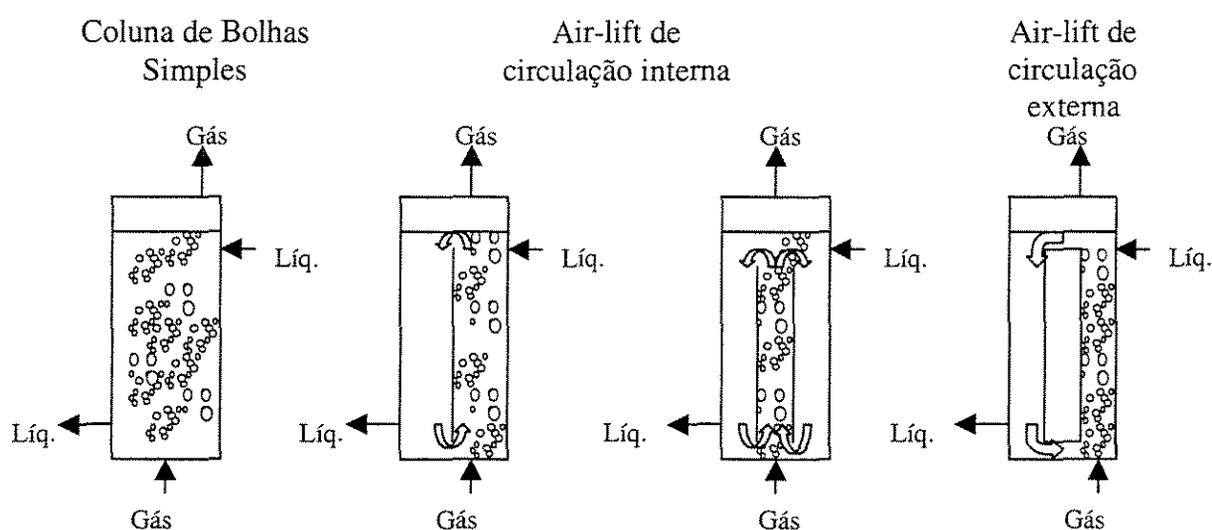


Fig. 2.2 - Representação esquemática das colunas aeradas mais comuns.

- **Regime homogêneo:** As bolhas e a taxa de aeração são radialmente uniforme, e os efeitos de coalescência e dispersão são mínimos. As velocidades que detêm este regime são da ordem de 5 cm/s.
- **Regime pseudo-homogêneo:** É uma transição do homogêneo para o heterogêneo. Existem variedades distintas de bolhas e uma periodicidade no fluxo.
- **Regime heterogêneo:** Coalescência e dispersão são claramente observados. A retenção gasosa torna-se radialmente nítida. A variação radial das velocidades e da retenção gasosa gera células de circulações no interior da coluna.

A alta recirculação do ALR estabiliza o fluxo interno e ameniza a variação brusca nos perfis de taxa de aeração das zonas de transição (Fig. 2.3). Além disso, a recirculação do ALR predispõem uma abrangência da velocidade do líquido e gás, maior do que das colunas de bolhas. (Fig. 2.4), o que proporciona maior utilidade a nível industrial.

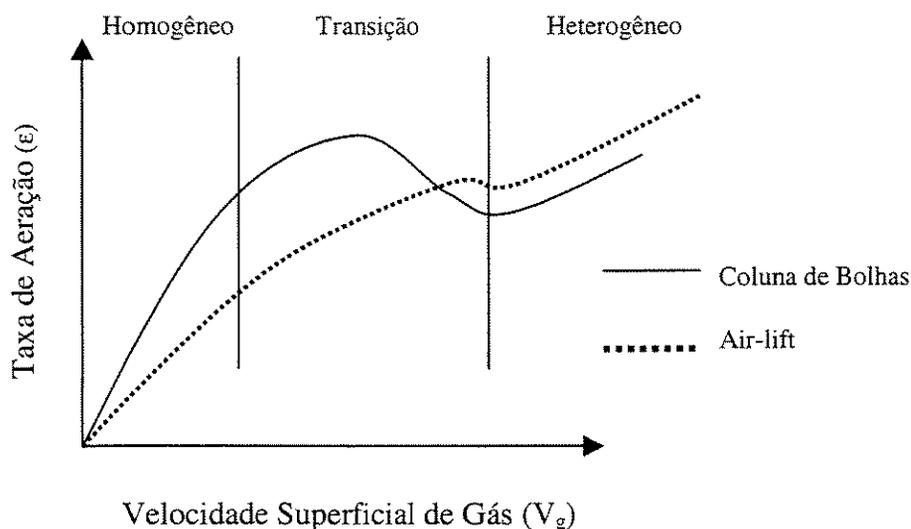


Fig. 2.3 – Perfis do coeficiente de retenção gasosa para coluna de bolhas e reator “air-lift” (Snape e et al 1995)

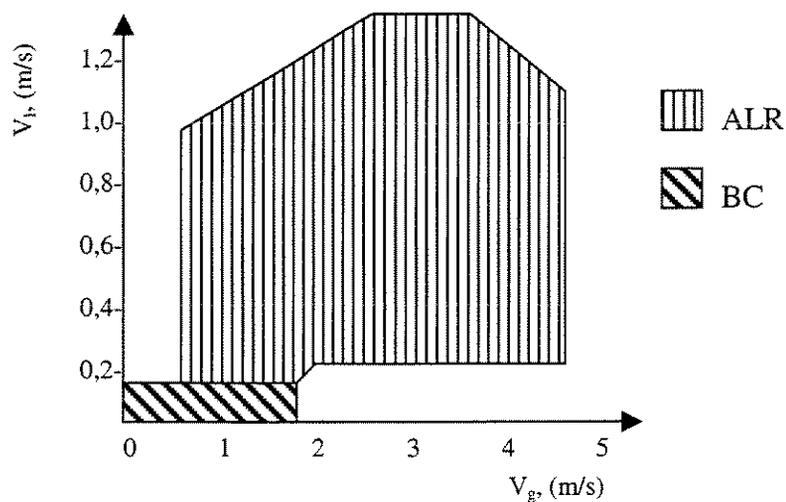


Fig. 2.4 – Regiões de utilização de reatores “air-lifts” (ALR) e colunas de bolhas (BC) com relação a velocidade líquida (v_l) e gasosa (v_g). (Merchuk, 1986).

Além destes domínios, o regime turbulento e não homogêneo não possibilita um estado estacionário efetivo, que é muito importante se o controle operacional for suportado por modelos estacionários. A limitação do domínio de utilização dos reatores da Figura 2.4 mostra claramente a importância de desenvolver modelos transientes (dinâmicos) frente aos modelos no estado estacionário. Os modelos dinâmicos com solução em tempo real proporcionam resultados imediatos e precisos, independente das oscilações de velocidade esperadas num regime turbulento. Assim, um controle com modelos em Tempo Real atuaria instantaneamente e com ótima eficiência num sistema reativo com maior rendimento em fluxos instáveis (além do domínio).

2.2) - *Considerações Preliminares sobre a Hidrodinâmica em Sistemas Multifásicos.*

Para aplicações em tempo real é necessário, que além de uma boa descrição, o modelo apresente soluções confiáveis e rápidas. Isto pode requerer o agrupamento de certos fenômenos, levando a uma redução na dimensionalidade ou na complexidade das equações, assim como o desenvolvimento de algoritmos de solução eficiente e o emprego de métodos numéricos adequados.

Nas simulações é importante considerar a dinâmica do fluxo bifásico e o comportamento do fluxo transiente, levando em conta as propriedades do reator, e a transferência de massa e térmica que é de interesse do engenheiro químico.

Na literatura, a aproximação mais comum usada nas simulações do fluxo dinâmico dos sistema bifásico líquido-gás, consiste em considerar o deslocamento líquido e gasoso num único estado homogêneo. Essas simplificações, assim como as considerações que serão comentadas, irão facilitar a resolução numérica sem desfaltar os resultados em termos de precisão.

Em colunas de bolhas, o fluxo heterogêneo é representado por um padrão de fluxo circulatório instável, caracterizado por uma velocidade líquida de circulação. Já no reator “air-lift”, o fluxo é representado pelo modelo *Drift-Flux* (Anexo 4).

Para diferenciar o fluxo entre a coluna e o “air-lift”, um critério simplificado proposto por *Verlaan et al (1989)*, baseia-se na velocidade superficial líquida e a velocidade de circulação do líquido. Se a velocidade de circulação do líquido exceder a velocidade superficial do líquido, então haverá uma transição do tipo de fluxo uniforme do ALR (reator “air-lift”) para um fluxo heterogêneo da coluna de bolhas. (CB)

A velocidade do líquido e a retenção gasosa local (taxa de aeração) podem ser previstos através da equação 2.1 e da equação do modelo do fluxo bifásico de *Zuber e Findlay (1965)*. (Eq. 2.2)

$$\int_0^L g.\varepsilon(z)_r dz - \int_0^L g.\varepsilon(z)_d dz = \left(\frac{1}{2}\right).K_f.v_{ls}^2 \quad (\text{Eq. 2.1})$$

A equação anterior fez parte das rotinas desenvolvidas, no capítulo 3. Esta equação representa o balanço de momento num ALR, em que o membro esquerdo caracteriza a força motriz, enquanto o membro a direita representa a força resistiva, gerado pela perda de carga e a força de atrito.

A equação modelo 2.2, assume “plug flow” na fase líquida, levando em conta um fluxo não uniforme e uma distribuição do gás “hold-up” (taxa de aeração) axial.

$$v_g = C(v_{gs} + v_{ls}) + v_{b,\infty} \quad (\text{Eq. 2.2})$$

Se v_g for aplicado em função de $v_{gs} + v_{ls}$ então $v_{b,\infty}$ e C podem ser obtidos. Se o fluxo do regime mudar, haverá uma relação não linear entre a velocidade gasosa e o fluxo total ($v_{gs} + v_{ls}$). Este comportamento só é previsto, em ALRs. Numa coluna de bolha, o modelo de *Zuber e Findlay* não é válido pois o fluxo bifásico heterogêneo induz células de circulação instáveis, que não podem ser representadas por um parâmetro de distribuição único. (Fig. 2.4)

Em contrapartida, *Joshi e Shah (1981)* introduziram um modelo que prevê a velocidade de circulação (v_{lc}) do líquido nas células de circulação (Eq. 2.3)

$$v_{lc} = 1,18 [g \cdot D \cdot \epsilon \cdot (v_s - v_{b,\infty})]^{0,33} \quad (\text{Eq. 2.3})$$

Essas células de circulação geram um gás “hold-up” 170% maior para a Coluna de Bolhas do que para o ALR.

A eq. de *Zuber e Findlay* só é válida até um valor máximo de fluxo total ($v_{gs} + v_{ls}$). Após isto, haverá um desvio gradativo de tendência, que caracteriza a mudança de regime. A equação de *Joshi e Sharma* prevê fluxo heterogêneo numa coluna de bolhas, quando a velocidade interfacial ou “slip” (v_s) for maior que a velocidade de uma bolha única em um meio infinito ($v_{b,\infty}$).

Conforme a equação 2.1, o coeficiente de atrito é um dos parâmetros de balanço que fez parte de algumas rotinas computacionais desenvolvidas. Geralmente, este parâmetro mantém-se constante e independente da velocidade do líquido e variações do gás “hold-up”. Mas, para um fluxo alto de gás, o coeficiente de atrito tende a diminuir com o aumento de velocidade.

No ALR, o fluxo líquido relativamente alto na região do “riser” suprime a existência de células de circulação. A transição entre o fluxo de um ALR e um fluxo semelhante a da coluna de bolhas pode ser esperado quando a velocidade líquida superficial (v_{ls}) é aproximadamente igual à velocidade líquida de circulação (v_{lc}).

Após uma determinada velocidade gasosa nenhum regime permanente pode ser obtido para uma coluna de bolhas uniformemente aerada. Após muito tempo, observa-se uma tendência de formação de um fluxo ascendente no centro da coluna com alta retenção gasosa e um fluxo descendente nas paredes, com uma retenção gasosa local baixa.

Geralmente, o fluxo multifásico é modelado por sistemas de equações de Navier-Stokes numa representação euleriana, enquanto o movimento gasoso é modelado por equações separadas da continuidade. O sistema de equações de Navier-Stokes pode ser aplicado também para fluxos bifásicos se a proporção dos elementos da fase dispersa for pequena e se não influenciar demasiadamente na densidade do fluido. O momento das partículas ou bolhas poderão ser desprezados, e a densidade e viscosidade ser tornarão efetivas, o que resultaria na equação 2.4 e equação 2.5.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho v) = 0 \quad (\text{Eq. 2.4})$$

$$\frac{\partial \rho v}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho v v) = -\nabla p + \nabla \cdot T + \rho g \quad (\text{Eq. 2.5})$$

Nestas equações, v é o vetor velocidade, g é aceleração gravitacional, p a pressão e T é o Tensor tensão que engloba a viscosidade efetiva.

Existem vários métodos para resolução de sistemas bifásicos dinâmicos. O que diferencia um método de outro é a forma como estes são abordados. Entre as metodologias mais comuns aplicadas, a metodologia Euler-Euler e Euler-Lagrange, se destacam nas simulações multidimensionais.

A metodologia Euler-Lagrange, é usada frente a metodologia Euler-Euler. O emprego destes modelos dependerão de como a fase dispersa é tratada.

No modelo Euler-Lagrange, fase líquida-gasosa é considerada pseudo-homogênea é considerada. Isto significa que o fluxo de bolhas se movendo na fase contínua, deve ser obtido através da resolução da respectiva equação de movimento.

No modelo de Euler-Lagrange, cada bolha é modelada no seu percurso na coluna. O modelo hidrodinâmico aceita a incorporação de transferência de massa com ou sem reação química, coalescência e redispersão. Já no Euler-Euler, o modelo global é mais simplificado já que os cálculos e demanda computacional dependerão unicamente dos elementos de volume considerado e não no número de bolhas.

O modelo Euler-Euler trata a fase dispersa como se fosse pseudo contínua, assumindo que cada elemento de volume finito do domínio espacial, contivesse uma fração de retenção (ϵ) na fase contínua e outra na fase dispersa. As equações de movimento são derivadas das equações de massa e momento para um elemento de volume. As formulações Euler-Euler consistem da equação de Navier-Stokes para fase gasosa e líquida, em que assume-se :

- Condições isotérmicas.
- Densidade líquida constante.
- Densidade gasosa descrita pela lei do gás ideal.
- Nenhuma consideração de turbulência.
- Bolhas pertencentes a uma única classe que retém massa enquanto estiverem no domínio bifásico. Isto significa que, coalescência e redispersão são negligenciadas. As interações entre as duas fases serão descritas por uma força interativa.

As equações da continuidade e de Navier-Stokes aplicadas à metodologia Euler-Euler, englobaria a retenção gasosa e as forças iterativas interfaciais. Assim nenhuma transferência de massa é considerada entre o gás e o líquido. E as equações fundamentais 2.4 e 2.5 tornar-se-ão as Eq. 2.6 e 2.7 .

$$\frac{\partial(\epsilon_k \rho_k)}{\partial t} + \nabla \cdot (\epsilon_k \rho_k \vec{v}_k) = 0 \quad (\text{Eq. 2.6})$$

$$\frac{\partial(\epsilon_k \rho_k \vec{v}_k)}{\partial t} + \nabla \cdot (\epsilon_k \rho_k \vec{v}_k \vec{v}_k) = \epsilon_k \nabla \cdot \vec{\tau}_k - \epsilon_k \nabla p + \epsilon_k \rho_k \vec{g} \pm \vec{F}_k \quad (\text{Eq. 2.7})$$

em que $k = l, g$

A única diferença entre as duas fases é que o sinal do termo força F , é positivo para a fase gasosa e negativa para o líquido. O primeiro termo no lado direito da última equação considera a transferência de momento molecular no fluxo laminar, em que:

$$\bar{\tau}_k = \mu_k (\nabla \bar{v}_k + \nabla \bar{v}'_k) \quad (\text{Eq.2.8})$$

Se bolhas de massas diferentes tiverem que ser consideradas, então as equações da continuidade e balanço de momento são necessárias para cada classe de bolhas. A modelagem do sistema multifásico gás-líquido pode ter como fundamento o equilíbrio de forças entre as fases contínuas e dispersas.

Uma fase estática está sob influência unicamente da pressão e força gravitacional. O fluxo ao redor da bolha gera variação na tensão cisalhante e na pressão. A resultante destas variações não são consideradas com detalhes no modelo de fluxo, mas abordadas com relativa precisão em parâmetros empíricos.

As forças de interação interfacial (força de arraste, força de massa agregada, força de Basset, força Magnus e a força de soerguimento de Saffman) são os componentes da Força F_k , que estão incluídos na equação 2.7. Usualmente, três contribuições diferenciadas para força interfacial são consideradas: a força de atrito, a força de massa agregada e a força Magnus.

Força de atrito: Uma bolha que se locomove através do líquido, terá sua velocidade reduzida pela força de atrito. Essa força é a predominante, e muitas vezes a única considerada. A força de atrito é particularmente usada em situações que o fluxo é uniforme e em condições sem aceleração. Se as bolhas são aceleradas, então o líquido ao redor será acelerado também. Pontos típicos que ocorrem mudança no fluxo, estão na entrada e saída do riser de um ALR.

Força de Massa Agregada (Added Mass Force): A força de atrito é aplicada para regime de fluxo homogêneo sem aceleração. Mas se as bolhas são aceleradas relativamente ao líquido, então parte do líquido será acelerado também. Como mencionado, as regiões de um ALR que sofrem aceleração, e estão sob influência desta força em particular, se encontram na parte superior e inferior do reator.

Força Magnus : Se uma partícula de superfície rígida se move num fluxo não uniforme, então poderá induzir uma rotação que causa uma força adicional de interação perpendicular a direção do fluxo. Essa força é denominada de força Magnus. Esta força é a responsável pelo acúmulo de bolhas no meio da coluna.

Normalmente, o balanço de momento para fase gasosa é considerado apenas no seu estado quase permanente. Devido a sua densidade pequena, a força de inércia das bolhas de gás pode ser ignorada em relação aos outros termos no balanço de momento à baixa e média pressão. A força de massa agregada, também é desprezada, já que se assume que a velocidade “slip” entre as fases é constante. Isto não é normalmente verdadeiro para regiões onde o fluxo líquido muda a sua direção como vórtices e no final e início do ALR. A força Magnus também é ignorada, já que a sua importância para bolhas que não tem uma superfície rígida não está clara.

Se a força de atrito, força Magnus e a força de massa agregada forem desprezadas, o balanço do gás se transforma numa relação bem conhecida.

$$v_g = v_l + v_{slip} \quad (\text{Eq.2.9})$$

onde a velocidade interfacial ou “slip” entre as duas fases é assumida constante, ou calculada do gradiente de pressão com um coeficiente de atrito.

2.3) - *Considerações Preliminares sobre a Transferência de Massa em Sistemas Multifásicos.*

O estudo de transferência de massa em reatores “air-lift” e colunas de bolhas, é fundamentado para múltiplas fases. O fluxo de massa que migra de uma fase para outra pode ser calculado a partir das resolução das equações de Fick para determinada condição. O fluxo molar ou mássico depende do coeficiente de difusão e da espessura do filme interfacial entre as bolhas e a fase líquida. No entanto, é impraticável a medição da espessura do filme, que muda regularmente conforme uma série de parâmetros. Se a espessura não pode ser medida, então o fluxo não pode ser calculado, ao menos que suposições venham a ser feitas. Assim, a Teoria do Filme de *Whitman* não é diretamente usada nos modelos matemáticos. Uma modificação prática e mensurável, consiste em agregar o conceito de resistência à transferência de massa, que pode ser definido pelo Coeficiente de Transferência Global de Massa (K_l). Esse coeficiente está correlacionado com o coeficiente de transferência da fase gasosa (k_g) e da fase líquida (k_l). Ambos relacionam-se com a resistência à transferência que o filme exerce nas respectivas fases. É óbvio que tal resistência depende da espessura do filme, porém isso é uma condição intrínseca do coeficiente, conforme a equação:

$$K_l = D / \delta \quad (\text{Eq. 2.10})$$

onde, D é a difusão do soluto no dispersante (O_2 (Ar)-Água) e δ a espessura do filme.

Nas medições experimentais mais comuns, o coeficiente de transferência é obtido do coeficiente angular no perfil de transferência. De fato, o parâmetro mais significativo é o coeficiente angular, e não somente o coeficiente de transferência de massa. O coeficiente angular equivale ao $K_L a$, em que o “a” é a área interfacial do sistema. Por fim, o $K_L a$ é a taxa de transferência de massa, que fará parte das equações modelos.

Através da primeira lei de Fick, determina-se a equação fundamental de fluxo molecular para películas, ou equação fundamental da *Teoria do Filme*:

$$j = \frac{D}{\delta} (C^f - C^i) \quad (\text{Eq.2.11})$$

O termo $(C^f - C^i)$ é o gradiente de concentração gerado pela resistividade das duas películas existente na face interna e face externa da bolha. A resistência na face externa é definida pela (Eq. 2.12). Esse gradiente define a velocidade de transferência e é equivalente a variação da pressão parcial de equilíbrio (p_{eq}) e a pressão no lado externo da interface (Eq. 2.13), como representado na Fig. 2.5:

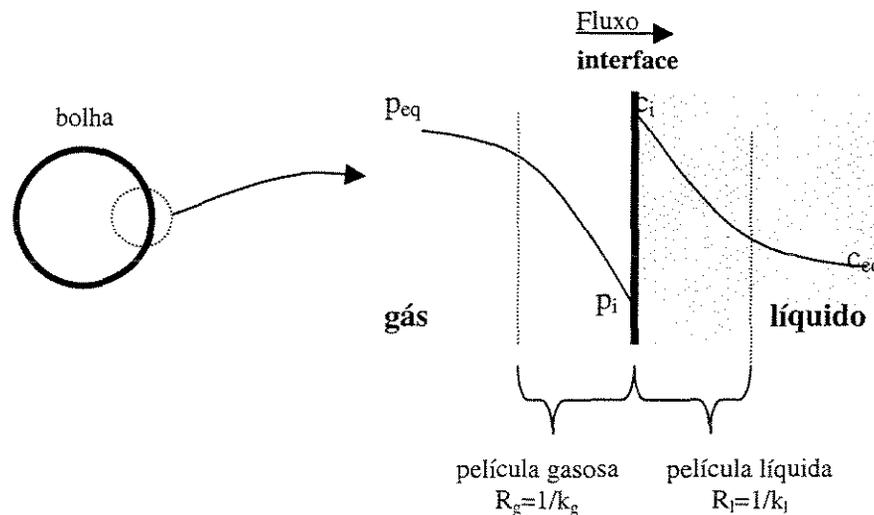


Fig. 2.5 - Representação da interface e películas resistivas.

$$j = k_l (C_i - C_{eq}) \quad (\text{Eq. 2.12})$$

$$j = k_p(p_{eq} - p_i) \quad (\text{Eq. 2.13})$$

Porém, nas equações anteriores, a concentração ou a pressão interfacial é de difícil medição e o próximo passo seria desenvolver uma equação que envolvesse a pressão e concentração de equilíbrio, que podem ser determinadas. Unindo a equação 2.14 com as equações 2.12 e 2.13 e isolando a concentração interfacial chega-se a equação 2.15:

$$p_i = Hc_i \quad (\text{Eq.2.14})$$

$$c_i = \frac{p_i}{H} = \frac{k_p p_{eq} + k_l c_{eq}}{k_p H + k_l} \quad (\text{Eq. 2.15})$$

Por sua vez, substituindo a Eq.2.15 na Eq. 2.12, determina-se o fluxo em função das variáveis p_{eq} e c_{eq} :

$$j = \frac{1}{1/k_p + H/k_l} (p_{eq} - Hc_{eq}) = \frac{\overbrace{1}^{k_l}}{1/k_l + 1/k_p H} (c^* - c_{eq}) \quad (\text{Eq.2.16})$$

sendo que, a concentração c^* , seria a concentração que estaria em equilíbrio com a pressão no interior da bolha ($c^* = p_{eq}/H$). Essa concentração equivale a concentração de saturação na fase líquida.

2.4) - Desenvolvimento das Equações Diferenciais do Modelo Dinâmico.

2.4.1) - Hidrodinâmica

Como mencionado previamente, as interações interfaciais e outros fenômenos que ocorrem no interior do reator são descritas pelas forças de interação como a força de massa agregada (*Added Mass Force*), força Magnus e principalmente a força de atrito. As duas primeiras forças interativas, além de

desprezíveis atuam num ponto específico do reator. Dessa forma os modelos apresentados envolverão unicamente a força de atrito no modelo hidrodinâmico.

Para se obter as equações que caracterizam o Modelo Determinístico Dinâmico, é necessário adaptar as equações fundamentais de momento de Navier-Stokes (Eq. 2.6) e a equação da continuidade (Eq. 2.7) a uma geometria semelhante ao “riser” do reator “air-lift”. Também, deve-se incorporar nas equações propostas os conceitos aplicados aos sistema multifásico.

As equações 2.6 e 2.7 podem ser generalizadas tanto para conservação de massa quanto para a conservação de momento (Hillmer 1993). Assim, a equação 2.6 tornar-se-á bidirecional e tri-dimensional para um reator de geometria cilíndrica em que os efeitos radiais devam ser considerados e cujo regime seja transiente:

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho\Phi)_k}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z}(\rho\varepsilon v\Phi)_k - \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(\rho\varepsilon r\Phi)_k + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\mu_{ef}}{\sigma}\varepsilon\frac{\partial\Phi}{\partial z}\right)_k + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\mu_{ef}}{\sigma}\varepsilon\frac{\partial\Phi}{\partial z}\right)_k + S_\Phi \quad (\text{Eq.2.17})$$

Tab. 2.1 - Equações modelos

| Conservação | Φ | σ | S_Φ | Eq. |
|----------------|--------|----------|---|------|
| Massa Total | 1 | ∞ | $= +\frac{\partial}{\partial z}(\mu_{ef}\frac{\partial\varepsilon}{\partial z})_k + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(r\mu_{ef}\frac{\partial\varepsilon}{\partial z})_k \pm M_k$ | 2.18 |
| Momento axial | v | 1 | $= \varepsilon_k\left(\frac{\partial P}{\partial z}\right)_k - (\rho_k - \rho_{sus})g + \frac{\partial}{\partial z}\left(\mu_{ef}\varepsilon\frac{\partial v}{\partial z}\right)_k + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\mu_{ef}\varepsilon\frac{\partial v}{\partial z}\right)_k$ $\pm \varepsilon_g\varepsilon_{sus}(v_g - v_{sus})C_w \pm M_k v_k$ | 2.19 |
| Momento radial | v_r | 1 | $= \varepsilon_k\left(\frac{\partial P}{\partial r}\right)_k + \frac{\partial}{\partial r}\left(r\mu_{ef}\varepsilon\frac{\partial v_r}{\partial r}\right)_k + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\mu_{ef}\varepsilon\frac{\partial v_r}{\partial r}\right)_k - 2\mu_{ef}\varepsilon\frac{v_k}{r^2}$ $\pm \varepsilon_g\varepsilon_{sus}(v_g - v_{sus})C_w \pm \varepsilon_g\varepsilon_{sus}C_M\rho_{sus}(v_{r,sus} - v_{r,g})\frac{\partial v_{r,sus}}{\partial r}C_w \pm M_k v_k$ | 2.20 |
| Componente | C | 1 | $R_j\rho$ | 2.21 |

As equações modelos na tabela 2.1 poderiam ser resolvidas com algoritmos para CFD (Computer Fluid Dynamics). No entanto, está ferramenta não tem um

preço acessível no mercado, além de não permitirem o acesso ao código fonte, de forma que os códigos computacionais semelhantes ao CFD podem ser desenvolvidos por modelagem, semelhante ao desenvolvimento proposto nesta tese.

O caso estudo desta tese envolve testes realizados em um reator “air-lift” piloto. Analisando a geometria do reator, verifica-se que o eixo axial denominado pela variável z nas equações é muito mais expressivo que a coordenada radial. Isso possibilita a eliminação de todos os elementos que envolvam a coordenada radial sem que os resultados sejam alterados significativamente. Assim, a equação 2.17 assume uma forma mais simples:

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho\phi)_k}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z}(\rho\varepsilon\nu\Phi)_k + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\mu_{ef}}{\sigma}\varepsilon\frac{\partial\Phi}{\partial z}\right)_k + S_\phi \quad (\text{Eq. 2.22})$$

Para descrever a hidrodinâmica do reator, os perfis da retenção e da velocidade gasosa devem ser determinados. As equações específicas que descrevem a hidrodinâmica são determinadas associando a Eq. 2.22 com as equações do termo fonte na tabela. (S ϕ)

A EDP para retenção gasosa pode ser obtida através da associação da equação 2.18 com o termo fonte para Conservação de Massa Total:

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho(I))_k}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z}(\rho\varepsilon\nu(I))_k + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\mu_{ef}}{\infty}\varepsilon\frac{\partial(I)}{\partial z}\right)_k + \frac{\partial}{\partial z}\left(\mu_{ef}\frac{\partial\varepsilon}{\partial z}\right)_k \pm M_k \quad (\text{Eq. 2.23})$$

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho)_k}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z}(\rho\varepsilon\nu)_k + 0 + \frac{\partial}{\partial z}\left(\mu_{ef}\frac{\partial\varepsilon}{\partial z}\right)_k \pm M_k \quad (\text{Eq. 2.24})$$

Para um intervalo de discretização ínfimo, a densidade será constante para qualquer fase. Alguns autores afirmam que a variação espacial também é nula ($\partial\varepsilon/\partial z = 0$) para este mesmo intervalo, no entanto, essa simplificação é de caráter

duvidoso e por isso não foi adotada. Expandido a equação 2.24 e adotando as considerações comentadas acima, ter-se-á:

$$\rho \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} \right)_k = -\rho \left[v \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right)_k + \varepsilon \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_k \right] + \mu_{ef} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_k \pm M_k \quad (\text{Eq. 2.25})$$

$$\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} \right)_k = - \left[v \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right)_k + \varepsilon \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_k \right] + \frac{\mu_{ef}}{\rho} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_k \pm \frac{M_k}{\rho} \quad (\text{Eq. 2.26})$$

A equação 2.19 é umas das equações que foi usada para se determinar os perfis axiais dinâmicos. Os resultados serão mostrados nos capítulos posteriores. O termo M_k envolve a transferência de massa interfacial multifásica do sistema, o sinal positivo é adotado para a fase líquida e negativo para a fase gasosa.

A determinação da equação do modelo para velocidade gasosa pode ser determinado associando a Equação 2.24 com o termo fonte para Conservação do Momento Axial:

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\varepsilon \rho v)}{\partial t} = & -\frac{\partial}{\partial z}(\rho \varepsilon v v)_k + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\mu_{ef}}{I} \varepsilon \frac{\partial v}{\partial z} \right)_k + \varepsilon_k \left(\left(\frac{\partial P}{\partial z} \right)_k - (\rho_k - \rho_{sus})g \right) + \\ & \frac{\partial}{\partial z} \left(\mu_{ef} \varepsilon \frac{\partial v}{\partial z} \right)_k + \frac{I}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \mu_{ef} \varepsilon \frac{\partial v}{\partial z} \right)_k \pm \varepsilon_g \varepsilon_{sus} (v_g - v_{sus}) C_w \pm M_k v_k \end{aligned} \quad (\text{Eq. 2.27})$$

Adotando as mesmas considerações, em relação a densidade e a variação espacial, adotadas na determinação da Equação 2.24 e expandindo os termos diferenciais, ter-se-á:

$$\begin{aligned} \rho \left(\varepsilon \frac{\partial v}{\partial t} + v \frac{\partial \varepsilon}{\partial t} \right) = & -\rho \left(v^2 \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} + 2v\varepsilon \frac{\partial v}{\partial z} \right)_k + 2\mu_{ef} \varepsilon \left(\frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right)_k + 2\mu_{ef} \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_k \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right)_k + \\ & \left(\varepsilon_k \left(\frac{\partial P}{\partial z} \right)_k - (\rho_k - \rho_{sus})g \right) \pm \varepsilon_g \varepsilon_{sus} (v_g - v_{sus}) C_w \pm M_k v_k \end{aligned} \quad (\text{Eq. 2.28})$$

Associando a Equação 2.26 à equação 2.28 e cancelando alguns termos, obtêm-se:

$$\rho \varepsilon \left(\frac{\partial v}{\partial t} \right)_k + \left(-\rho v \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} - v \rho \varepsilon \frac{\partial v}{\partial z} \right)_k + \mu_{ef} v \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_k + M_k v_k = -\rho v^2 \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right)_k - 2 \rho v \varepsilon \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_k +$$

$$+ 2 \mu_{ef} \varepsilon \left(\frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right)_k + 2 \mu_{ef} \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_k \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right)_k + \left(\varepsilon_k \left(\frac{\partial P}{\partial z} \right)_k - (\rho_k - \rho_{sus}) g \right) \pm$$

$$\pm \varepsilon_g \varepsilon_{sus} (v_g - v_{sus}) C_w \pm M_k v_k \quad (\text{Eq.2.29})$$

$$\rho \varepsilon \left(\frac{\partial v}{\partial t} \right)_k = -\mu_{ef} v \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_k - \rho v \varepsilon \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_k + 2 \mu_{ef} \varepsilon \left(\frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right)_k + 2 \mu_{ef} \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_k \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right)_k +$$

$$+ \left(\varepsilon_k \left(\frac{\partial P}{\partial z} \right)_k - (\rho_k - \rho_{sus}) g \right) \pm \varepsilon_g \varepsilon_{sus} (v_g - v_{sus}) C_w \quad (\text{Eq.2.30})$$

Até este ponto percebe-se que a velocidade gasosa não depende da transferência de massa, o que é fisicamente coerente.

Finalmente, a Eq. 2.30 ajustada transforma-se na segunda equação diferencial parcial que descreve a hidrodinâmica do “riser” do reator “air-lift”.

$$\left(\frac{\partial v}{\partial t} \right)_k = -\frac{\mu_{ef}}{\rho \varepsilon} v \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_k - v \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_k + \frac{2 \mu_{ef}}{\rho} \left(\frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right)_k + 2 \frac{\mu_{ef}}{\rho \varepsilon} \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)_k \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right)_k +$$

$$+ \left(\frac{1}{\rho} \left(\frac{\partial P}{\partial z} \right)_k - (\rho_k - \rho_{sus}) \frac{g}{\rho} \right) \pm \frac{\varepsilon_{sus} (v_g - v_{sus}) C_w}{\rho} \quad (\text{Eq.2.31})$$

2.4.2) - Transferência de Massa

O caso estudo industrial envolve a transferência de massa do soluto oxigênio para a água. A EDP que caracteriza a transferência de massa em função da concentração deste soluto na fase líquida e na fase gasosa pode ser obtida, também, associando a equação genérica 2.21 com a equação 2.22, no entanto, o termo fonte será zero, porque nenhuma reação é envolvida. Desta vez, considerou-se uma variação de densidade no eixo axial, aumentando o grau de complexidade

do desenvolvimento da EDP, mas eliminando qualquer dúvida que poderia haver em se considerar a densidade constante de uma suspensão bifásica. Dessa forma:

$$\frac{\partial(\varepsilon\rho(C))_k}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial z}(\rho\varepsilon v(C))_k + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\mu_{ef}}{\infty}\varepsilon\frac{\partial(C)}{\partial z}\right)_k + 0 \quad (\text{Eq. 2.32})$$

$$\begin{aligned} \varepsilon\rho\frac{\partial(C)_k}{\partial t} + C\rho\frac{\partial(\varepsilon)_k}{\partial t} + \varepsilon C\frac{\partial(\rho)_k}{\partial t} = & -\varepsilon v C\frac{\partial}{\partial z}(\rho)_k - \rho v C\frac{\partial}{\partial z}(\varepsilon)_k - \rho v \varepsilon\frac{\partial}{\partial z}(C)_k - \rho\varepsilon C\frac{\partial}{\partial z}(v)_k \\ & + \mu_{ef}l\frac{\partial(\varepsilon)}{\partial z}\frac{\partial(C)}{\partial z} + \varepsilon\frac{\partial^2(C)}{\partial z^2}l_k \end{aligned} \quad (\text{Eq. 2.33})$$

Novamente, da equação para conservação de massa (Eq. 2.18):

$$\varepsilon\left(\frac{\partial\rho}{\partial t}\right)_k = -\rho\frac{\partial\varepsilon}{\partial t} - \left(\varepsilon v\frac{\partial\rho}{\partial z} + \rho v\frac{\partial\varepsilon}{\partial z} + \rho\varepsilon\frac{\partial v}{\partial t}\right)_k + \mu\frac{\partial^2\varepsilon}{\partial z^2} - M_k \quad (\text{Eq. 2.34})$$

Associando 2.33 com 2.34:

$$\begin{aligned} \varepsilon\rho\frac{\partial(C)_k}{\partial t} + C\rho\frac{\partial(\varepsilon)_k}{\partial t} - C\rho\frac{\partial\varepsilon}{\partial t} - \left(C\varepsilon v\frac{\partial\rho}{\partial z} + C\rho v\frac{\partial\varepsilon}{\partial z} + C\rho\varepsilon\frac{\partial v}{\partial t}\right)_k + C\mu\frac{\partial^2\varepsilon}{\partial z^2} - M_k C = \\ -\varepsilon v C\frac{\partial}{\partial z}(\rho)_k - \rho v C\frac{\partial}{\partial z}(\varepsilon)_k - \rho v \varepsilon\frac{\partial}{\partial z}(C)_k - \rho\varepsilon C\frac{\partial}{\partial z}(v)_k \\ + \mu_{ef}l\frac{\partial(\varepsilon)}{\partial z}\frac{\partial(C)}{\partial z} + \varepsilon\frac{\partial^2(C)}{\partial z^2}l_k \end{aligned} \quad (\text{Eq.2.35})$$

$$\varepsilon\rho\frac{\partial(C)_k}{\partial t} + C\mu\frac{\partial^2\varepsilon}{\partial z^2} - M_k C = -\rho v \varepsilon\frac{\partial}{\partial z}(C)_k + \mu_{ef}l\frac{\partial(\varepsilon)}{\partial z}\frac{\partial(C)}{\partial z} + \varepsilon\frac{\partial^2(C)}{\partial z^2}l_k \quad (\text{Eq.2.36})$$

A equação acima refere-se a concentração de oxigênio na fase líquida. Como se pode observar, a variação da densidade no eixo axial do reator não influencia na transferência de massa e portanto o mesmo resultado seria obtido se fosse considerado a densidade constante.

$$\frac{\partial(C)_L}{\partial t} = -v\frac{\partial}{\partial z}(C)_L + \frac{\mu_{ef}}{\varepsilon\rho}l\frac{\partial(\varepsilon)}{\partial z}\frac{\partial(C)}{\partial z} + \varepsilon\frac{\partial^2(C)}{\partial z^2}l_L - \frac{C\mu}{\varepsilon\rho}\left(\frac{\partial^2\varepsilon}{\partial z^2}\right)_L + \frac{M_L C}{\varepsilon\rho} \quad (\text{Eq.2.37})$$

O termo μ/ρ não tem sentido físico para transferência de massa, já que representa a viscosidade cinemática, que quantifica a resistência ao escoamento. Porém este termo pode ser substituído pelo coeficiente de dispersão que tem o mesmo módulo e caracteriza a resistência a transferência de massa.

$$\frac{\partial(C)_L}{\partial t} = -v \frac{\partial(C)_L}{\partial z} + \frac{D}{\varepsilon} \left[\frac{\partial(\varepsilon)}{\partial z} \frac{\partial(C)}{\partial z} + \varepsilon \frac{\partial^2(C)}{\partial z^2} \right]_L - \frac{CD}{\varepsilon} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_L + \frac{M_L C}{\varepsilon \rho} \quad (\text{Eq.2.38})$$

Porém, o modelo baseado nas correlações empíricas, que será comentado posteriormente, determina a razão molar de oxigênio da fase gasosa. Por este motivo desenvolveu-se mais uma EDP em função da fração molar de oxigênio na fase gasosa, que por sua vez pode ser convertido facilmente para razão molar.

Através das equações dos gases ideais e a lei de Dalton da pressão parcial, obtêm-se uma equação tradicional que caracteriza a concentração de um gás na fase gasosa.

$$C = y_i P / RT \quad (\text{Eq. 2.39})$$

A variável concentração, se desdobra em duas outras: pressão e fração molar. A pressão não pode ser considerada constante devido a altura hidrostática do reator, e por influenciar diretamente a concentração.

Desenvolvendo a equação de transferência de massa a partir das equações 2.38 e 2.39, para a fase gasosa obtêm-se:

$$\frac{\partial(yP)_g}{RT \partial t} = -\frac{v}{RT} \frac{\partial(yP)_g}{\partial z} + \frac{D}{RT\varepsilon} \left[\frac{\partial(\varepsilon)}{\partial z} \frac{\partial(yP)}{\partial z} + \varepsilon \frac{\partial^2(yP)}{\partial z^2} \right]_g - \frac{yPD}{RT\varepsilon} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_g + \frac{M_g yP}{RT\varepsilon \rho} \quad (\text{Eq.2.40})$$

Expandindo os termos com derivada simples e invertendo o sinal do termo M_k , que para fase gasosa é negativo:

$$\frac{y\partial(P)_g}{\partial t} + \frac{P\partial(y)_g}{\partial t} = -vy\frac{\partial}{\partial z}(P)_g - vP\frac{\partial}{\partial z}(y)_g + \frac{D}{\varepsilon} \left[\frac{\partial(\varepsilon)}{\partial z} \left(y\frac{\partial P}{\partial z} + P\frac{\partial y}{\partial z} \right) \right]_g + \quad (\text{Eq.2.41})$$

$$D \left[y\frac{\partial(P)}{\partial z} + P\frac{\partial(y)}{\partial z} \right]_g - \frac{yPD}{\varepsilon} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_g - \frac{M_g y P}{\varepsilon \rho}$$

E em seguida expandindo os termos com derivada dupla e dividindo por P:

$$\frac{y\partial(P)_g}{P\partial t} + \frac{\partial(y)_g}{\partial t} = -\frac{vy}{P}\frac{\partial}{\partial z}(P)_g - v\frac{\partial}{\partial z}(y)_g + \frac{D}{P\varepsilon} \left[\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \left(y\frac{\partial P}{\partial z} + P\frac{\partial y}{\partial z} \right) \right]_g + \quad (\text{Eq.2.42})$$

$$\frac{D}{P} \left[\frac{\partial y}{\partial z} \frac{\partial P}{\partial z} + y\frac{\partial^2 P}{\partial z^2} + \frac{\partial P}{\partial z} \frac{\partial y}{\partial z} + P\frac{\partial^2 y}{\partial z^2} \right]_g - \frac{yD}{\varepsilon} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_g - \frac{M_g y}{\varepsilon \rho}$$

A variação da pressão é desprezível com o tempo ($dP/dt = 0$), enquanto que a variação manométrica ou a perda de carga (dP/dz) é constante no eixo axial, e portanto a derivada da perda de carga será nula ($d^2P/dz^2 = 0$).

$$\frac{\partial(y)_g}{\partial t} = -\frac{vy}{P}\frac{\partial}{\partial z}(P)_g - v\frac{\partial}{\partial z}(y)_g + \frac{D}{P\varepsilon} \left[\frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \left(y\frac{\partial P}{\partial z} + P\frac{\partial y}{\partial z} \right) \right]_g + \quad (\text{Eq.2.43})$$

$$\frac{D}{P} \left[\frac{\partial y}{\partial z} \frac{\partial P}{\partial z} + \frac{\partial P}{\partial z} \frac{\partial y}{\partial z} + P\frac{\partial^2 y}{\partial z^2} \right]_g - \frac{yD}{\varepsilon} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_g - \frac{M_g y}{\varepsilon \rho}$$

E por fim rearranjando:

$$\frac{\partial(y)_g}{\partial t} = \left[-v + D \left(\frac{1}{\varepsilon} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} + \frac{2}{P} \frac{\partial P}{\partial z} \right) \right] \frac{\partial}{\partial z}(y)_g + D \frac{\partial^2 y}{\partial z^2} + \left(-v + \frac{D}{\varepsilon} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right) \frac{y}{P} \frac{\partial P}{\partial z} - \frac{yD}{\varepsilon} \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial z^2} \right)_g - \frac{M_g y}{\varepsilon \rho} \quad (\text{Eq.2.44})$$

As equações 2.26, 2.31 e 2.44 foram usadas para calcular os perfis de retenção, velocidade gasosa e a fração molar do soluto oxigênio respectivamente.

As equações foram discretizadas e todos os termos da equação foram determinados conforme a posição no eixo axial e no tempo.

2.4.3) - Termo de Transferência de Massa (M_k)

O termo de transferência de massa incluído nas EDPs 2.26 e 2.44, indicam a taxa de soluto que é transferido da fase gasosa para líquido mediante a uma resistência interfacial.

O termo de transferência de massa $(MC/\rho)_k$ é representado pelo fluxo normal determinado na equação 2.11:

$$(MC/\rho)_k = \sum J_i a_i \quad (i = \text{componente}) \quad (\text{Eq. 2.45})$$

Portanto para a fase líquida o termo será:

$$(MC/\rho)_L = K_L a (C^* - C_{eq}) \quad (\text{Eq. 2.46})$$

O coeficiente global da fase líquida é aproximadamente equivalente ao coeficiente de transferência da fase líquida k_l . Substituí-los, evita associar o termo k_p , que é de difícil determinação.

No caso estudo proposto, supõe-se que a concentração de saturação não seja nunca atingida ($c^* = 0$) e que a diferença de potencial químico seja o máximo, pelo simples fato de haver uma renovação da fase líquida muito antes de atingir o equilíbrio; pelo fato de haver um volume considerável de líquido em relação ao gás, ou pelo fato de haver uma reação química vigorosa que consuma o oxigênio muito antes de atingir o equilíbrio. Para a situação em especial, a primeira opção foi adotada, visto que não se considerou nenhuma reação no sistema.

Para a fase gasosa, a equação 2.46 não pode ser usada, já que é específica para a fase líquida. Para transformá-la, deve-se acompanhar o desenvolvimento da equação 2.44. Se C não fosse transformado em fração molar deste o início, o termo

$(MC/\rho)_k$ teria que ter sido multiplicado por RT e dividido por P para chegar a equação 2.44. Assim sendo:

$$(My/\rho)_g = K_L a (0 - C_{eq}) RT/P \quad (\text{Eq.2.46})$$

Por sua vez, a concentração de oxigênio no âmago da fase líquida, estaria em equilíbrio com uma pressão parcial de equilíbrio (p_i^*).

$$(My/\rho)_g = K_L a (p_i^*/H) RT/P \quad (\text{Eq.2.47})$$

E por fim:

$$(My/\rho)_g = (K_L a/H) (y_i) RT \quad (\text{Eq.2.48})$$

2.5) - *Redes Neurais*

2.5.1) - *Considerações Preliminares*

A rede neural ou o connexionismo é um ramo da ciência cognitiva, que se caracteriza por possuir uma grande capacidade de armazenar informações relevantes, pelo potencial analógico e reconhecimento de objetos e padrões. O funcionamento das redes neurais não é suportada por modelos lógicos os quais não dependem de nenhum conhecimento fenomenológico interna do processo, de modo que tal abordagem se torna interessante quando as regras de um processo não são determinísticas ou são muito complexos como problemas que envolvem variáveis não-lineares. Tais problemas podem ser resolvidas com redes neurais, pois os neurônios artificiais apresentam respostas não-lineares e são altamente conectados, podendo mapear com precisão uma relação estímulo-resposta. Redes neurais apresentam maior robustez frente a problemas com variáveis que envolvem ruídos e redundância de dados. Resumindo, redes neurais são técnicas computacionais relacionadas a inteligência artificial, que possui um modelo

matemático inspirado na estrutura neuronal de organismos inteligentes. *Chitra (1992)* fornece uma descrição geral sobre redes neurais, tendo em vista suas características principais e sua aplicação.

Outra facção da ciência cognitiva é o sistema especialista, que se suporta em algoritmos matemático, lógicos e que geram um único conjunto de resposta pelo truncamento de modelos matemáticos.

A aplicação de redes neurais artificiais possuem altas taxas computacionais, robustez e uma grande tolerância a falhas devido à representação distribuída. As redes apresentam habilidades de se adaptarem e continuarem a aprendizagem para melhorar o desempenho.

As arquiteturas neurais são tipicamente organizadas em camadas, com unidades que podem estar conectadas às unidades da camada posterior. (Fig. 2.6)

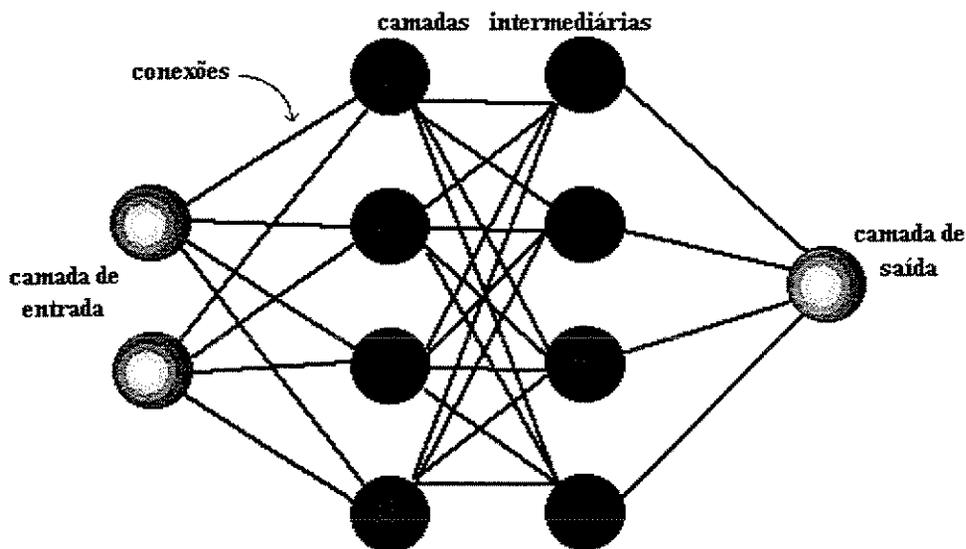


Fig. 2.6 – Organização das camadas

Usualmente as camadas são classificadas em três grupos:

- **Camada de Entrada:** onde os padrões são apresentados à rede; seriam os dados iniciais que interferem de forma mais relevante no resultado.

- **Camadas Intermediárias:** São constituídas de neurônios. Uma quantidade maior de neurônios diminui consideravelmente o erro de treinamento, se a rede for treinada até um número adequado de iterações. Porém, essa condição não é linear e o erro aumenta novamente tornando a rede sobre-parametrizada (“over fitting”). Associado a isto, o tempo de resposta aumenta com um número maior de neurônios. Nessa camada é feita a maior parte do processamento através das conexões ponderadas. Cada conexão representa um peso que é gerado no treinamento. Outras sub-camadas podem coexistir. O número de camadas internas deve ser suficiente para atingir a precisão desejada. Se muitas são usadas a rede se torna sobreajustada e perde a capacidade de generalização quando forem usadas novas entradas.
- **Camada de Saída:** Onde o resultado final é concluído e apresentado.

2.5.2) - Treinamento

Uma rede neural deve ser “treinada” com o intuito de adquirir um número suficiente de casos representativos. A resposta será sempre o resultado baseado nos padrões armazenados. O treinamento é a propriedade mais importante da rede neural, que define a forma de aprender e de melhorar o seu próprio desempenho.

A retropropagação é o método mais usado em Engenharia Química para treinamento. De forma sucinta, a rede opera em uma seqüência de duas etapas. Na primeira etapa um padrão é apresentado à camada de entrada da rede e um resultado será gerado na camada de saída. No segundo passo, a saída obtida será comparada à saída desejada para esse padrão particular. Se não estiver correta, o erro é calculado. O erro é retropropagado até a camada de entrada e os pesos das conexões das unidades de entrada são modificados conforme esse erro é retropropagado.

$$z_i^{(k)} = \sum_{j=1}^{n=k-1} w_{ij}^{(k)} y_j^{(k-1)} + \theta_i^{(k)} \quad (\text{Eq. 2.49})$$

$$y_i^{(k)} = f(z_i^{(k)}) \quad (\text{Eq. 2.50})$$

Nestas equações, $w_{ij}(k)$ é o peso de conexão entre os nós, $y_j^{(k-1)}$ é a saída do nó j da camada anterior, $\theta_i^{(k)}$ é o *bias* e $f()$ é a função de ativação do nó.

Funções de ativação de nós típicas são os: “Hard Limiter”, o “Threshold Logic” e o “Sigmoid” (Fig. 2.7).

Geralmente são expressos por uma função semelhante a gaussiana, ou com funções exponenciais (Eq. 2.51) e tangenciais:

$$f(z) = \frac{1}{1 + \exp(-z)} \quad (\text{Eq. 2.51})$$

A relação genérica entre a entrada e a saída de um nó genérico, o nó i da camada k ($y_i^{(k)}$) é dada por:

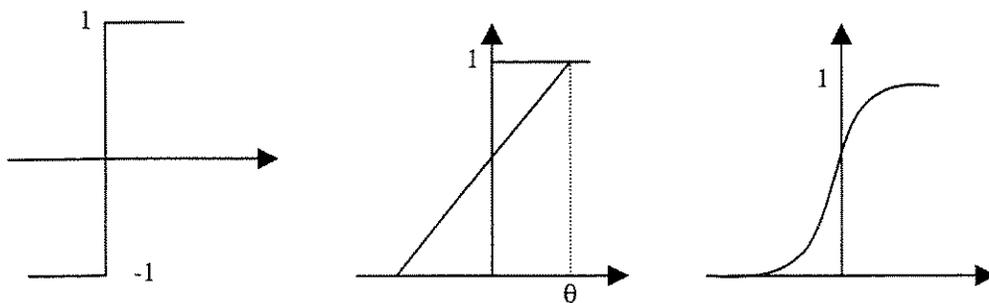


Fig. 2.7 - Funções de ativação de nó: Hard Limiter (esquerda), Threshold Logic (meio) e Sigmoid .

Após ter sido definido a função de ativação, a rede é treinada variando o número de iterações para um número de neurônios. O número de iterações adequado irá gerar estabilidade e precisão no valor do erro. Em seguida, por tentativa e erro, avalia-se o número de neurônios para que se tenha um menor **erro de treinamento** para o número de iterações determinado.

Nesta primeira etapa, vários conjuntos de pesos devem ser determinados. Cada um dos conjuntos deve ser gerado para um número diferente de neurônios. Numa segunda etapa, esses conjuntos de pesos devem ser validados com dados de entradas que não fizeram parte do treinamento. Por fim, para cada um dos conjuntos de pesos deve se determinar qual terá menor **erro de validação**, que é o erro entre a saída real e a saída calculada. O número de neurônios que gerar menor erro será o mais adequado para ser usado no Modelo Híbrido Neural.

2.5.3) - Classificação

Os diferentes modelos neurais são caracterizados pela topologia dessas camadas, pelas características de nós e pela regra de treinamento. No geral, existem duas grandes classes de redes neurais, as “FeedForward” e as “Feedback”. Os tipos mais comuns de redes neurais pertencem ao Modo Progressivo (“FeedForward”). Nessa classe, os dados de entradas são apresentados as camadas intermediárias que geram a resposta na última camada.

Os tipos de redes neurais são diferenciados pelo algoritmo de aprendizado. Cada algoritmo tem uma seqüência lógica bem definida para solucionar um problema de aprendizado. Isso ocorre quando a rede neural atinge uma solução generalizada, representada pelo conjunto de pesos, para uma classe de problemas. Os tipos de redes neurais mais comuns estão representados na Figura 2.8.

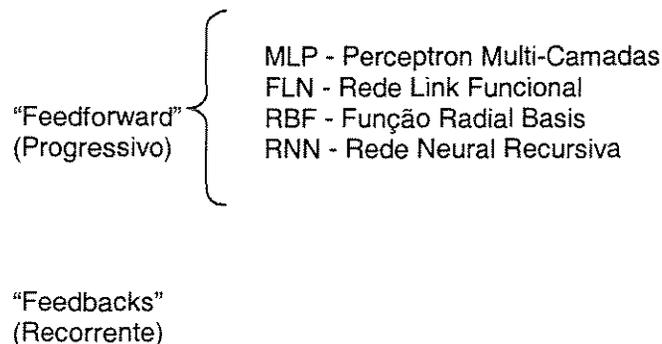


Fig. 2.8 - Classificação das Redes Neurais

As mais modernas e mais utilizadas redes neurais são as redes Perceptron Multi-Camadas (“MultiLayer Perceptron” - MLP), treinadas com o algoritmo de retropropagação. Esse tipo de rede será usada no Modelo Híbrido Neural .

Nessas redes, cada camada tem uma função específica. A camada de saída recebe os estímulos das camadas intermediárias e constrói o padrão que será a resposta. Durante o treinamento com o algoritmo de retropropagação, a rede opera em uma seqüência de dois passos. Primeiro, um padrão é representado à camada de entrada da rede. A atividade resultante flui através da rede , camada por camada, até que a resposta seja produzida pela camada de saída. No segundo passo , a saída obtida é comparada à saída desejada para esse padrão particular. Se esta não estiver correta, o erro é calculado e propagado a partir da camada de saída até a camada de entrada, e os pesos das conexões das unidades das camadas internas vão sendo modificados conforme o erro é retropropagado.

A aplicação de redes neurais está mais voltada para campos em modelos determinísticos que não são bem conhecidos. Algumas áreas de processos químicos que utilizam as redes neurais são:

1. Modelagem de processos em geral;
2. Estudo de modelos dinâmicos para controle;
3. Classificação de dados ruidosos;
4. Detecção e Diagnóstico de Falhas;
5. Detecção de Características não-lineares e
6. Previsão de Mercado.

Entre os itens descrito, o primeiro e o segundo são enfatizados neste projeto.

2.5.4) - Considerações sobre Modelos Híbridos Neurais

Os modelos híbridos neurais (MHN) consistem de uma parte determinística e uma outra parte associada a rede neural. Estes modelos tem melhores desempenho que as redes neurais do tipo caixa preta, já que as generalizações e

interpolações estão limitadas as partes incertas do problema. Além disso, menos dados são requeridos para o problema; são mais fáceis de interpretar; são desenvolvidas mais rápidos; interpolam e extrapolam melhor e podem ser usadas na forma adaptativa (esforço de reestimação menor).

A proposta de criação do MHN, envolve a substituição do modelo determinístico para transferência de massa, por uma subrotina com redes neurais do tipo MLP. Assim, o modelo descritivo da hidrodinâmica continuaria determinístico enquanto a transferência de massa seria descrito por uma rede neural do tipo MLP.

Um Modelo Híbrido Neural com estas características, teria a vantagem de dispensar o uso de correlações para sistemas multifásicos que não são bem conhecidos. Dessa forma, o MHN pode ser aplicado com sucesso num processo que envolva componentes, cujos parâmetros de transferência não são bem definidos, desde que se tenha um conjunto de dados de entrada e resultados, para que se possa treinar a rede.

O caso estudo proposto, envolve um sistema multifásico bem conhecido (Sistema ar-água), cujo objetivo é comparar exclusivamente a performance deste Modelo com o MDD e MEE e verificar aplicabilidade.

2.6) - Conclusão

Neste capítulo foram abordados os conceitos fundamentais para se compreender a metodologia usada no capítulo 4. A discussão deste capítulo limitou-se em: esclarecer as diferenças entre uma coluna de bolhas e um reator “air-lift”; caracterizar os fenômenos e forças ocorrentes na mistura multifásica no interior destes reatores; descrever os conceitos de transferência de quantidade de movimento e massa necessários ao desenvolvimento dos modelos, além de demonstrar passo a passo o próprio desenvolvimento das equações modelos, até um formato que fosse adequado aos programas desenvolvidos.

Esse capítulo foi finalizado com os fundamentos de redes neurais, que são necessários para o entendimento da metodologia usada no treinamento e validação, também do Capítulo 4.

3. - *Revisão Bibliográfica Cronológica*

3.1) - *Reatores Multifásicos - Colunas Aeradas*

Os autores dos artigos encontrados da década de 60 até 80, tinham uma tendência comum em caracterizar diversos tipos de colunas aeradas e propor modelos algébricos. Esses modelos são constituídos por correlações empíricas levantadas em colunas pilotos e que somente são válidas para o sistema multifásico em estudo. Pode-se dizer que essa tendência de época é iniciada por *Zuber e Findlay (1965)* ao proporem modelos hidrodinâmicos, que caracterizam o regime de fluxo com uma equação linear e constantes de distribuição. Esse modelo, denominado *Drift flux*, é amplamente usado e faz parte dos fundamentos básicos de modelagem de colunas multifásicas. *Chisti, M.Y. et al, (1988)*, marcaram o fim desta tendência de época, quando desenvolveram sistemas de equações algébricas de balanço de energia para determinar a velocidade líquida de circulação para mais de 13 tipos de ALRs. *Joshi, J. B. e et al, (1990)* resumiram uma década inteira de estudos, assim como outros estudos mais importantes das décadas precedentes, em um *Review Paper* que marcou a era da pesquisa em colunas aeradas. Em meados da década de 90, as colunas aeradas eram vistas como reatores de uso limitado, que seriam usadas somente em grande escala para processos fermentativos microbiológicos. Porém, novos processos multifásicos apareceram, e alguns outros que já existiam, mostraram-se mais viáveis em colunas aeradas. A partir disso, ampliou-se o leque de utilidades desses reatores e outros estudos mais aprofundados (desenvolvimento da Dinâmica Computacional, sistemas trifásicos, etc...) e pesquisas em outras condições de operação e escala de projeto (mega colunas para tratamento de efluentes, condições hiperbáricas, etc...) forjaram a nova tendência da década de 90. Mediante a esta tendência, os artigos da última década tornaram-se mais refinados e enfocaram detalhes operacionais. Um destes artigos é proposto por *Siegel, M.H., et al (1994)*, que provam que a recirculação de líquido é provocada pela injeção de gás abaixo do “riser”. O gás se separa do líquido na parte superior, provocando uma diferença de taxa de aeração e conseqüentemente, uma diferença de

densidade, o que causaria a recirculação. Outro estudo é proposto por *Hinks et al. (1996)*, que desenvolveram um algoritmo para reatores “airlift” de alta circulação, de forma a garantir estabilidade operacional, com menor taxa de injeção de ar, o que reduz custos operacionais.

Um desses processos industriais inovadores, é descrito por *Orejas. (1999)*, que modela um processo industrial trifásico de cloração direta do etileno a baixas temperaturas para formação do 1,2 dicloroetano. O reator empregado corresponde a um ALR com um “loop” de recirculação externa com capacidade de 19 m³ e uma capacidade de produção de 54.000 ton. de 1,2-dicloroetano por ano. *Freitas et al.(1999)*, já desenvolvem modelos matemáticos para reatores com “loop” externo e interno para outros sistemas trifásicos. O modelo desenvolvido possibilita a determinação do gás “hold-up” local e a velocidade do líquido em bioreatores tipo “airlift”. *Dudukovic MP, et Al. (1999)* fazem uma revisão sobre reatores multifásicos e fenômenos inerentes aos reatores trifásicos, reatores bifásicos com leito empacotados, colunas de borbulhamento com suspensão e com leitos fluidizados. Entretanto, o escopo deste projeto refere-se unicamente a reatores multifásico tipo “airlift” com “loop” externo ou interno cujo modelo dinâmico simplificado deve ser aplicado.

3.2) – Modelos Dinâmicos e Estacionários para Reatores Multifásicos.

3.2.1) - Modelos Hidrodinâmico

Pode-se dizer que os ALRs surgiram a partir das colunas de bolhas. Em tese, foi um aperfeiçoamento físico de uma coluna de bolha, mas que mudou por completo o comportamento do fluxo interno. Resumindo, ambas são distintas, apesar do ALR ser um híbrido de uma CB. *Verlaan et al. (1989)*, comparam a hidrodinâmica de uma CB e um AL num mesmo reator, de forma que a circulação no “downcomer” é estrangulada continuamente até se obter um fluxo semelhante a de uma coluna de bolhas. Este estudo em particular, foi bastante conclusivo em relação aos dois tipos de reatores. Assim, mostrou-se que o gás “hold up” (retenção gasosa) no ALR, é determinado pela velocidade do líquido (em contraste

com a coluna de bolhas), e se a velocidade do líquido for reduzida, o fator de atrito e o gás “hold up” aumentariam. Portanto, espera-se obter uma maior retenção gasosa para uma CB do que para um ALR nas mesmas condições de operação. Essa distinção não permite um modelo genérico para os dois dispositivos. Por isso, a coluna de bolhas comporta-se conforme o modelo de circulação, que é representada pela velocidade de circulação líquida de acordo com o modelo de célula de *Joshi e Sharma*. Já para o ALR o fluxo é melhor representado pelo modelo “drift-flux” de *Zuber e Findlay* (Vide Anexo 4). *Hillmer et al.*(1993) desenvolvem modelos para regime permanente bidimensionais e sistema trifásico. O modelo desenvolvido, identifica a influência mútua da hidrodinâmica e da reação química em coluna de bolhas com sólidos em suspensão. A dinâmica da fase gasosa em colunas de borbulhamento é discutida com detalhes por *Modak et al.* (1994). Modelos elementares classificados como de “Duas Bolhas” e de “Uma Bolha” são discutidos e comparados entre si nesta publicação. *Sokolichin e Eigenberger* (1994) determinam padrões de fluxos e perfis de velocidade vetorial a partir de modelos fluido dinâmicos bifásicos e multidimensionais. Os autores usaram o código de simulação numérica, chamada SIMPLER, com fundamentos nas equações de Navier-Stokes e equação da continuidade. *Dhaouadi, Poncin et al* (1996) descrevem a hidrodinâmica para um ALR de “loop” externo e propõem um modelo utilizando a combinação de modelos elementares tipo “Plug-Flow” e “CSTRs”. O sistema de equações diferenciais resultante do balanço de massa nas diversas seções do reator são resolvidas no domínio em tempo real usando o programa denominado MODEST. *Hudson et al* (1996), desenvolvem um modelo de predição da velocidade gasosa superficial unidimensional e estacionário para “air-lifts” de alta recirculação e de grande escala. *Cockx et al.* (1997), modelam fisicamente um reator “air-lift” de “loop” interno e propõem relações com velocidade superficial e coeficientes de perda de carga. Tais relações dependem do programa de Fluido Dinâmica Computacional (CFD), ASTRID, que ajustam e determinam os coeficientes necessários para formular tais relações. *Sokolichin e Eigenberger.* (1997), já desenvolveram um código de simulação numérica bifásico, dinâmico e em duas e três coordenadas cartesianas também baseada num sistema de equações de Navier-Stokes com uma representação Euleriana. Os resultados numéricos são comparados com resultados de programas CFD como o

UPWIND e o TVD. *Dhaouadi et. al. (1999)*, descrevem a hidrodinâmica e o regimes de escoamento homogêneo e heterogêneo em reatores com “loop” externo. *Couvert et al. (1999)* descrevem a hidrodinâmica em duas fases dos reatores retangulares tipo “air-lift” com “loop” interno em que vários parâmetros como o gás “hold-up”, a velocidade global de circulação, diâmetros das bolhas foram medidos e correlacionados com a velocidade superficial enquanto a perda de carga associada aos dispersores de gás. *Becker, De Bie e Sweeney. (1999)* fazem um estudo detalhado do comportamento do escoamento transiente em colunas de borbulhamento. Dados experimentais foram levantados para validação dos modelos dinâmicos de escoamento propostos. O levantamento dos perfis de velocidade bidirecional é feita com LDA (Laser Doppler Anemometry) e posteriormente comparado com a hidrodinâmica local modelada. Estudos numéricos e experimentais da hidrodinâmica em colunas de borbulhamento também é desenvolvida por *Lain, et al (1999)* que utiliza um PDA (Phase-Doppler Anemometry) e modelos com aproximações de Euler/Lagrange associados as Equações de Navier-Stokes sob regime turbulento.

3.2.2) - Modelos de Transferência de Massa

Projetos e modelos dinâmicos de reatores multifásico foram caracterizados por *Oinas et al. (1992)*, e métodos experimentais foram desenvolvidos para analisar a transferência de massa e reação em sistemas bifásicos gás-líquido e reatores trifásicos, gás-líquido-sólido. A transferência de massa em “air-lift” é detalhada por *Dhaouadi et. al. (1997)*. Nesta publicação, a modelagem nestes tipos de reatores é feita utilizando a combinação de modelos elementares tipo Plug-Flow e CSTRs. *Korpirjarvi, et al. (1999)*, propõem modelos dinâmicos para transferência de massa para “air-lifts” com “loop” interno e externo, a partir de Navier Stokes, teoria do filme de Whitman e leis de Fick. *Elk et al. (1999)* desenvolvem modelos matemáticos para reatores gás-liquidos, e analisam o comportamento da transferência de massa entre duas fases sob sistemas com reações irreversíveis. Modelagem e simulação em multi-escala de reatores BC são discutidos por *Bauer et al. (1999)*, os códigos de simulação envolvem transferência de massa bifásico e reação acoplada a um modelo hidrodinâmico

transiente. A cinética completa da síntese de metanol associada a modelos transientes de transferência de massa e modelo hidrodinâmico é mostrado *por Yuanxiang e Gidaspow. (1999)* para sistemas trifásicos e coluna de bolha. A hidrodinâmica e balanço térmico também são formulados em notações de Navier-Stokes e apresentada neste artigo. Por fim, um algoritmo de balanço de massa para o “air-lift” (planta piloto em anexo) foi publicado por *Camarasa et al. (2000)*, cuja estrutura é representada por Modelos de Células.

3.3) - Redes Neurais

Hoskins e Himmelblau (1988) citaram algumas aplicações de redes neurais no campo da engenharia química. *Bhat, e McAvoy (1989)* discutem o uso de redes neurais em modelagem de sistemas químicos não-lineares e a aplicação num controlador de pH num CSTR em regimes estacionário e dinâmico. *Savkovic e Stevanovic (1994)* descreveram a aplicação de redes neurais para otimização de dados em uma produção industrial.

Particularmente, merecem destaques as aplicações de redes neurais aos problemas de modelagem dinâmica e de controle de processos. Devido aos problemas que surgem na resolução de um modelo complexo em tempo real, torna-se imprescindível simplificá-lo, sem que para isso precise desprezar parâmetros relevantes do processo, ou dados operacionais disponíveis. Uma resposta para este tipo de problema é o desenvolvimento de um modelo híbrido neural, que dispensaria algumas equações determinísticas e simplificaria a carga de cálculo computacional. No entanto, esse não é um caso singular de aplicação de um modelo híbrido. Muitas vezes, se desconhece um modelo determinístico que descreve um comportamento ou fenômeno, ou muitas vezes a não linearidade limita um modelo determinístico. Para ambos os casos, tem se apelado para redes neurais como uma metodologia prática e funcional para situações complexas. Neste contexto, pode ser encontrado na literatura os mais variados casos estudos com abordagem em redes neurais.

Hong Te, Su; Bhat, N. e Minderman (1992) apresentaram uma discussão sobre o uso de redes neurais de propagação direta para a modelagem dinâmica e o controle de sistemas de processos químicos. *Hunt et. al. (1992)* apresentaram uma discussão sobre os principais aspectos envolvidos na utilização de redes neurais em modelagem, identificação e controle de sistemas não-lineares. *Yanamoto et al. (1993)*, descreveram o comportamento de um reator de síntese de amônia via rede neural. *Chen e Weigand (1994)* relataram a otimização dinâmica de processos não-lineares por combinação de redes com matriz dinâmica de controle 'DMC'. *Zandler e, Dittmeyer R. (1999)* descreveram um modelo dinâmico de reações químicas com redes neurais e modelos híbridos. *Schenker et al. (1998)* pré-escreveram um sistema de controle de um reator químico baseado em redes neurais. *Tendulkar et al. (1998)* desenvolvem estratégia de controle com redes neurais para reatores de plantas piloto de hidroxilação do fenol para o dihidróxibenzeno. *Maciel Filho e Aguiar (1998)*, desenvolveram um modelo determinístico de redes neurais para otimização do processo industrial de polpa e papel. *S.S. Ge et al (1999)* descreveram um controle adaptativo não linear para serem aplicados em sistemas CSTR usando redes neurais. *Jie Zhang et al. (1999)* propuseram um sistema de redes neurais para supervisionar as operações de um reator para produção do PET e também para supervisionar o controle de qualidade de reatores de polimerização em batelada.

Nestes trabalhos , citados brevemente, pode ser notada a versatilidade e o potencial de aplicação das redes neurais na modelagem e predição de comportamento de processos químicos que servem de motivação para o desenvolvimento da modelagem do processo considerado nesta tese.

4. - *Materiais e Métodos*

A principal proposta de estudo desta tese: **Desenvolvimento de Modelos Dinâmicos para Reatores “air- lift”**, aliado ao Projeto Temático: **Integração de Processos Químicos Contínuos em Tempo Real**, é propor modelos integrados, que fossem independentes de medições experimentais e que fossem baseado nos conceitos teóricos necessários para determinação dos parâmetros fundamentais.

Numa primeira etapa, desenvolveu-se um algoritmo unidimensional e bifásico (MEE) com formulações e heurísticas levantadas em literatura. Esse algoritmo foi o “ pilar” para o desenvolvimento de outros algoritmos dinâmicos mais complexos e robustos (MDD) e também foi a base para o desenvolvimento do Modelo Híbrido Neural (MHN). Além de ter servido como suporte, o MEE gerou os resultados padrões necessários para comparação. Por fim, o MEE foi fundamental para orientar e direcionar o desenvolvimento computacional e certificar-se dos resultados obtidos, o que seria de grande dificuldade se não estivesse disponível um padrão para comparação.

4.1) - *Metodologia Experimental*

4.1.1) - *Reator “air- lift” Piloto de “Loop” Externo.*

O reator “air- lift” da Rhodia possui medidores de pressão e temperatura em vários pontos específicos (vide Anexo 1), além de um rotâmetro na tubulação de injeção de gás. A recirculação líquida é possibilitada por uma bomba centrífuga, enquanto a temperatura controlada por meio de trocadores de calor (refervedor e condensador). As dimensões do reator “air-lift” da planta piloto da Rhodia estão no Anexo 2.

4.1.1.A) - *Medições de Pressão Local*

As medidas de pressão são feitas com sensores piezoresistivos, acopladas no vidro do reator (4 no “riser” e 2 no “downcomer”) e em posições bem definidas. A sua faixa de operação é de 0 a 500 mbar, o tempo de aquisição foi feito a cada 5 min e a 1Hz. O programa Labview de aquisição de dados é mostrado no Anexo 3.

A taxa de retenção gasosa local é calculada diretamente através das medições locais de pressão, pela Equação 4.1.

$$\varepsilon_g = 1 - \frac{\Delta P}{\rho_l g \Delta h} \quad (\text{Eq. 4.1})$$

ΔP , Δh é a variação de pressão e da altura entre os sensores, respectivamente.

4.1.1.B) - Determinação da Vazão e Velocidade do Líquido (v_l).

Foi usado um medidor ultra-sônico para determinação da vazão do líquido. O ultra-som é acoplado na tubulação de aço que conecta a saída do “downcomer” com o trocador. Esse medidor possibilita boa precisão e reprodutibilidade dos resultados. A velocidade superficial do líquido foi obtida através da vazão e da área transversal do “riser”.

4.1.1.C) - Determinação do Diâmetro Equivalente das Bolhas.

Em sistemas com viscosidade baixa como a água, as bolhas não têm uma geometria esférica; quando tem uma certa esfericidade muitas vezes não são uniformes. Entretanto, para efeitos de simplificações numéricas é necessário que se considere a geometria das bolhas como esférica, independente do caso. Assim, é necessário determinar o diâmetro equivalente destas bolhas, que é o diâmetro que estas teriam se a geometria fosse esférica. Um dos recursos experimentais comuns e que foi usado para determinação do diâmetro equivalente, consiste em tirar fotografias das bolhas no “riser” com uma câmara, determinar por meio de um programa a área de cada uma dessas bolhas e por fim calcular seu diâmetro equivalente. Para tal, utilizou-se uma câmara Nikon F90, com uma objetiva AF Micro Nikkor 60 mm 1:2.8. O filme usado foi de ASA 800 sensível a baixa

luminosidade . Uma lâmpada de 1000 W foi usada para contrapor a iluminação. A velocidade de obturação utilizada foi de 1/1000s para baixa vazão de gás e de 1/2000s para altas vazões.

As fotos são digitalizadas, e as bolhas que estão bem focadas (estão num mesmo plano) recebem tratamento gráfico (a sua área recebe um tom único de cor) através do software Paintshop pro 4.11. O número de pixels são contados e a área métrica correspondente calculada através de um outro programa desenvolvido no laboratório LSGC/CNRS/ENSIC (Nancy, França). Com a área métrica determinada, então calcula-se o diâmetro equivalente e a esfericidade. (Camarasa, 2000)

4.1.1.D) - Sistemas Multifásicos Estudados.

As fases dispersantes (líquidas) usadas para os testes experimentais foram: água, solução de água com 0,01% de butanol e uma mistura orgânica de uso industrial.

Estudos preliminares foram feitos com água/ar. Esse sistema foi tido como padrão para outros estudos.

A mistura orgânica industrial, que é o foco de estudo para a Rhodia, não é coalescente e reage com o oxigênio, dessa forma foi usada o nitrogênio para se preservar as propriedades do fluido.

Já o sistema butanol/água/ar é usado como modelo para o sistema industrial, visto que o butanol inibe a coalescência.

4.1.2) - Distribuidores (Dispensores ou Spargers)

O formato, simetria dos variados tipos de “spargers” (distribuidores de gases) são fundamentais na definição do regime e padrão de fluxo das fases, assim como a taxa de transferência de massa do soluto. (Anexo 1)

Os distribuidores de gases são classificados como dinâmico e estático:

- **Dinâmico:** são mais complexos que o estático, promovem maior área interfacial (a) e portanto uma transferência de massa melhor, visto que gera bolhas menores. A geometria destes dispersores depende da energia cinética do líquido, para promover maior área interfacial.

- **Estático:** são distribuidores como placas perfuradas, espinhas de peixe (Anexo1) e jato único, cuja distribuição e diâmetro de bolhas dependem dos poros do dispersor. Quanto menor os poros (furos) maior a perda de carga, o que gera maior consumo energético do compressor e menor velocidade gasosa.

Os teste experimentais usaram três tipos de distribuidores estáticos: Dois deles são tipo espinha de peixe (12 furos x ϕ 2 mm e 72 furos x ϕ 2 mm), que é mais comum em reatores industriais e o terceiro tipo jato único (1 furo de ϕ 10 mm). Testes não foram feitos com placas perfuradas, visto que este sistema não é muito usual na indústria.

4.2) - Modelo de Equações Empíricas (MEE)

Numa primeira etapa foi desenvolvido um modelo com todas as pressuposições teóricas necessárias para formulação de um algoritmo que gerasse perfis dos parâmetros operacionais mais fundamentais (gás “hold-up”, perda de carga, razão molar de soluto transferido e velocidade gasosa) que caracterizasse a hidrodinâmica e a transferência de massa de um reator “air-lift”. Esses perfis mostraram-se coerente com os resultados experimentais do “airlift” piloto da Rhodia de Paulínea para sistema multifásico em questão.

O modelo desenvolvido é uma ferramenta confiável para o entendimento dos efeitos dos vários parâmetros de projeto (área, razão altura/diâmetro e volume de reator) na circulação e estabilidade de um reator. Pode ser sugerido como modelo de controle para regime estacionário e pode ser usado para otimizações de um

processo industrial, visando a maior eficiência, menor escala de projeto possível e menor custo operacional.

4.2.1) - *Programas Desenvolvidos*

Os programas desenvolvidos foram escritos em linguagem fortran 77/90 com suporte do programa **Compaq Visual Fortran Professional 6.10**, em plataforma Windows 98. Foi desenvolvido um programa matriz com quatro outros programas alienados como subrotinas. A nomenclatura dos programas abaixo corresponde a sua função específica:

- ***reynolds.for*** : A função deste programa é determinar o Número de Reynolds teórico e a velocidade terminal das bolhas no interior do “riser” a partir das propriedades físico-químicas dos dois fluidos do sistema bifásico. A determinação do Número de Reynolds teórico e a velocidade terminal das bolhas dependem de propriedades microscópicas como a tensão cisalhante superficial (normal) (σ). Os valores de Reynolds serão usados para determinação da perda de carga local.
- ***pc_heterogeneo.for***: Determina a perda de carga e o fator de atrito para os intervalos pré-determinados no programa matriz, depende da velocidade do líquido (v_l), velocidade superficial do líquido (v_l), velocidade gasosa (v_g), coeficiente de retenção gasosa local (ϵ_g), do Número de Reynolds previamente calculado e das dimensões do reator.
- ***tmassa.for***: Determina os coeficientes de transferência de massa, assim como a razão molar final de soluto residual nas bolhas. No sistema, não são considerados reações químicas e os cálculos dependem de uma subrotina (*dessolv.for*) para resolução de EDOS (Eq. diferenciais ordinárias). A metodologia numérica runge-kutta de 4ª ordem foi usada para calcular a razão molar local. A Equação diferencial de transferência de massa depende: do coeficiente de retenção local (ϵ_g), pressão local (p_z), dimensões do reator (A , L), diâmetro das bolhas (d_{eq}), área interfacial (a) e condições de contorno.

- ***riser_heterogeneo.for (matriz)***: Calcula os intervalos de altura e os pontos do “riser” que corresponderão aos valores locais. Determina a pressão local, o gás “hold-up” local, velocidade gasosa local e coeficientes do modelo “Drift-flux”. Por fim, o programa otimiza o perfil da razão molar do soluto, de forma que este seja coerente com a razão molar estipulado no distribuidor.

Com os recursos de otimização do Excel, uma planilha foi montada para verificar os valores calculados pelo Fortran. Utilizou-se a Regra do trapézio e de Simpson para determinar os valores da razão molar. A resolução consiste na integração dos valores em intervalos definidos. O resultado foi bem próximo dos valores calculados pelo programa gerado em linguagem Fortran.

O esquema mostrado abaixo (fig 4.1), indica a relação dos programas desenvolvidos, que determinam as características do modelo hidrodinâmico para um sistema unidimensional, bifásico e estacionário. A numeração representa a seqüência de cálculo.

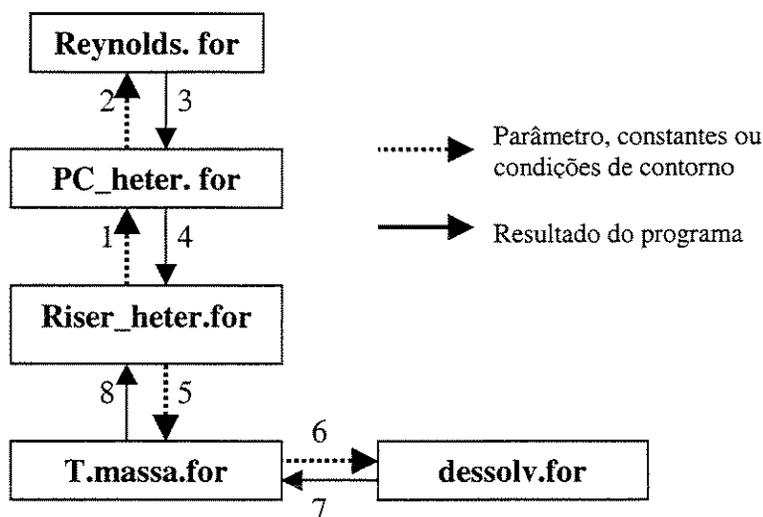


Fig. 4.1 - Esquema da seqüência de cálculo dos programas desenvolvidos

4.2.2) - Equações Modelos

O modelo hidrodinâmico proposto, baseia-se no equilíbrio de momento nas fronteiras do volume de controle. A Equação principal, que indica o equilíbrio entre a força motriz e força resistiva, é indicado pela Equação 4.2. Nesta equação,

a força motriz é a diferença da pressão hidrostática entre o “riser” e o “downcomer”, enquanto a força resistiva é a perda de carga originada por atrito do fluido no reator.

$$\int_0^L \rho_l (1 - \varepsilon_G) g . dz - \int_L^{2L} \rho_l (1 - \varepsilon_G) g . dz = \left(\frac{d\Delta P_f}{dz} \right) dz \quad (\text{Eq. 4.2})$$

downcomer
riser
reator

Antes de se expor as equações dos modelos, deve ser esclarecido que o sistema é razoavelmente complexo e por isso não pode ser modelado como todo. O modelo hidrodinâmico geral é a soma dos quatro elementos conectados: “riser”, “downcomer”, a zona de separação de gás e a zona de mistura. Muitas vezes a zona de mistura e a zona de separação são desconsideradas do modelo, por não alterar significativamente o comportamento hidrodinâmico.

O “riser” poderia ser modelado como uma coluna de bolhas, mas os resultados seriam imprecisos no ponto de vista hidrodinâmico, já que a principal diferença entre uma coluna de bolhas convencional e a seção do “riser” de um ALR, é que a faixa de velocidade líquida é de uma a duas ordem de magnitude maior que encontrada nas colunas de bolhas. (Vide Capítulo 1).

Geralmente, o regime heterogêneo prevalece acima de uma velocidade de 5 cm/s, e há uma distribuição maior de bolhas com diâmetros variados e um perfil radial de coeficiente de retenção. Uma consideração relativa ao regime de fluxo que é evidenciado, e foi aplicado a simulação, é de que o regime heterogêneo prevalece no “riser”, enquanto que no “downcomer” vigora o regime homogêneo. (*Ranade e Joshi, 1988*). Entretanto, isto não é uma regra, já que um fluxo homogêneo pode prevalecer no “riser” sob condições controladas de V_g , D e do formato do distribuidor. Por outro lado, o regime heterogêneo pode prevalecer no “downcomer” se a distribuição no tamanho de bolhas for muito grande.

4.2.2.A) - Velocidade Gasosa

Seguindo a seqüência de cálculo do esquema 4.1. O primeiro termo que deve ser determinado no programa matriz, é a velocidade de gás no topo do “riser” que dependerá das condições iniciais como a pressão na superfície, uma estimativa da razão molar de soluto no topo e outros parâmetros secundários, conforme a Equação 4.3.

$$V_g(z) = \frac{G(1+Y)RT}{A.p(z)} \quad (\text{Eq. 4.3})$$

4.2.2.B) - Taxa de Aeração - (Gás “hold up”)

Em seguida, é apresentado o formalismo baseado no conceito do modelo *Drift-Flux*, introduzido no Capítulo 1, e detalhado no Anexo 4, para estimar a taxa de aeração.

Em condições semelhantes a desenvolvida no experimento, *Ranade e Joshi*, (1988) determinaram correlações para os coeficientes de distribuição, C_o e C_l (Eq. 4.4, 4.5 e 4.6)

$$C_o = 2 - 1.263v_l + 0.547v_l^2 - 0.073 v_l^3 \quad (\text{Eq. 4.4})$$

$$\text{Se } C_o > 1.16 ; C_o = 1.16 \quad (\text{Eq. 4.5})$$

$$C_l = 0.3 \quad (\text{Eq. 4.6})$$

Através das equações anteriores determinam-se os coeficientes de distribuição a serem aplicados na Equação 4.7, que somente é válida para o regime heterogêneo.

$$\frac{v_g}{\bar{\epsilon}_g} = C_o(v_g + v_l) + C_l \quad (\text{Eq. 4.7})$$

Já para o regime homogêneo, a correlação mais adequada é a representada pela Equação 4.5.

$$\pm \frac{v_g}{\epsilon_g} \mp \frac{v_l}{\epsilon_l} = v_s \quad (\text{Eq. 4.8})$$

Na Equação 4.5 os sinais superiores se referem ao fluxo ascendente da mistura, enquanto os inferiores se referem ao fluxo descendente.

Uma observação interessante do modelo *Drift-Flux* é que a velocidade superficial (v_s) e o coeficiente C_1 são praticamente os mesmos. Isso é provado por *Joshi e Ranade (1990)* e adotado como heurística para o algoritmo proposto. (Eq. 4.9)

$$V_s = C_1 \quad (\text{Eq. 4.9})$$

Para se determinar o gás “hold up”, no regime homogêneo, primeiro tem-se que estabelecer alguma relação com a incógnita v_s . A Equação de *Joshi e Lali (1984)* possibilita a determinação da velocidade interfacial a partir da velocidade terminal das bolhas e o coeficiente de arraste. (Eq. 4.10, 4.11)

$$v_s = \frac{v_{b,\infty}}{\sqrt{1 + \frac{(1.5\epsilon_g)}{C_{D,\infty}}}} \quad (\text{Eq. 4.10})$$

$$C_{D,\infty} = \frac{gd_B}{3v_{b,\infty}^2} \quad (\text{Eq. 4.11})$$

Para o regime homogêneo, o algoritmo proposto pela Fig. 4.1 mudaria sensivelmente, pois seria preciso determinar primeiro a velocidade terminal (Número de Reynolds) antes de se determinar o gás “hold up”, enquanto no heterogêneo a determinação da velocidade terminal não é necessária para os cálculos posteriores.

4.2.2.C) - Número de Reynolds Teórico e Velocidade Terminal das Bolhas.

Uma forma empírica de se determinar o Número de Reynolds é através da Equação. 4.12, porém a velocidade terminal das bolhas no meio líquido, não foi estimada. Esse parâmetro corresponde a velocidade que a bolha teria no meio com o líquido estagnado no interior do reator e uma velocidade gasosa próxima de zero.

$$Re = \frac{d_B V_{b,\infty} \rho_l}{\mu_l} \quad (\text{Eq. 4.12})$$

Essa velocidade terminal, pode ser prevista pelas equações de *Grace et al.* (1976) (Eq. 4.13 a 4.18), desde que a densidade, viscosidade e tensão cisalhante normal estejam incluídos no domínio pré-estabelecido. Tais domínios são: $720 < \rho_l < 1390 \text{ kg/m}^3$, $0,001 < \mu_l < 3,08 \text{ Pa.s}$ e $7 < \sigma < 54 \text{ N/m}^2$.

$$E_o = \frac{g(\rho_l - \rho_g)d_B^2}{\sigma} \quad (\text{Eq. 4.13})$$

$$N = \frac{4}{3} E_o M^{-0.149} \left(\frac{\mu_l}{0.0009} \right)^{-0.14} \quad (\text{Eq. 4.14})$$

$$J = 0.94N^{0.757} \quad \text{para } 2 < N \leq 59.3 \quad (\text{Eq. 4.15})$$

$$= 3.43N^{0.441} \quad \text{para } N > 59.3 \quad (\text{Eq. 4.16})$$

$$M = \frac{g\mu_l^4(\rho_l - \rho_g)}{\rho_l^2 \sigma^3} \quad (\text{Eq. 4.17})$$

$$Re = (J - 0.857) M^{0.149} \quad (\text{Eq. 4.18})$$

Com o Número de Reynolds previsto através da Equação 4.18, utiliza-se em seguida, a Equação 4.12 para se calcular a velocidade terminal de uma bolha.

4.2.2.D) - Perda de Carga

A perda de carga depende de uma série de fatores, entre os quais estão o fator de atrito (f) e o coeficiente de rugosidade (e). A Equação 4.19, de *Perry e Chilton (1973)*, pode ser usada com boa precisão para determinação do fator de atrito, já que o Número de Reynolds foi determinado previamente conforme a seqüência de cálculo proposta na Figura 4.1.

$$f = \frac{0.0626}{\left(\log_{10}\left(\frac{e}{3.7} + \frac{5.74}{Re^{0.9}}\right)\right)^2} \quad (\text{Eq. 4.19})$$

A perda de carga depende do Fator de Atrito Multiplicativo para Duas-Fases, (Φ_L^2), que depende do Componente de Intensidade de Turbulência gerados pelas Bolhas no fluxo bifásico (u'^2_{yb}). As equações 4.20 e 4.21 são usadas para o regime heterogêneo.

$$u'_{yb} = 0.25 \left[g D_i \left(v_g - \frac{\bar{\epsilon}_g}{1 - \bar{\epsilon}_g} v_l - \epsilon_g v_s \right) \right]^{1/3} \quad (\text{Eq. 4.20})$$

$$\Phi_L^2 = \frac{1}{\epsilon_l^2} + \frac{2u'^2_{yb}}{f v_l^2} \quad (\text{Eq. 4.21})$$

Joshi (1983) propôs equações similares para o regime homogêneo, que não dependem do Componente de Intensidade de Turbulência gerado pelas Bolhas.

$$\Phi_L^2 = \frac{1}{\varepsilon_l^2} + \frac{4.5}{f} \left(\frac{\varepsilon_g v_s}{v_l} \right)^2 \quad (\text{Eq. 4.22})$$

Em seguida, a perda de carga é calculada pela expressão 4.23, tanto para o regime homogêneo quanto para o regime heterogêneo:

$$\Delta P_f = \frac{2 f \rho_l v_l^2 L}{D_i} \Phi_L^2 \quad (\text{Eq. 4.23})$$

Com o gás “hold up” e a perda de carga determinada para os dois setores, determina-se a pressão local (p_z) do “downcomer” e do “riser” que correspondem as equações 4.24 e 4.25 respectivamente. Essa pressão será relativa à próxima iteração já que a pressão local do primeiro ponto corresponderá a p^* , que equivale ao p^{2L} no “riser” ou p^0 no “downcomer”.

4.2.2.E) - Pressão Local

A pressão local pode ser calculado através das equações 4.24 e 4.25.

$$p_{z,D} = p^* + \int_0^z g \rho_l (1 - \varepsilon_g) dz - \int_0^z \left(\frac{d\Delta P_f}{dz} \right) dz \quad (\text{Eq. 4.24})$$

$$0 \leq z \leq L$$

$$p_{z,R} = p^* + \int_z^{2L} g \rho_l (1 - \varepsilon_g) dz + \int_z^{2L} \left(\frac{d\Delta P_f}{dz} \right) dz \quad (\text{Eq. 4.25})$$

$$L \leq z \leq 2L$$

O próximo passo é calcular a razão molar do próximo ponto, já que do ponto 2L, a razão molar equivale a uma estimativa inicial, que será otimizada posteriormente.

4.2.2.F) - *Transferência de Massa*

Para bolhas esféricas a área interfacial será equivalente a Equação 4.26. (Kastanek et al., 1984).

$$a = \frac{6\varepsilon_g}{d_B} \quad (\text{Eq. 4.26})$$

A Equação 4.27 corresponde a teoria da penetração de Higbie e representa o comportamento experimental observado para bolhas maiores que 2 mm.

$$k_l = 1.13 \left(\frac{v_s D}{d_b} \right)^{1/2} \quad (\text{Eq. 4.27})$$

O coeficiente de transferência de massa (k_l) é considerado constante em qualquer ponto do reator e para qualquer velocidade gasosa. A difusão D é a difusão do oxigênio (Ar) em água, e o denominador o diâmetro médio das bolhas.

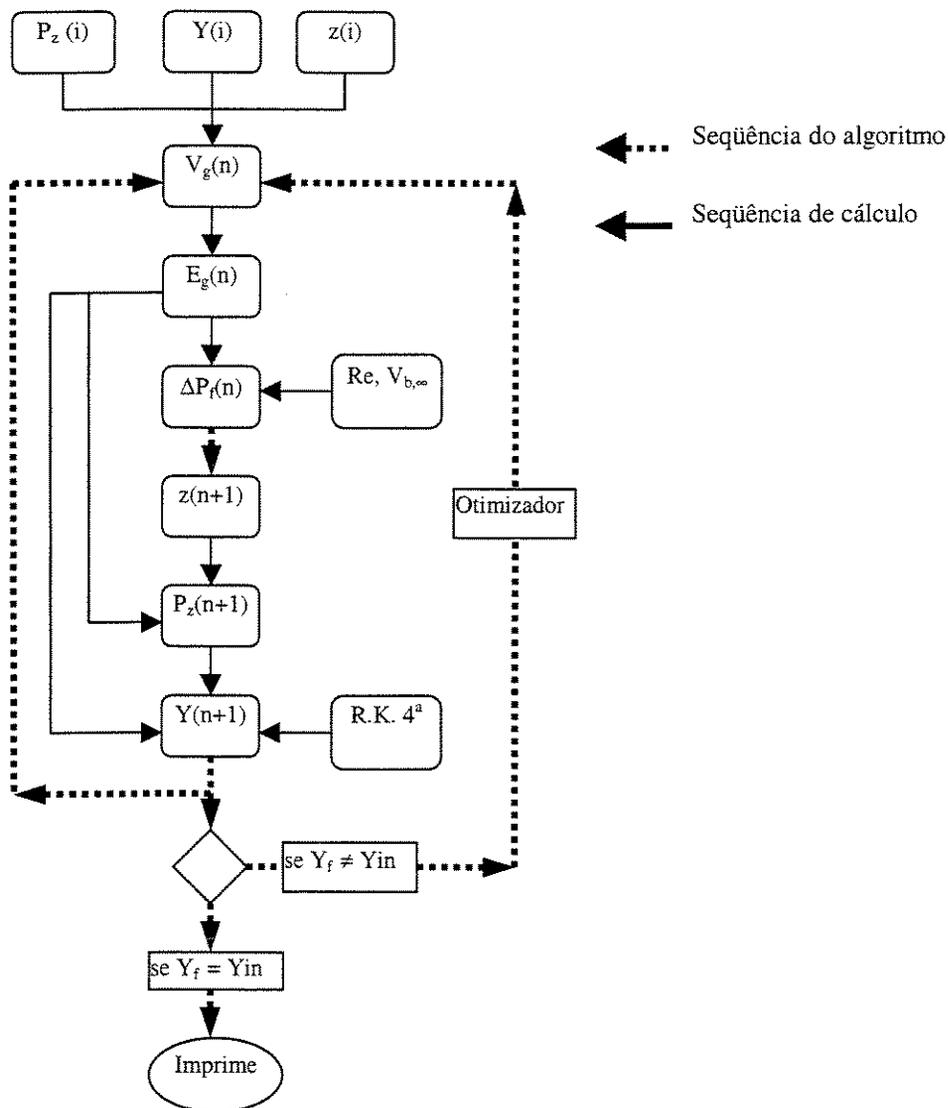
A Equação fundamental de transferência de massa (Eq. 4.28), descreve o perfil da razão molar do soluto para pontos específicos da coluna.

$$\frac{dY}{dz} = \frac{k_l a H_e p_z}{G} \left(\frac{Y}{1+Y} \right) A \quad (\text{Eq. 4.28})$$

A EDO acima foi resolvida pelo método de integração numérica de Regra do Trapézio e de Simpson. No programa em linguagem fortran, a Equação foi

resolvida pelo método Runge-Kutta de 4ª ordem. Os resultados das três metodologias foram bem aproximados.

4.2.3) - Algoritmo para Descrição do “riser” (Regime Heterogêneo).



4.3) - Modelo Determinístico Dinâmico (MDD)

Para o modelo dinâmico, toda uma estrutura foi desenvolvida a partir dos conceitos aprendidos no **Modelo de Equações Empíricas**. Neste modelo, obteve-se perfis para o regime permanente, que atende as condições iniciais e finais do

Modelo Dinâmico. Assim, foi escolhido uma condição de funcionamento do Reator “air- lift”, cujos perfis de razão molar, velocidade e retenção gasosa foram pré definidos conforme os dados levantados nos testes experimentais. O caso estudo proposto no programa envolve uma condição real, onde inicialmente o reator funciona em regime permanente quando subitamente a injeção gasosa é aumentada. Após esta perturbação, os perfis de transferência de massa e hidrodinâmica passam por transições e atinge um novo regime permanente, que deve se comportar conforme a nova vazão de gás.

4.3.1) - Metodologia Numérica

O Método das Linhas, foi o método encontrado que possui todos os recursos necessários para a resolução das equações diferenciais parciais. Essa metodologia depende da discretização dos termos envolvidos e das condições de contorno estipulados. As equações diferenciais foram transformadas em EDOs. Para resolvê-las, utilizou-se a Metodologia Runge-Kutta Fehlberg de 5ª ordem.

4.3.2) - Discretização das EDPs

No programa desenvolvido, todos os termos diferenciais das variáveis ϵ , y e v nas EDPs, foram substituídos. Os termos diferenciais de primeira ordem foram substituídos pela Equação 4.29 e de segunda ordem pela Equação 4.30.

$$\frac{\partial X}{\partial z} = \frac{X_{(i+1)} - X_{(i-1)}}{2\Delta h} \quad (\text{Eq. 4.29})$$

$$\frac{\partial^2 X}{\partial z^2} = \frac{X_{(i+1)} - 2X_{(i)} + X_{(i-1)}}{\Delta h^2} \quad (\text{Eq. 4.30})$$

Na Equação 4.29 e 4.30, a variável “X” é válida para velocidade, retenção gasosa e a fração(razão no MEE) molar do soluto transferido. O termo Δh , é o intervalo entre cada ponto calculado no eixo axial do reator.

Após serem transformadas em ODEs, as equações foram resolvidas pela metodologia Runge-Kutta de 5ª ordem.

A rotina Runge Kutta de quarta ordem, por exemplo, consiste em calcular quatro constantes, e determinar valores consecutivos de uma função y_{k+1} .

$$\begin{aligned}
 K_1 &= hf(x_k, y_k) \\
 K_2 &= hf\left(x_k + \frac{1}{2}h, y_k + \frac{1}{2}K_1\right) \\
 K_3 &= hf\left(x_k + \frac{1}{2}h, y_k + \frac{1}{2}K_2\right) \\
 K_4 &= hf(x_k + h, y_k + K_3) \\
 \begin{cases} x_{k+1} = x_k + h \\ y_{k+1} = y_k + \frac{1}{2}(K_1 + 2K_2 + 2K_3 + K_4) \end{cases} & \quad (\text{Eqs. 4.31 a 4.36})
 \end{aligned}$$

A função y_k , representa as variáveis retenção, velocidade gasosa, e a fração molar do soluto. A variável x_k representa o tempo que é integrado num intervalo h .

Nos programas desenvolvidos foram usados subrotinas com a metodologia Runge-Kutta de 5ª ordem, que melhora a convergência e a precisão dos pontos calculados, em relação ao de 4ª ordem.

4.3.3) - Condições Iniciais e Finais

As condições iniciais, como mencionadas, serão os regimes permanentes obtidos em uma condição real na planta piloto. Para $t = 0$, os perfis de taxa de

aeração, velocidade gasosa e fração molar se comportam conforme a vazão de gás de 17740 L/h, quando subitamente essa vazão sofre um incremento até 19664 L/h. Para cada variável existe um perfil inicial e final que corresponde ao incremento de gás mencionado. Esses perfis são o regime permanente inicial e final. O inicial deve ser incorporado como dados no programa e o final deve ser calculado pelo algoritmo do Modelo Dinâmico.

4.3.3.A) - Retenção gasosa (Gás “hold up”)

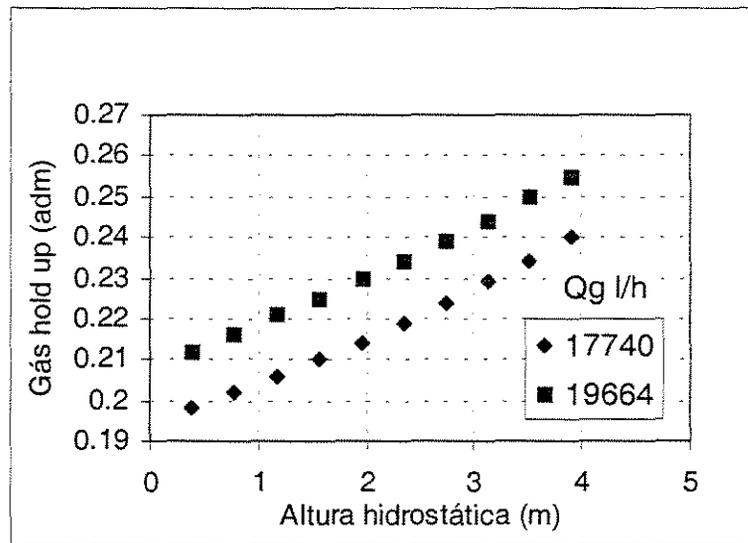


Fig. 4.2 - Variação gás “hold up” devido ao incremento de vazão.

Na Figura anterior, os perfis foram obtidos dos resultados do Modelo de Equações Empíricas. A partir do perfil inferior delinea-se a condição inicial ($t=0$) para a retenção gasosa através do eixo axial:

$$\varepsilon_g(i,j) = \varepsilon_g(i,1) = 0,0118.z(i) + 0,1921 \quad (\text{Eq. 4.37})$$

A perturbação do sistema (incremento da vazão) fará com que o gás “hold up” do ponto mais próximo do distribuidor atinja instantaneamente o valor final de gás “hold up” correspondente ao perfil da vazão de 19664 L/h. Em outras palavras, o gás “hold up” para a posição axial $z=0$ será sempre igual para qualquer j desde que $t \neq 0 (j \neq 1)$. Pelo gráfico obtêm-se esta condição:

$$\varepsilon_g(0,j) = 0,212 \quad (\text{Eq. 4.38})$$

Na prática, o valor da Equação 4.38 poderia ser um valor “ajustado” para melhorar a eficiência do reator. Assim, um suposto operador poderia regular o gás “hold up” de forma que a vazão aumentaria ou diminuiria automaticamente. O programa regularia a injeção de ar no “riser” até obter os resultados desejados após um certo tempo.

4.3.3.B) - Velocidade gasosa

Da mesma forma, as condições iniciais para a velocidade gasosa foram determinados mediante as condições reais de teste da planta piloto.

Para a mesma perturbação o perfil inicial e final em regime permanente pode ser determinado a partir do Modelo de Equações Empíricas. (Fig. 4.3)

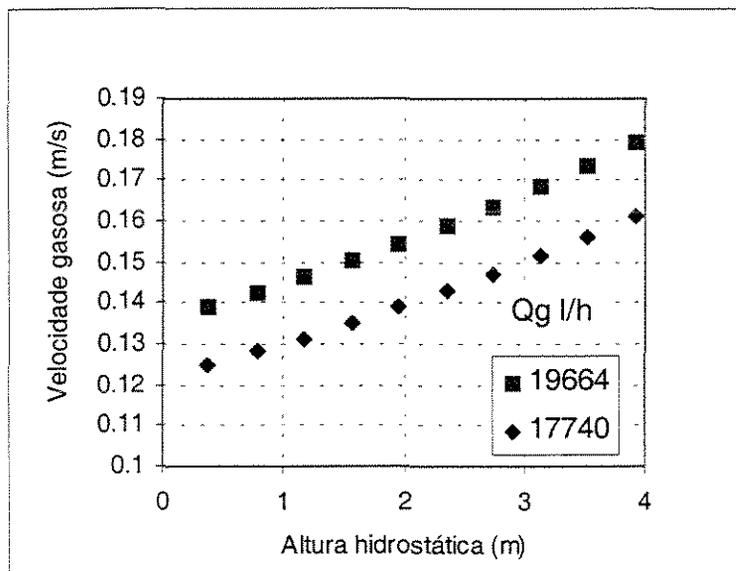


Fig. 4.3 - Variação da velocidade gasosa devido ao incremento de vazão.

A partir do perfil inferior delinea-se a condição inicial ($t=0$) para a velocidade gasosa através do eixo axial:

$$V_g(i,1) = 0,0008z(i)^2 + 0,007z(i) + 0.1221 \quad (\text{Eq. 4.39})$$

Da mesma forma que o gás “hold up”, a velocidade gasosa sofre um incremento instantâneo após o aumento da vazão de gás, mas somente no ponto mais próximo do distribuidor, que equivale ao ponto de menor altura hidrostática no perfil superior da Figura 4.3. Em outras palavras, a velocidade gasosa, para a posição axial $z(i)=0$ será sempre igual para qualquer j desde que $t \neq 0$. Pelo gráfico obtêm-se esta condição:

$$V_g(0,j) = 0,136 \text{ (m/s)} \quad (\text{Eq. 4.40})$$

4.3.3.C) - Fração Molar

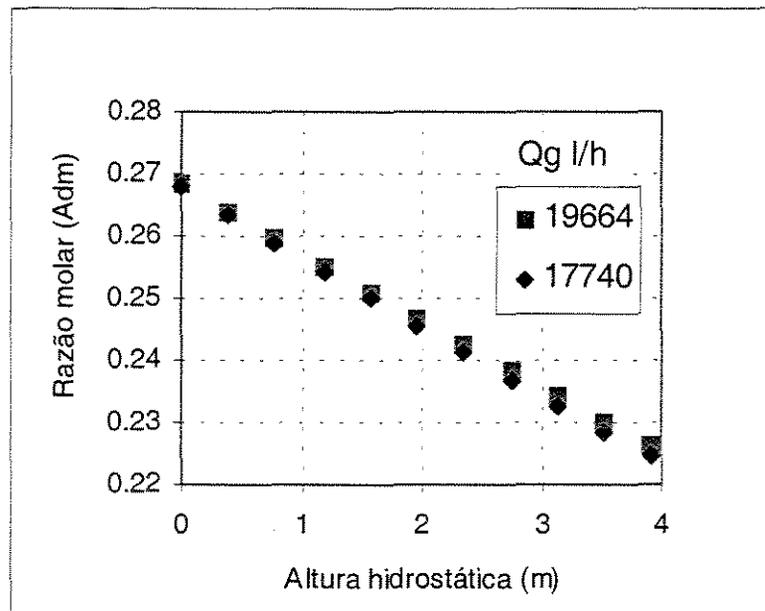


Fig. 4.4 - Perfil inicial e final de transferência de massa para o incremento de vazão gasosa.

Os perfis do Gráfico 4.4 mostram claramente que o aumento da vazão não interfere na concentração inicial do soluto e portanto a concentração no ponto mais próximo do distribuidor será sempre igual a concentração de oxigênio do gás de

entrada. Inicialmente, a perturbação não interfere no perfil de transferência de massa, mas após um período de tempo o perfil começa a sofrer alterações.

Os perfis do Gráfico 4.4 indicam que a concentração de oxigênio na bolha passa a ser maior com o aumento da vazão. Os resultados mostram-se coerentes com a realidade, visto que para uma vazão maior, haverá maior disponibilidade de bolhas e a taxa de transferência de massa por bolha deverá ser menor para que a taxa global seja a mesma, já que não houve alterações nas propriedades do líquido e concentração inicial de entrada. Associado a isto, com a velocidade gasosa maior o tempo de permanência na fase líquida é menor. A quantidade final de O_2 transferido também será menor fazendo sobrar mais soluto nas bolhas.

O perfil inicial (vazão de 17740 L/min) se comporta conforme a Equação:

$$y(O_2) = -0,111 z(i) \times 0,79 + 0,2679 \times 0,79 \quad (\text{Eq. 4.41})$$

E assim, como os outros perfis, este também foi usado como condição inicial ($t=0$) no Modelo Determinístico Dinâmico.

4.3.4) - Condições de Contorno

As condições através do perfil axial para $t=0$ e $t= t_{\text{final}}$ foram determinados anteriormente na seção para condições iniciais e finais. No entanto, para as posições $z = 0$ e $z = z_{\text{final}}$, existem condições de contorno para qualquer tempo. Essas posições referem-se ao distribuidor e a superfície líquida respectivamente.

Para caracterizar as condições de contorno, depender-se-á das EDPs desenvolvidas no primeiro capítulo, e de heurísticas adotadas a partir de análises físicas. A partir da Figura 4.5, define-se as fronteiras do sistema estudado:

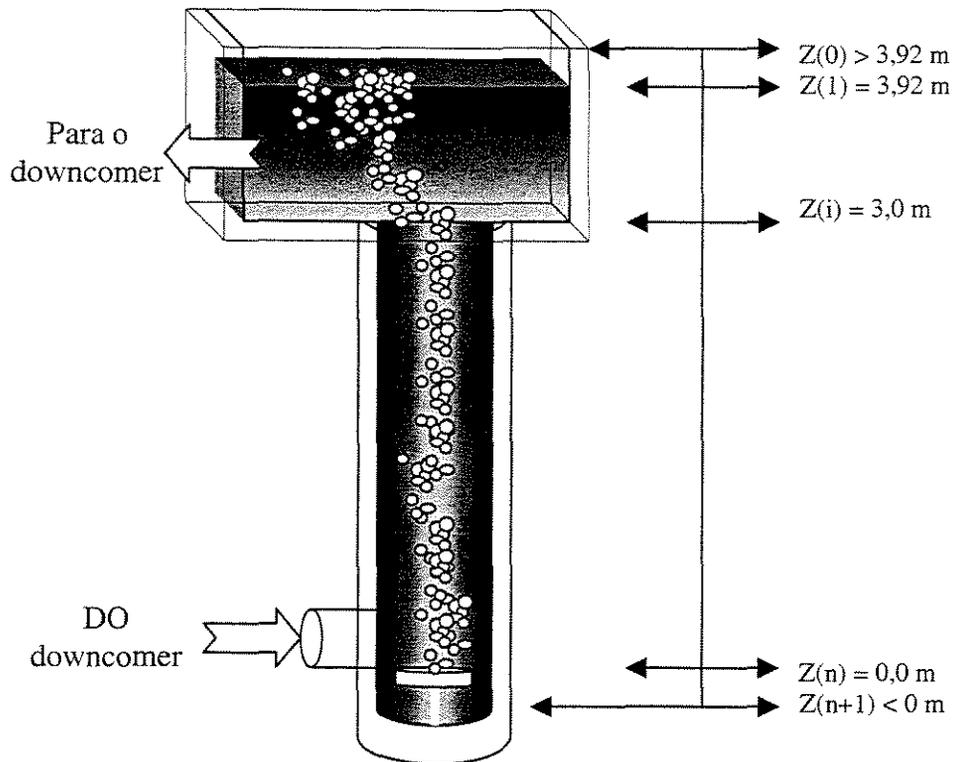


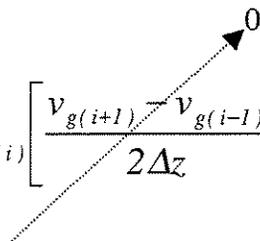
Fig. 4.5 - Fronteiras do eixo axial para o “riser” do Reator “air- lift”.

No Método das Linhas, para se determinar as condições de contorno, precisa-se extrapolar as fronteiras do sistema. Para cada variável (ϵ, v ou y) haverá uma EDP específica que é diferenciada por ser influenciada pela descontinuidade da mistura bifásica.

4.3.4.A) - Retenção gasosa (Gás “hold up”)

Para $z(0)$, não existe fase líquida. Antes de definir essa condição de contorno, algumas pressuposições poderiam ser pensadas, como a de considerar $\partial\epsilon/\partial z(0)=0$ porém observando a curva empírica, nenhuma pressuposição desta ordem pode ser aplicada. Uma heurística aplicável é considerar para $z(0)$, $\epsilon_g = 1$, já que acima da superfície líquida só existe gás. Da mesma forma, abaixo do distribuidor gasoso estipula-se que não existe bolhas e portanto, $\epsilon_g(n+1) = 0$.

Aplicando a heurística para $z(1)$ nas Equações 4.29 e 4.30 e substituindo-as nos termos apropriados da Equação 1.26, ter-se-á:

$$\frac{\partial \varepsilon_g}{\partial t} \Big|_{j=l} = -v_{g(i)} \left[\frac{\varepsilon_{g(i+1)} - 1,0}{2\Delta z} \right] - \varepsilon_{g(i)} \left[\frac{v_{g(i+1)} - v_{g(i-1)}}{2\Delta z} \right] + \frac{\mu}{\rho_g} \left[\frac{1 - 2\varepsilon_{g(i)} + \varepsilon_{g(i+1)}}{\Delta z^2} \right] - \frac{M_g}{\rho_g} \quad (\text{Eq. 4.42})$$


Em que $i = 0, n$

A Equação 4.42 depende também das condições de contorno da EDP 1.31, para velocidade gasosa, que será definida no próximo item. Tal definição eliminará o 2º termo do 2º membro da Equação como indicado pela seta pontilhada.

4.3.4.B) - Velocidade gasosa

À medida que as bolhas se aproximam da superfície líquida, a velocidade axial tende a diminuir devido a tensão superficial e principalmente devido ao direcionamento do fluxo da suspensão, que muda no topo da coluna. Essa frenagem das bolhas gera um ponto de inflexão no perfil de velocidade para $z(1)=3.92$ m, ou seja, para $z(1)$, $\partial v/\partial z = 0$. A partir destas condições e a condição de contorno para o gás “hold up”, desenvolve-se a EDP para velocidade gasosa no ponto $z(1) = 3.92$:

Para $r(0)$ tem-se:

$$\frac{\partial v_g}{\partial z} \Big|_{i=l} = 0 = \frac{v_{g(i+1)} - v_{g(i-1)}}{2\Delta z} \quad (\text{Eq. 4.43})$$

e portanto:

$$V_{g(i+1)} = V_{g(i-1)} \quad (\text{Eq.4.44})$$

Substituindo na EDP 1.31 obtêm-se:

$$\begin{aligned} \frac{\partial v_g}{\partial t} \Big|_{i=1} = & -4 \frac{\mu}{\rho_g} \left[\frac{v_{g(i+1)} - v_{g(i)}}{2\Delta z} \right] - \varepsilon_{g(i)} \left[\frac{v_{g(i+1)} - v_{g(i-1)}}{2\Delta z} \right] + \\ & \frac{\mu}{\varepsilon_g \rho_g} v_{g(i)} \left[\frac{1 - 2\varepsilon_{g(i)} + \varepsilon_{g(i+1)}}{\Delta z^2} \right] + \left(\frac{1}{\rho_g} \left(\frac{\partial P}{\partial z} \right)_g - (\rho_g - \rho_{sus}) \frac{g}{\rho_g} \right) \\ & \pm \frac{\varepsilon_{sus} (v_g - v_{sus}) C_w}{\rho_g} \end{aligned} \quad (\text{Eq. 4.45})$$

A Equação 4.45 é uma das equações de contorno propostas para o sistema de EDPs no modelo dinâmico.

4.3.4.C) - Fração Molar

Além da superfície do líquido, prevalece o ar atmosférico cuja fração molar de oxigênio é constante (0,21). No entanto, a liberação do ar rico em nitrogênio na superfície dificultaria a difusão do ar para água, simplesmente porque haveria um contra fluxo fisicamente incoerente. Portanto, a convecção natural gerada pelas bolhas, manteria a concentração logo acima da superfície líquida, igual a da superfície, ou seja, $y(0) = y(1)$. Outro fator que pode ser desconsiderado é a perda de carga no ponto entre $0 \leq i \leq 1$ já que não existe coluna hidrostática e a pressão é a mesma para $i=0$ e $i=1$ ($z(1) = 3.92$). Dessa forma $dp/dz(1) = 0$, e $y(0) = y(1)$. Associando essas condições a EDP 1.44, obtêm-se a última EDP específica para a condição de contorno:

$$\frac{\partial y_g}{\partial t} \Big|_{i=l} = \left[-v_{g(i)} + D \frac{1}{\varepsilon_{g(i)}} \left(\frac{\varepsilon_{g(i+1)} - 1}{2\Delta z} \right) \right] \left(\frac{y_{g(i+1)} - 0.2I}{2\Delta z} \right) + \quad (\text{Eq. 4.46})$$

$$D \left(\frac{y_{g(i+1)} - 2y_{g(i)} + 0.2I}{\partial z^2} \right) - \frac{y_g D}{\varepsilon_{g(i)}} \left(\frac{\varepsilon_{g(i+1)} - 2\varepsilon_{g(i)} + 1}{\partial z^2} \right)_g - \frac{M_g y_g}{\varepsilon \rho_g}$$

4.3.5) - Programas Desenvolvidos

Os programas desenvolvidos foram feito em linguagem fortran 77/90 com suporte do programa **Compaq Visual Fortran Professional 6.10**, para plataforma do Windows 98.

Foi desenvolvido um programa matriz com sete outros programas trabalhando como subrotinas. Algumas equações têm similaridades com outras equações do **Modelo de Equações Empíricas**, pois descrevem as propriedades físico-químicas dos fluidos e caracterizam a transferência de massa e quantidade de movimento. Esses fenômenos são genéricos para qualquer modelo desenvolvido e devem estar incorporados a metodologia numérica do caso estudo proposto, independente do tipo de modelo aplicado. A nomenclatura dos programas abaixo corresponde a sua função específica:

- **c-arraste2.for** : O sistema de equações desta subrotina foi usado, também, no **Modelo de Equações Empíricas**. A função deste programa é determinar o número de Reynolds teórico, a velocidade terminal das bolhas no interior do “riser” e o coeficiente de arraste a partir das propriedades físico-químicas dos dois fluidos do sistema bifásico. A determinação do Número de Reynolds teórico e a velocidade terminal das bolhas dependem de propriedades microscópicas como a tensão cisalhante superficial (normal) (σ). Os valores de Reynolds serão usados para determinação da perda de carga local por atrito *para a suspensão de água e ar*. A determinação do Reynolds nesta subrotina tem valor secundário no **Modelo Dinâmico**, já que a resolução do sistema de equações algébricas é unicamente usada para ajustar a determinação da pressão local, através do fator multiplicativo para perda de carga gerada por atrito na

coluna. Por sua vez, o coeficiente de arraste é primordial já que contribui com um dos termos para a EDP da velocidade gasosa.

- **cond-cont.for**: Engloba os parâmetros de projeto, operacionais, os parâmetros dos fluidos, parâmetros de transferência de massa e condições de sistema numa única subrotina. Determina a velocidade líquida (v_l) e velocidade inicial do gás.
- **din(2D)holdup(D).for (p.principal)**: Determina a matriz de taxa de transferência de massa, área interfacial, pressão local e perda de carga da fase gasosa. Gera matriz com valores de gás “hold up” nas coordenadas temporais e axiais. Os cálculos dependem de uma subrotina (**dessolvb.for**) para resolução das ODEs (Eq. diferenciais ordinárias). A metodologia numérica runge-kutta de 5ª ordem foi usada para calcular a retenção gasosa local. Após gerada a primeira linha da matriz, o programa transfere os resultados para a subrotina **din(2D)veloc(D).for**.
- **din(2D)veloc(D).for**: Resolve a EDP para velocidade gasosa local. Gera matriz nas coordenadas temporal e axial. Os cálculos dependem de uma subrotina (**dessolvc.for**) para resolução de EDOS (Eq. diferenciais ordinárias). A metodologia numérica runge-kutta de 5ª ordem foi usada para calcular a velocidade gasosa local. Após a resolução da linha na matriz, transfere os resultados para **din(2D)frac(D).for**.
- **din(2D)frac(D).for**: Resolve a EDP para fração molar de oxigênio residual nas bolhas e converte em razão molar. Gera matriz nas coordenadas temporal e axial. Os cálculos dependem de uma subrotina (**dessolva.for**) para resolução das EDOs. A mesma metodologia numérica, runge-kutta de 5ª ordem, foi usada para calcular a fração molar. Após a resolução da linha j na matriz, retorna os valores para o programa principal **din(2D)holdup(D).for**.

O esquema 4.6, indica a relação dos programas desenvolvidos que caracterizam o comportamento transiente completo da hidrodinâmica e transferência de massa para o “riser” do reator tipo “air-lift” de “loop” Externo. Os

resultados gerados pelo **Modelo Dinâmico** bidimensional, são mais robustos que os resultados gerados pelo **Modelo de Equações Empíricas** unidimensional estacionário. A numeração representa a seqüência de cálculo.

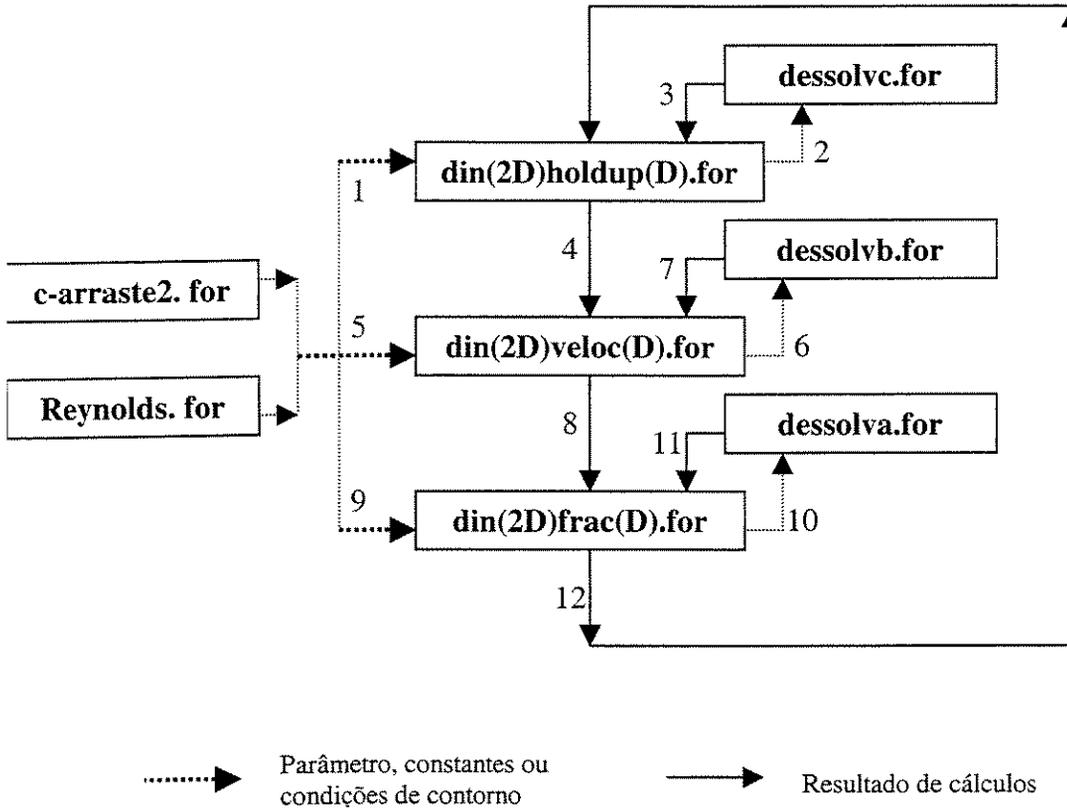


Fig. 4.6 - Esquema de seqüência de cálculo dos programas desenvolvidos.

4.3.6) - Equações Auxiliares do Modelo Dinâmico

Para que se possa comparar ambos os modelos desenvolvidos é importante adotar os mesmos parâmetros e correlações auxiliares. A robustez do Modelo Dinâmico dispensa a otimização e uma série de correlações que foram adotados no Modelo de Equações Empíricas, o que diminui os números de iterações e o tempo de resposta de processamento.

No modelo *Drift-Flux* a velocidade superficial (v_s) e o coeficiente de distribuição C_1 são equivalentes. Isso é provado por *Joshi e Ranade (1990)* e adotado como heurística para o Modelo Dinâmico, assim como foi adotado para o

Modelo de Equações Empíricas. Nenhuma outra Equação do Modelo *Drift Flux* foi usada no algoritmo dinâmico.

Para a determinação do Número de Reynolds e o coeficiente de arraste, foi usada as correlações de *Grace et al 1976*, como no MEE. A partir destas equações determina-se a velocidade terminal das bolhas e o coeficiente de arraste, que é um dos parâmetros da EDP para velocidade gasosa.

A pressão local na posição axial para qualquer tempo pode ser determinado através da Equação 4.47:

$$p_z(i,j) = p_0 + g \cdot \rho_l \cdot [1 - \varepsilon_g(i,j)] \cdot [L - z(i)] + \Delta P_f \quad (\text{Eq. 4.47})$$

ou conforme mencionado anteriormente:

$$p_z(i,j) = p_0 + \rho_l g [1 - \varepsilon_g(i,j)] [L - z(i)] + \frac{2f\rho_l v_i^2 \Phi_i^2}{D} [L - z(i)] \quad (\text{Eq. 4.48})$$

A perda de carga por atrito, ΔP_f , está relacionada com a mistura bifásica e por isso não pode ser usada nos termos de perda de carga encontrados nas EDPs, que são específicos para a fase gasosa. Dessa forma, surge uma variável específica do Modelo Dinâmico desenvolvido. Essa variável $(\partial P/\partial z)_g$ deve ser determinada previamente para que se possa obter o conjunto de matrizes solução das equações diferenciais.

Para se determinar essa variável, aplica-se o conceito de perda de carga global entre dois pontos da coluna, que equivale a diferença da pressão devida a altura hidrostática e diferença de densidades entre as fases, somado das perdas por fricção. Assim para a fase gasosa:

$$\Delta P = (\rho_g - \rho_{sus}) \cdot \Delta z \cdot g + \Delta P_{fg} \quad (\text{Eq. 4.49})$$

$$\Delta P_{fg} = \Delta P - (\rho_g - \rho_{sus}) \cdot \Delta z \cdot g \quad (\text{Eq. 4.50})$$

Aplicando notação diferencial na Equação 4.50 obtêm-se:

$$\Delta P_{fg}/\Delta z = (\Delta P/\Delta z)_g - (\rho_g - \rho_{sus}) \cdot g \quad (\text{Eq. 4.51})$$

$$\partial P_{fg}/\partial z = (\partial P/\partial z)_g - (\rho_g - \rho_{sus}) \cdot g \quad (\text{Eq. 4.52})$$

O segundo membro da Equação 4.52 é similar ao termo encontrado na EDP 1.31, para velocidade. No entanto, o termo $(\partial P/\partial z)_g$ calculado pelo algoritmo, envolve somente a variação de pressão da coluna hidrostática, o que o torna incompleto. Para completá-lo, primeiro se calcula o termo da perda de carga por atrito $(\partial P_{fg}/\partial z)$, pela Equação 4.52, somado-o em seguida com a variação de pressão da coluna hidrostática obtido pelo algoritmo. A densidade da suspensão da Equação 4.52, pode ser calculado conforme a Equação 4.53:

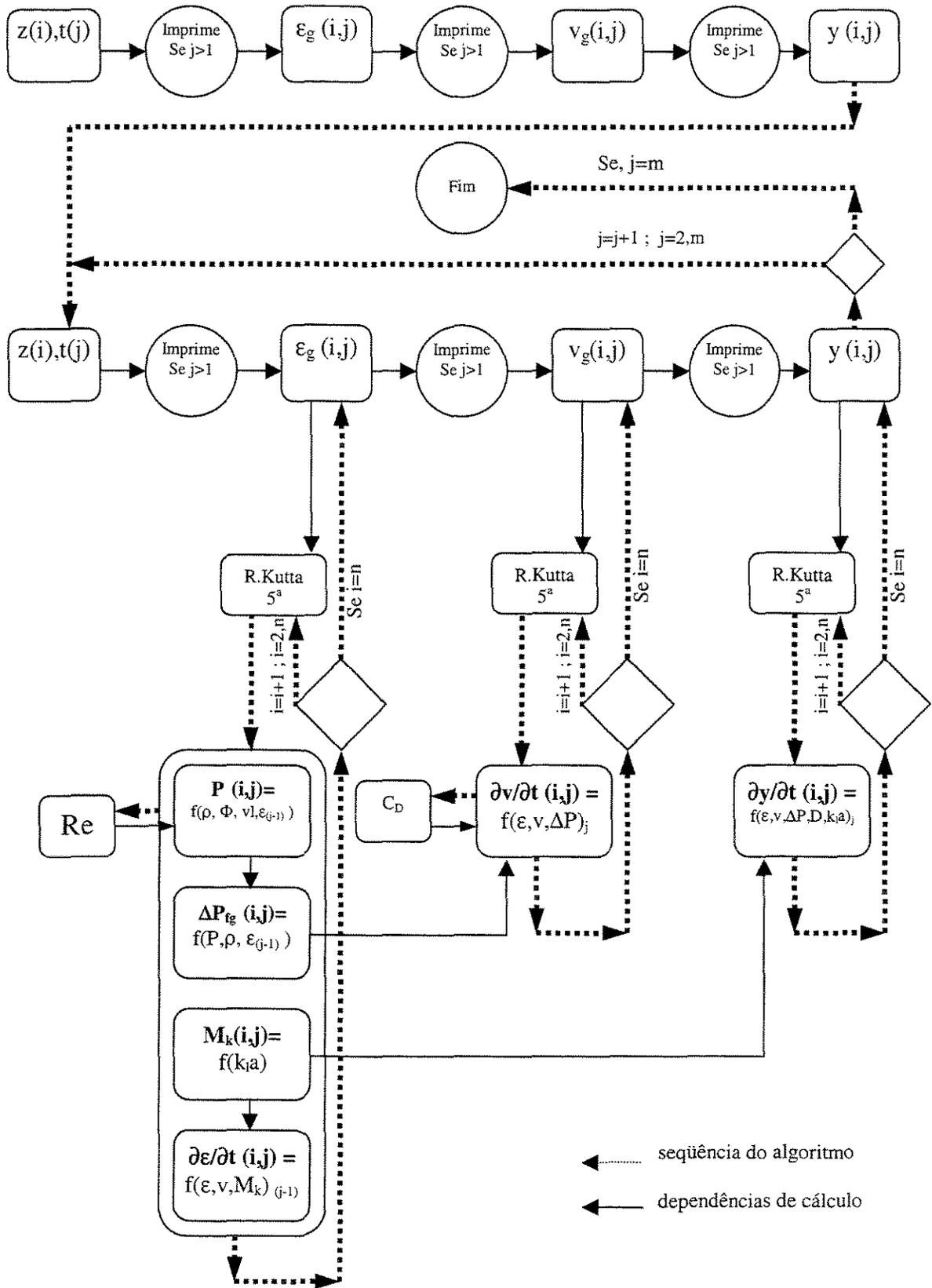
$$\rho_{sus} = \rho_g \varepsilon_g + \rho_l (1 - \varepsilon_g) \quad (\text{Eq. 4.53})$$

A velocidade da suspensão é requisitado na Equação 1.31, para o termo com o coeficiente de arraste. A velocidade é calculada instantaneamente para cada iteração, pois depende da retenção de gás local:

$$v_{sus} = (v_g \rho_g \varepsilon_g + v_l \rho_l (1 - \varepsilon_g)) / \rho_{sus} \quad (\text{Eq. 4.54})$$

Por fim, o coeficiente de transferência de massa e a área interfacial usadas na EDP 1.31 e 1.26 foram determinados pelas mesmas correlações usadas para o Modelo de Equações Empíricas.

4.3.7) - Algoritmo para o Modelo Dinâmico ("riser")



4.4) - Modelo Híbrido Neural (MHN)

4.4.1 - Treinamento

A primeira etapa para o desenvolvimento de um modelo híbrido neural é a determinação das variáveis de entrada significativas e as variáveis de saída principais. Supondo que a rede neural possa ter até 10 neurônios, determina-se o número de pesos. Como mencionado, os pesos corresponderão as conexões entre as variáveis de entrada e os neurônios, os neurônios e as variáveis de saída, o Bias e os neurônios e o Bias e as variáveis de saída. Para o modelo desenvolvido determinou-se que o gás “hold-up”, a velocidade gasosa e a posição axial são as variáveis de entrada necessárias para se obter os valores coerentes de razão molar, que é a variável de saída do modelo. A Figura 4.7, resume as características gerais dispostas na rede neural progressiva MLP a ser usada no modelo híbrido.

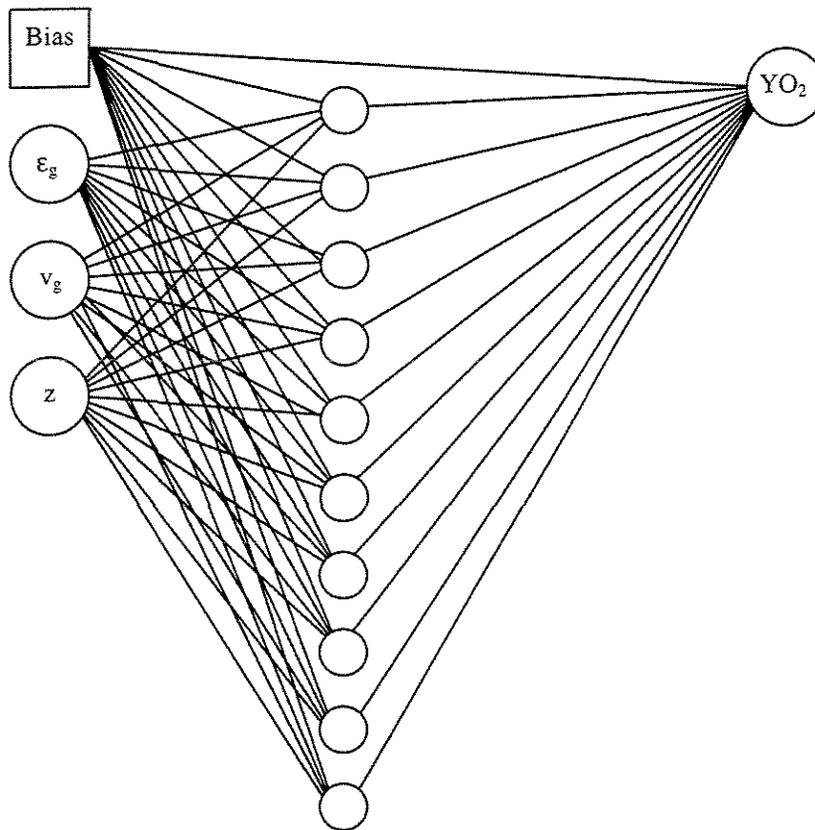


Fig. 4.7 - Conformação da rede neural.

Para a conformação mostrada na Figura 4.7 existem 51 pesos distintos, no entanto, o número de neurônios indicados é uma estimativa máxima. O número de neurônios real que será usado no modelo híbrido será determinado para o caso com menor erro de validação.

No treinamento e na validação foram usados programas desenvolvidos previamente no LOPCA. O programa de validação, denominado *Soft-Sensor (Meleiro 2002)*, também foi usado nas resoluções do MHN. Para a melhor desempenho desses algoritmos, estipulou-se que o número de pares de dados para o treinamento deve ser entre 5 a 10 vezes o número de pesos. Para esse caso, um número de pares de entrada entre 255 e 510 seria satisfatório. Através do MEE foram calculados 420 pares de entradas com suas respectivas saídas. Estes pares foram usados para determinar os pesos. No treinamento, esses pesos foram calculados para um determinado número de iterações e neurônios. Além de calcular os pesos, que serão as constantes determinadas pela amostragem de dados, no treinamento rastreia-se o número mínimo de iterações necessárias para um erro estável e mínimo

Através da Figura 4.8, observa-se claramente que o erro de treinamento se estabiliza acima de 60000 iterações. Portanto, 80000 iterações é mais que adequado para o treinamento com outros números de neurônios.

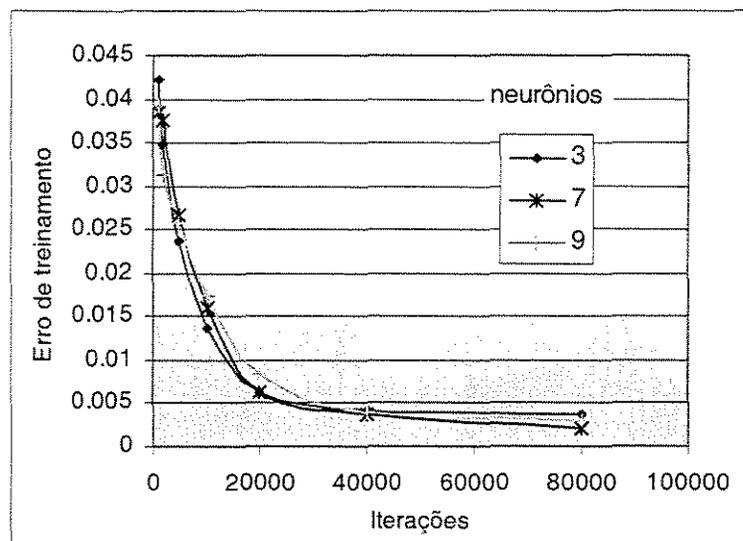


Fig. 4.8 - Erro de treinamento para a configuração proposta.

Foram testados de 3 a 9 neurônios e para todos os casos o comportamento foi o mesmo.

Na validação, 30 pares de dados de entrada e saída foram usados. Esses pares, obviamente, não foram usados no treinamento. A validação determina o erro de aproximação correlacionando os valores de saída e os valores calculados a partir dos pesos. Através da Figura 4.9, pode se determinar o número de neurônios (conjunto de pesos) que teve o menor erro de validação, correspondente a melhor resposta. Portanto, o menor erro, foi obtido para 5 neurônios.

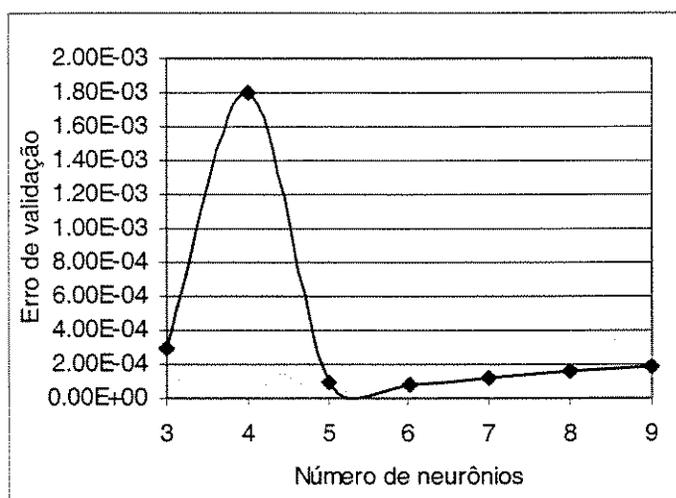


Fig. 4.9 - Erro de validação para a configuração proposta.

Os resultados da validação coincidiram com os resultados do MEE para a mesma vazão de gás (9086 L/h), mesmo para 4 neurônios, que teve o maior erro, a precisão continua aceitável até o penúltimo ponto, quando os resultados começam a destoar a (Fig. 4.10). A confiabilidade da validação pode ser demonstrada traçando o perfil de razão molar de oxigênio, calculado pela validação e pelo MEE. (Fig. 4.11)

Até o momento, determinou-se o conjunto de pesos e o número de neurônios mais apropriado para se empregar no Modelo Híbrido. Como foi mostrado, esse conjunto de pesos é adequado para a interpolação dentro do conjunto de dados

usados no treinamento. No MHN, ir-se-á determinar a capacidade de extrapolação da rede MLP, usando esse conjunto de pesos para o MDD e para o MEE.

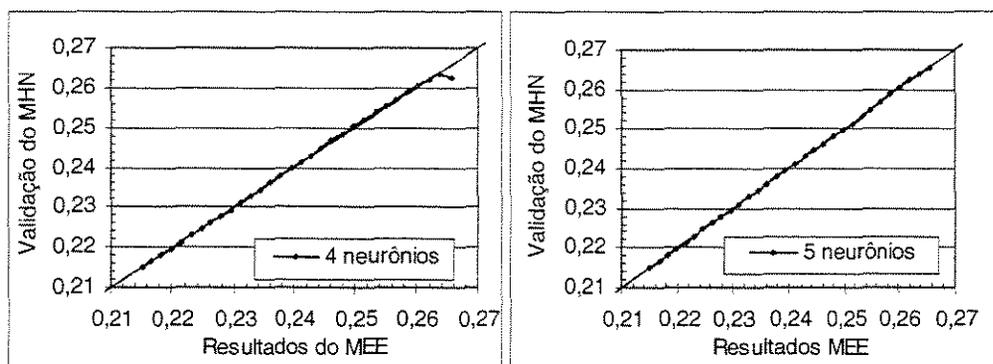


Fig. 4.10 - Avaliação da precisão para o caso de maior erro (4 neurônios) e menor erro (5 neurônios).

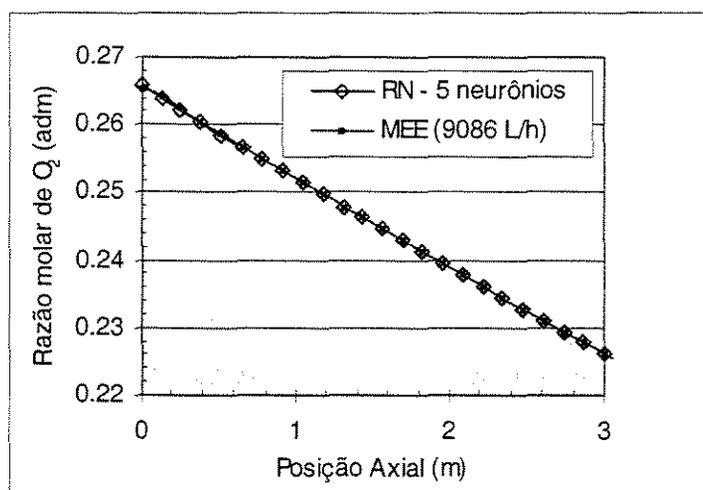


Fig. 4.11 - Perfil de razão molar de O₂ calculado pela rede MLP e pelo MEE.

4.4.2 - Desenvolvimento do Modelo Híbrido Neural

O programa de redes neurais *soft-sensor.f90*, desenvolvido no LOPCA, incorpora a rede MLP. Esse programa tem a mesma estrutura do programa para validação. Portanto, depende de valores determinísticos previamente calculado, para que o erro possa ser determinado. Assim, toda a estrutura do MDD foi mantida. Algumas modificações no programa foram feitas, com o objetivo de criar arquivos de dados passíveis de serem lidos pelo programa *soft-sensor.f90*.

Um dos arquivos gerado pelo MDD é denominado *MHNentrada.txt*. Esse arquivo contém uma coluna com as posições axiais, uma coluna com os resultados transientes de gás “hold up”, uma outra com os resultados da velocidade gasosa e uma quarta coluna com os resultados de razão molar do oxigênio gerado pelo MDD.

Outros arquivos gerado no MDD são o *MHNaxial.txt*, *MHNtempo.txt* e o *MHNdimen.txt*. O primeiro tem os registros da coordenada axial gerada no MDD, enquanto que o segundo tem os registros de intervalos de tempo. Já o terceiro e último, definem o número de linhas e colunas do MDD, ou em outras palavras, a dimensão da matriz do arquivo de saída. O número de pontos dessa matriz coincidirá com o número de pontos que será gerado no programa de redes neurais (*soft-sensor.f90*).

Com o arquivo de pesos gerado no treinamento (*pesos.txt*) e o arquivo *MHNentrada.txt*, o programa *soft-sensor* é acionado e determina-se os resultados pela a rede neural MLP, gerando o arquivo de saída *soft-sensor.txt*.

Para que o arquivo final tivesse o formato matricial equivalente aos resultados gerado no MDD, foi criado o programa *MHNlink.for*. Esse programa usa os arquivos *MHNaxial.txt*, *MHNtempo.txt*, *MHNdimen.txt* e o *softsensor.txt*. Sua finalidade é converter os resultados em um formato adequado. O arquivo final têm esses resultados dispostos no arquivo *MHNSaida.txt*.

O diagrama de blocos na figura 4.12 resume o Modelo Híbrido Neural para o “riser” de um reator “air-lift” .

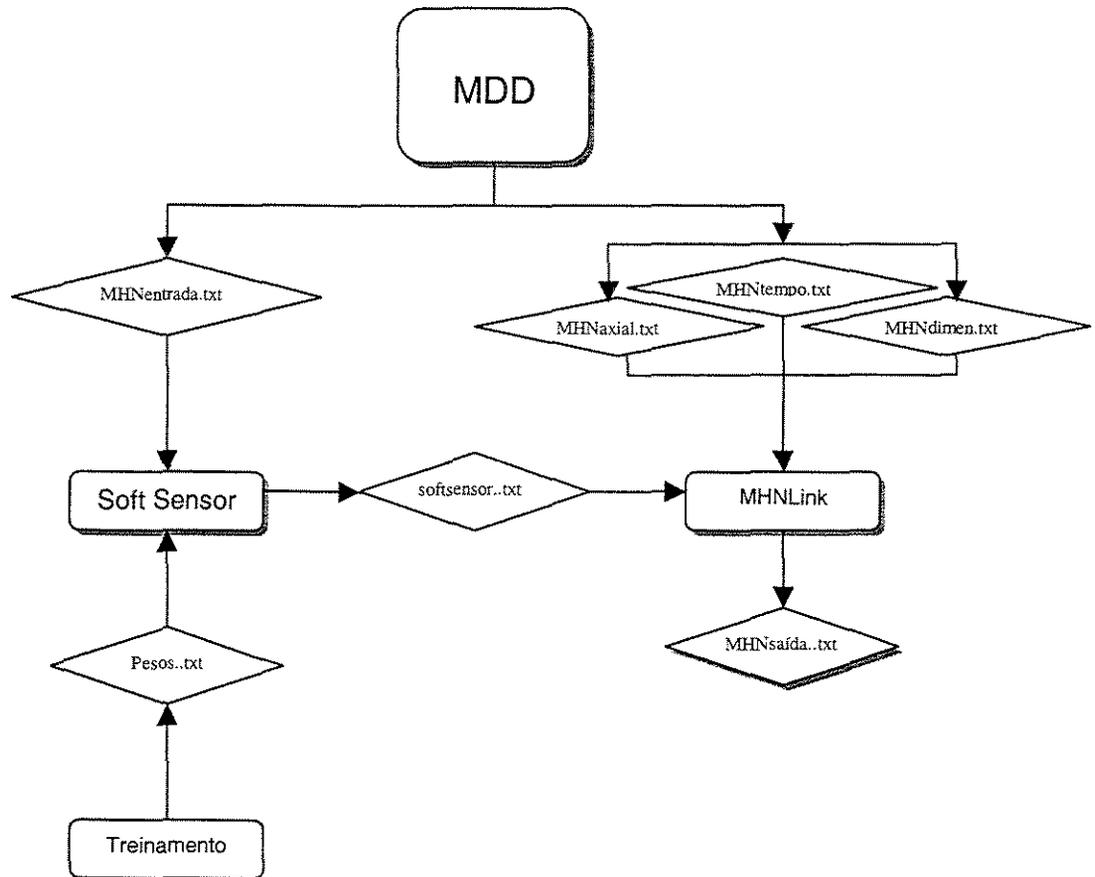


Fig. 4.12 - Representação esquemática do Modelo Híbrido Neural.

4.5) – Conclusão

Todas as equações que foram usados nos programas, as condições de contorno e fronteiras dos sistemas, os algoritmos do programa e o método numérico aplicado foram descritos neste capítulo, que resume sucintamente todo o desenvolvimento dos três modelos: o MEE o MDD e o MHN. Neste capítulo, até o momento, observa-se que o MEE depende de diversas equações algébricas, que o MDD de condições de contorno bem definidas e o MHN de uma malha bem treinada e validada, além de um amplo conjunto de dados. Portanto, todos eles são bem distintos, porém a aplicabilidade para o propósito, que é definir os perfis de transferência do sistema multifásico no “riser”, somente pode ser avaliado e atestado através dos resultados, por sua vez, propostos no capítulo seguinte.

5. - *Resultados*

Neste Capítulo, os resultados de cada um dos modelos são comparados entre si. A performance e a precisão desses resultados refletem a coerência das equações desenvolvidas (Capítulo 2) associado a robustez da metodologia numérica aplicada (Capítulo 4) . Nas páginas seguintes, pode – se observar nitidamente a similaridade dos resultados dos Modelos e concluir de imediato que qualquer um dos programas poderiam ser usados para descrever o "riser" do "air-lift" conforme os propósitos.

5.1) - *Modelo de Equações Empíricas (MEE)*

5.1.1) - *Considerações Preliminares sobre o MEE.*

O resultado do modelo preditivo unidimensional, para sistemas bifásicos estacionário e de regime heterogêneo, mostrou-se preciso em relação aos resultados experimentais determinados. A simulação executada teve algumas pressuposições fundamentais, que simplificaram o algoritmo sem que houvesse distorção dos resultados. Tais suposições consideradas foram:

Hidrodinâmica:

- Condições isotérmica.
- Densidade líquida constante .
- Densidade gasosa descrita pela lei do gás ideal.
- Nenhuma condição de turbulência.
- Bolhas pertencente a uma classe única (diâmetro constante).
- Coalescência e redispersão negligenciados.
- Velocidade superficial equivalente ao coeficiente de distribuição C_I (heurística).

Transferência de massa:

- Dispersão radial uniforme.
- Nenhuma reação de consumo do soluto O_2 .

- Meio para diluição infinita (Não há saturação do meio) $C_{\infty} = 0$ g/L

5.1.2) - Analogia entre os Resultados do MEE e Experimento

Os resultados experimentais foram obtidos no reator “air-lift” da Rhodia e estes foram comparados com o modelo desenvolvido. Os mesmos dados pertinentes ao reator e ao sistema foram usados para a simulação. Os valores encontram-se no Anexo 5.

A taxa de aeração (gás “hold up”) foi calculada e comparada com o resultado experimental. A Figura 5.1 mostra claramente, que o resultado esteve dentro de uma margem de precisão de 10%, mesmo levando em conta todas as considerações anteriores, heurísticas e formulações teóricas para o sistema bifásico água/ar.

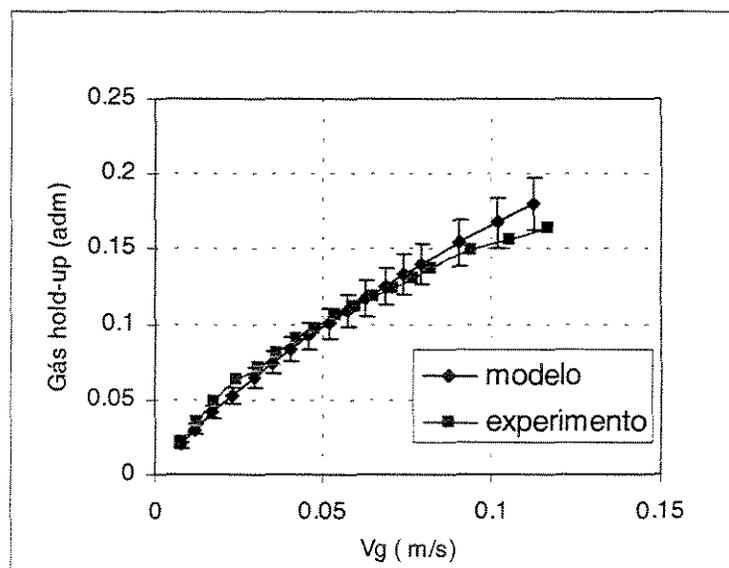


Fig. 5.1 - Perfil de velocidade gasosa e gás “hold up” médio, para o “riser” do reator “air-lift”. (Sistema água-ar).

A tabela com a vazão gasosa e líquida utilizada para a determinação do perfil do modelo, está representado no Anexo 6. Essas são as mesmas vazões que foram medidas no reator da planta piloto. O Q_l foi medido pelo ultra-som, e Q_g pelo rotâmetro.

No modelo, o Q_g foi usado para calcular a vazão molar do inerte (N_2), que é constante ao longo do reator.

O perfil de velocidade líquida e gasosa do modelo e do experimento se ajustaram melhor, pois a velocidade líquida é a mesma para ambos. A velocidade líquida é calculada através do Q_l e a área transversal do “riser”. (Fig.5.2).

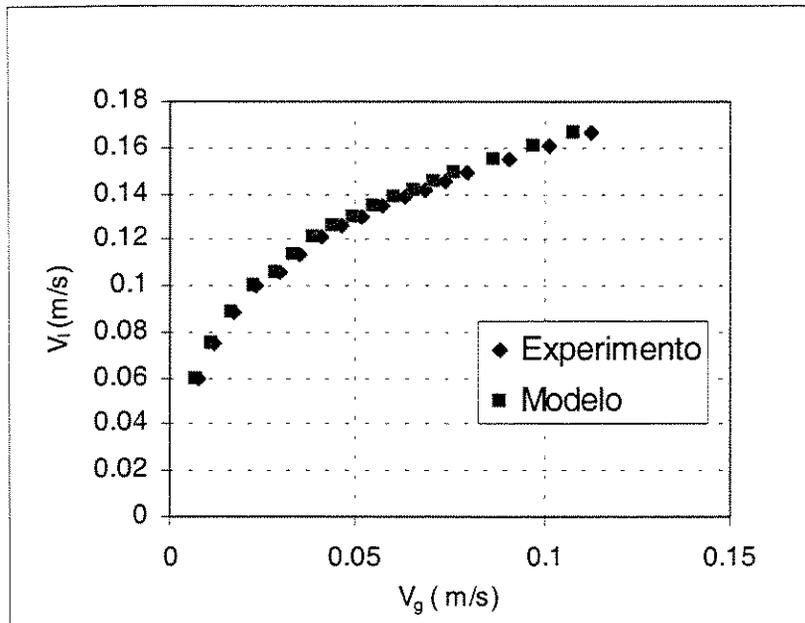


Fig. 5.2 - Perfil de velocidade média líquida e gasosa, para o “riser” do reator “air-lift” (Sistema água-ar).

O “riser” foi dividido em três seções, conforme a disposição dos sensores de pressão no experimento, enquanto que no modelo, o comprimento do “riser” foi segmentado em dez partes e os parâmetros hidrodinâmicos e a razão molar determinados para cada uma dessas partes. (Vide Anexo 7). Na figura 5.3, os perfis experimentais para as três seções, não tiveram um comportamento que pudesse ser previsto pelo modelo em questão. Observa-se que na seção superior, a coalescência das bolhas prevaleceu, enquanto que outros fenômenos de interação caracterizaram o perfil de gás “hold up” para a seção inferior.

A mistura diluída de butanol, inibiu a coalescência e re-estabeleceu o perfil desejado da seção superior do “riser”. (Fig. 5.4)

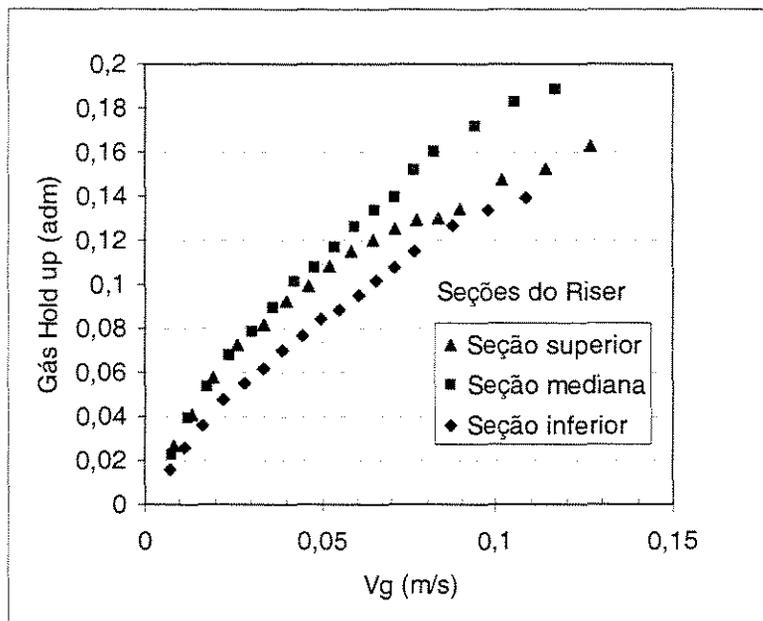


Fig. 5.3 – Perfis experimentais para o sistema bifásico água-ar.

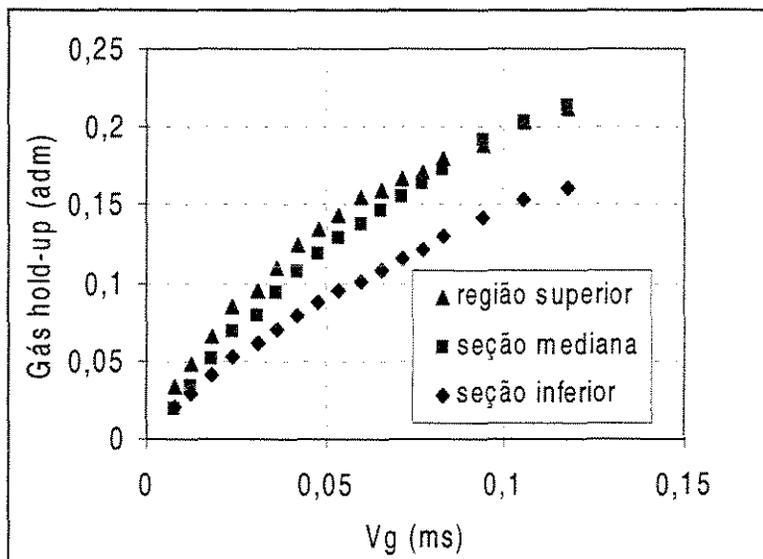


Fig. 5.4 – Perfis experimentais para a mistura água-ar-butanol.

Já os perfis determinados pelo modelo não descrevem os efeitos de coalescência e outros efeitos de interação mais complexos, o que justificaria a inexatidão dos resultados. (Fig. 5.5)

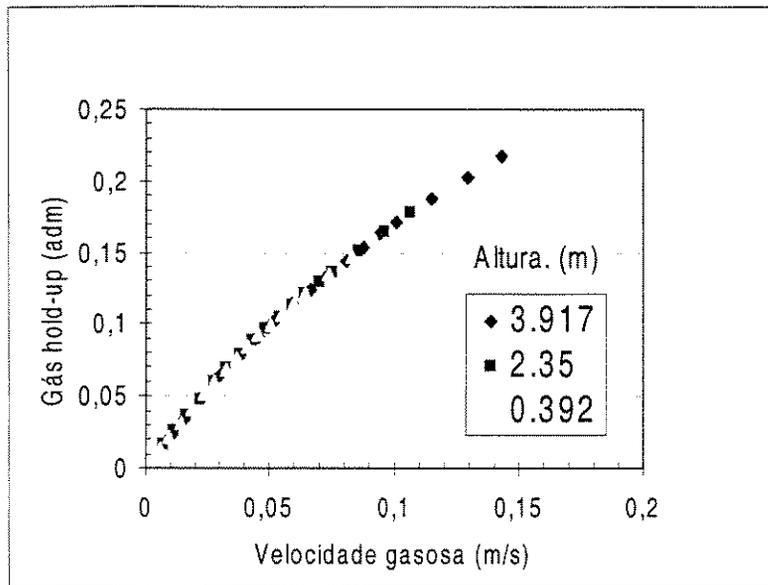


Fig. 5.5 – Perfis numéricos do gás “hold up” na superfície líquida (3.917 m), no meio da coluna de líquido e próximo ao distribuidor (0.392 m) (Sistema água-ar).

É natural que o perfil de velocidade do gás “hold up” ou da fração molar mude os seus aspectos na transição de regime. Principalmente para o gás “hold up”, a coalescência no final da coluna faz diminuir a taxa de aeração relativa ao centro da coluna, transformando o perfil linear num perfil parabólico (Fig. 5.6).

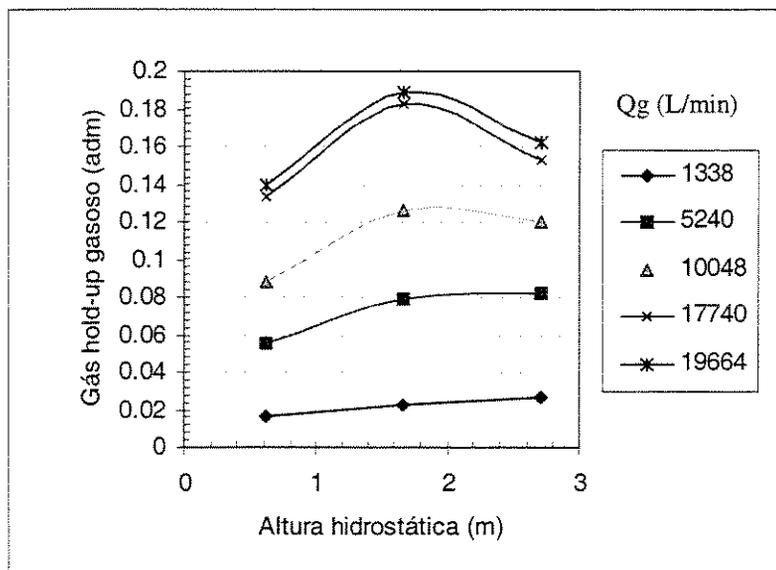


Fig. 5.6 - Transição do perfil de gás “hold up” médio para faixa de vazão gasosa estudada. Resultados do experimento no “air lift”. (Sistema água-ar).

As duas maiores vazões de gás da Fig. 5.6 foram escolhidas como caso estudo, para o MDD por facilitarem a transferência de massa no meio, como se é de se esperar quando há uma velocidade gasosa significativa.

Se no mesmo sistema bifásico for adicionado um componente inibidor de coalescência como o butanol, o perfil para as duas maiores vazões se atenuarão, os valores médios de gás “hold up” aumentarão em torno de 10% e o aspecto será parecido com o perfil para vazões baixas. Isto confirma as suspeitas do efeito da coalescência no aspecto da curva.

Os resultados gerados pelo MEE não incluem os efeitos da coalescência na retenção gasosa. Porém, os resultados são precisos para vazões baixas ou mesmo para vazões altas na presença de um inibidor de coalescência. Uma das vantagens no desenvolvimento do modelo, é a possibilidade de seccionar o “riser” e calcular os parâmetros para qualquer ponto no eixo axial. Um exemplo disto está representado na Fig. 5.7, em que os perfis de gás “hold up” são discriminados para as vazões de gás no domínio estabelecido na simulação e no experimento.

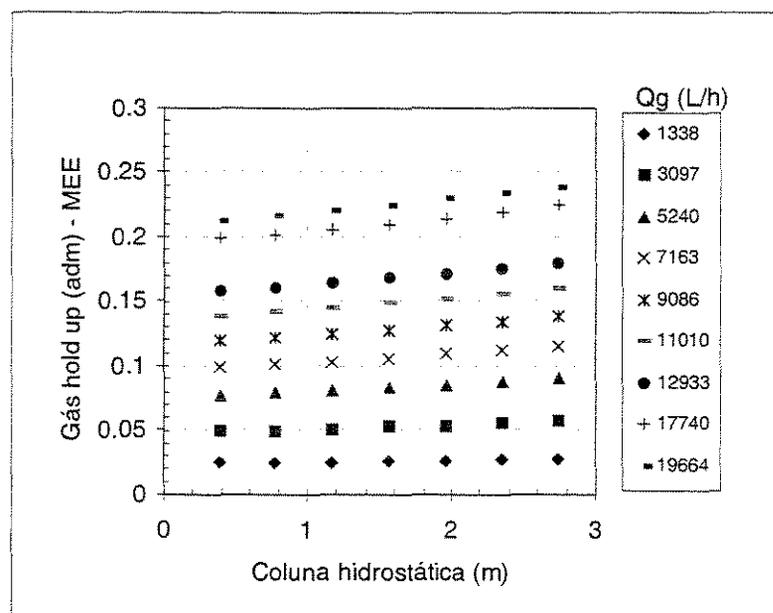


Fig. 5.7 – Transição do perfil de gás “hold up” médio para faixa de vazão gasosa estudada. Resultados do Modelo de Equações Empíricas. (Sistema água-ar).

Os perfis para a velocidade gasosa, determinado empiricamente e pelo MEE, são mais precisos que os perfis de retenção gasosa para a faixa de vazão estudada. Isso significa que o aspecto do perfil de velocidade gasosa mantém-se praticamente o mesmo para qualquer vazão. (Fig. 5.8 e 5.9)

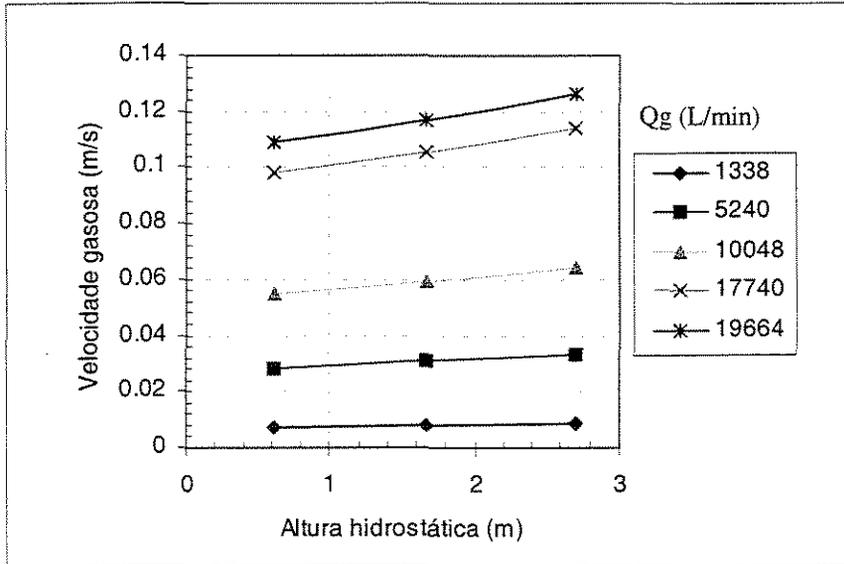


Fig. 5.8 - Transição do perfil da velocidade gasosa média para faixa de vazão gasosa estudada. Resultados do experimento no “air lift”. (Sistema água-ar.)

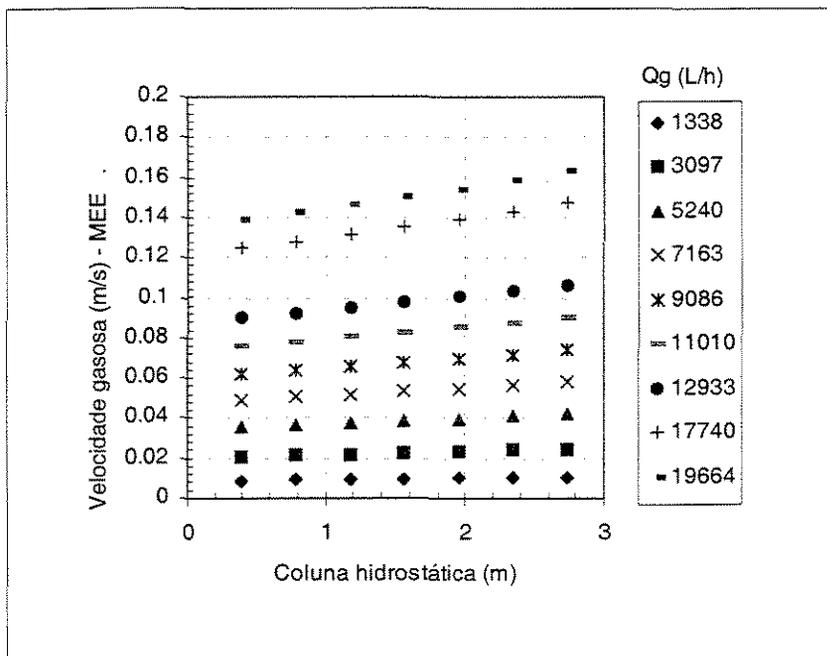


Fig. 5.9 - Transição do perfil da velocidade gasosa média para faixa de vazão gasosa estudada. Resultados do MEE. (Sistema água-ar.)

A perda de carga por fricção também foi estimada na simulação. O padrão obtido foi equivalente ao reportado por *A. D. Hudson (1996)* para reatores de alta recirculação (Fig. 5.10) . No experimento, a transferência de massa não foi quantificada, mas pode ser prevista pela simulação numérica.

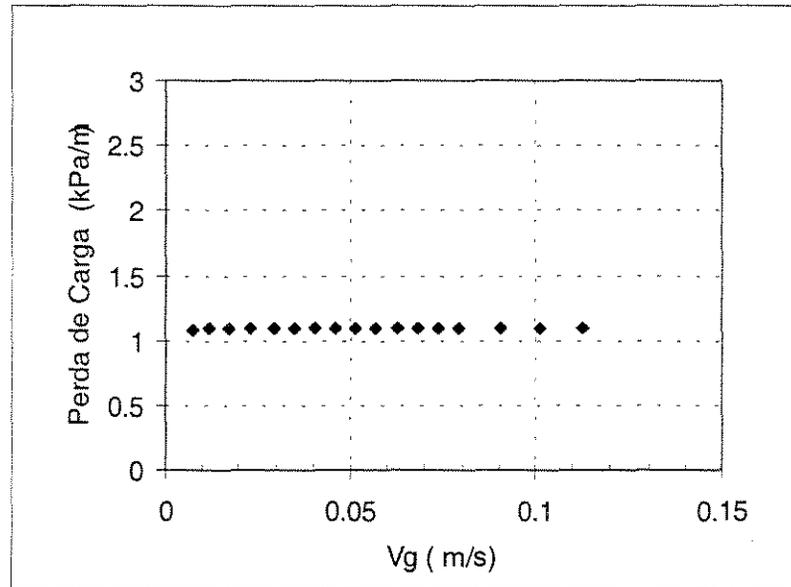


Fig. 5.10 – Perda de Carga gerada pela mistura bifásica no “riser”. (Sistema água-ar).

Por fim, os dois perfis de razão molar do O_2 na fase gasosa para a menor e a maior vazão gasosa trabalhada, encontram-se na Fig. 5.11 . Todos os outros perfis para as vazões intermediárias, estão entre as duas seqüências da Fig. 5.11.

O gráfico seguinte mostra que a concentração de oxigênio da fase gasosa aumenta continuamente se a vazão for aumentada. Isso é factível, já que a quantidade de ar que é injetado torna-se muito maior. Para uma vazão infinita, a curva de tendência da seqüência se tornaria uma reta horizontal com valores equivalente a razão molar de entrada. Isso significaria que a quantidade de soluto transferida para o líquido seria desprezível em relação a quantidade de soluto presente na fase gasosa, o que gera variações imperceptíveis, e portanto um perfil constante.

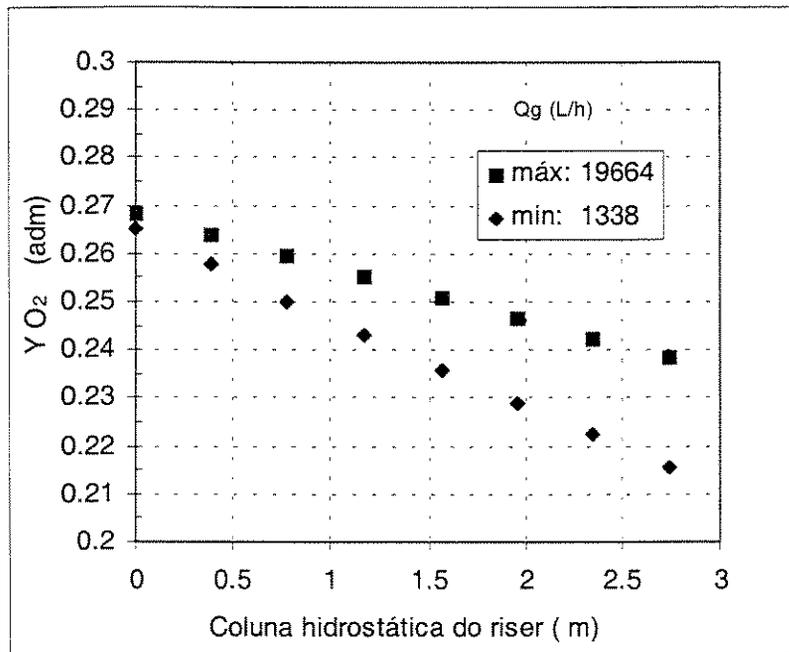


Fig. 5.11 – Perfis de razão molar de oxigênio para menor e maior vazão de ar. Resultados do MEE. (Sistema água-ar.).

5.2) - *Modelo Determinístico Dinâmico*

5.2.1) - *Considerações Preliminares sobre o MDD.*

O Modelo Determinístico Dinâmico (MDD), gerou resultados similares aos perfis obtidos pelo Modelo Determinístico de Equações Empíricas (MEE). Os resultados gerados são para o sistema bifásico (Água-Ar) e para duas coordenadas propostas: tempo e variação do comprimento axial. Os resultados foram obtidos considerando toda coluna hidrostática existente no reator, ou seja 3,92 m. Porém, a coluna cilíndrica do “riser” tem uma altura hidrostática de 3,0 m, e somente até esta altura, os valores poderão ser expressos. O restante não deverá ser modelado com as equações diferenciais propostas, por se tratar da transição para a zona de mistura, cujo comportamento é diferente a do “riser”.

É importante mencionar, que os parâmetros adotados para a resolução numérica do MDD, foram também usados para o MEE. Somente assim, mantendo os parâmetros constantes, é possível estabelecer uma analogia entre ambos os resultados. Assim como o MEE, a simulação executada teve algumas pressuposições fundamentais. Tais pressuposições não afetaram o desempenho do modelo e algumas foram consideradas como premissas:

Hidrodinâmica:

- Condições isotérmica.
- Densidade gasosa constante para um intervalo pequeno do eixo axial. É importante esclarecer que a densidade gasosa não foi considerada constante para as diversas posições do reator determinadas numericamente, mas foi considerada constante para determinação da equação 1.26 cuja notação diferencial sugere um intervalo discreto entre dois pontos.
- Densidade gasosa determinada dinamicamente pela equação do gás ideal.
- Equações desenvolvidas no Cp 1, para o MDD, não envolve termos de turbulência.
- Bolhas pertencente a uma classe única (diâmetro constante).
- A Força Magnus e A Força de Massa Agregada foram desconsideradas. Tais forças são aplicadas na fronteira do sistema e consideram a velocidade relativa do líquido com as bolhas e rotação das bolhas que implicam num acúmulo de gás no centro da coluna.
- A única força interfacial existente é a força de atrito interfacial, caracterizada pelo coeficiente de arraste.

Transferência de massa:

- Dispersão radial uniforme.
- Nenhuma reação de consumo do soluto O_2 .
- Meio para diluição infinita (Não há saturação do meio) $C_\infty = 0$ g/L

5.2.2) - Analogia entre os Resultados do MDD e MEE.

Supondo que haja inibição de coalescência para vazões altas, os perfis estarão atenuados e terão um aspecto linear, como sugeridos pelos perfis obtidos através dos resultados do MEE e indicados nos Gráficos 5.7, 5.9 e 5.11.

Se a vazão for aumentada de 17740 para 19964 L/h espera-se que haja uma transição do perfil da retenção gasosa semelhante ao Gráfico 5.12.

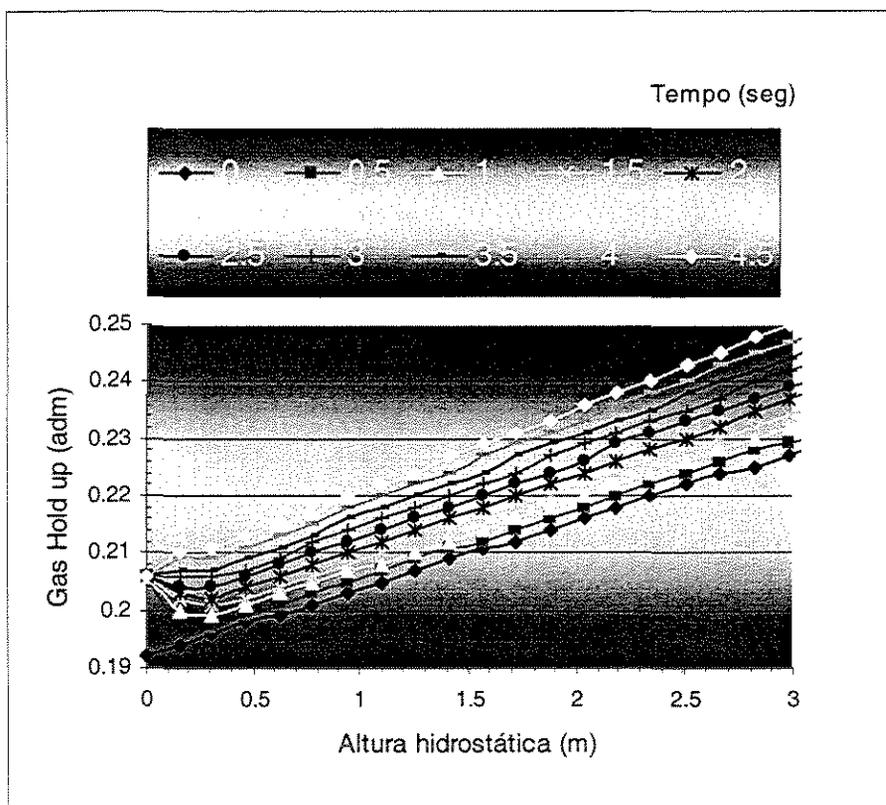


Fig. 5.12 - Transição do perfil da retenção gasosa.

Como foi mencionado, o aumento da vazão gera um incremento instantâneo do gás “hold up” de 0,19 para aproximadamente 0,205 na posição $z=0$. A partir disso, o MDD determina as adaptações dos perfis, que são fisicamente coerentes até atingirem o novo regime permanente. O perfil para o regime permanente determinado pelo MDD, será supostamente o perfil para 4,0 seg, que é o perfil cuja perturbação está alinhada com os resultados gerados.

Comparando o perfil do MDD para 4,0 seg com o perfil gerado pelo MEE para a vazão de 19964 L/h, confirma-se esta suposição (Fig. 5.13):

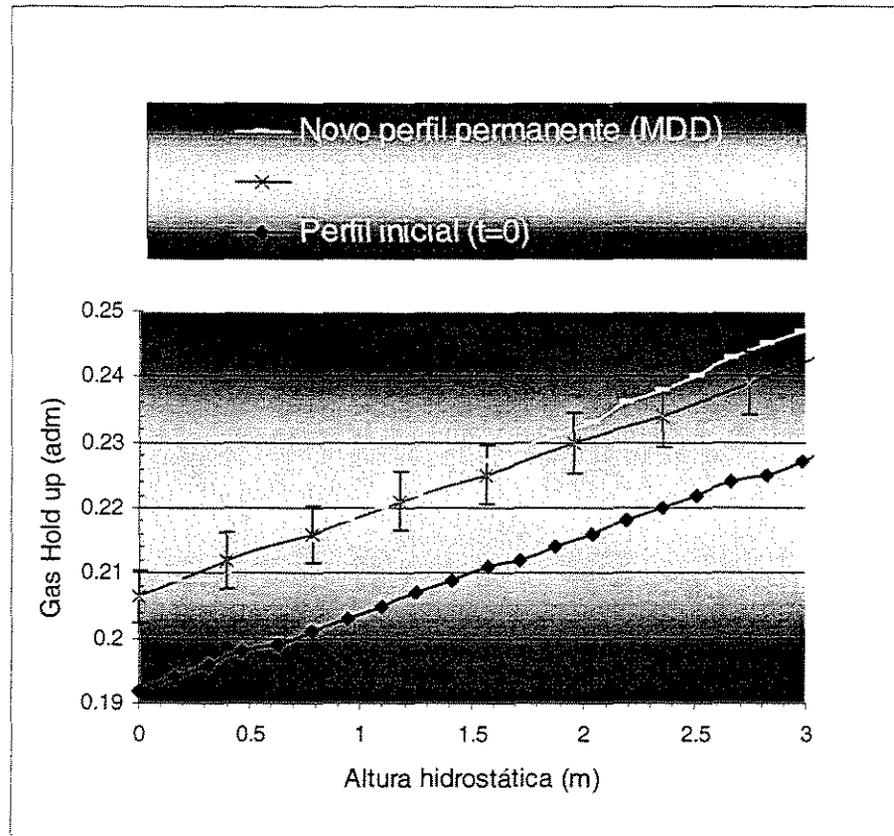


Fig. 5.13 - Analogia entre os Modelos de Equações Empíricas e o Modelo Dinâmico para a retenção de gás.

Para a velocidade gasosa, a perturbação de 0,12 para 0,136 m/s causada pelo incremento da vazão, gerou uma transição do perfil conforme a Figura 5.15. A sensibilidade do programa possibilita afirmar que o perfil para o novo regime permanente obtido do MDD, que venha a se enquadrar nos resultados para o MEE, é obtido entre 8 a 10 seg. Comparando os resultados entre si (Fig. 5.14), determina-se que o perfil de menor desvio será para 8 seg. As barras de erros estão ajustadas para um desvio de 2%.

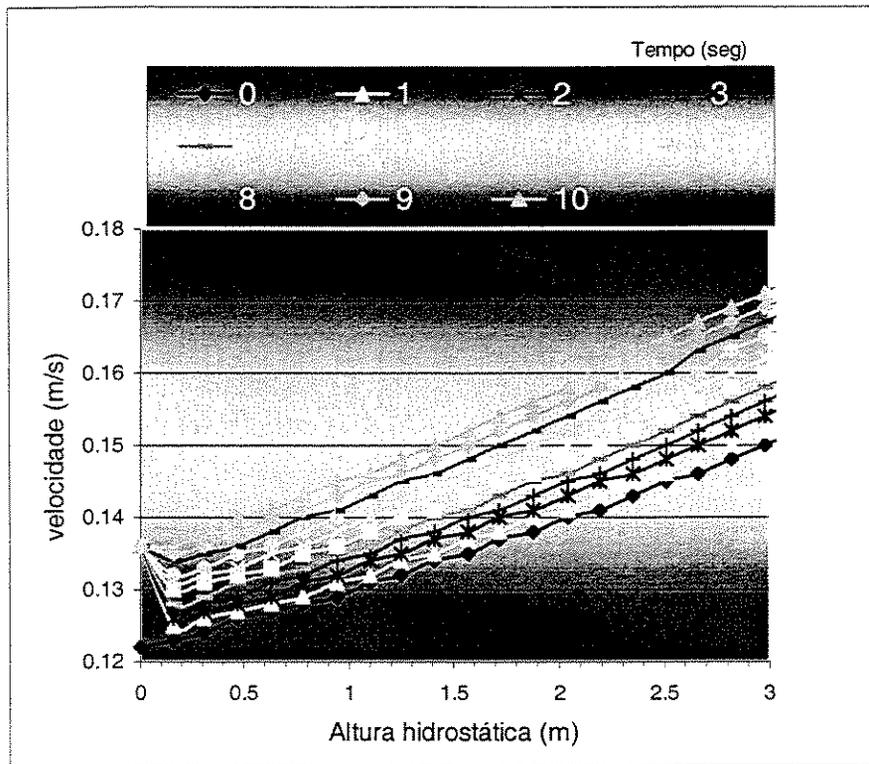


Fig. 5.14 - Transição do perfil para velocidade gasosa.

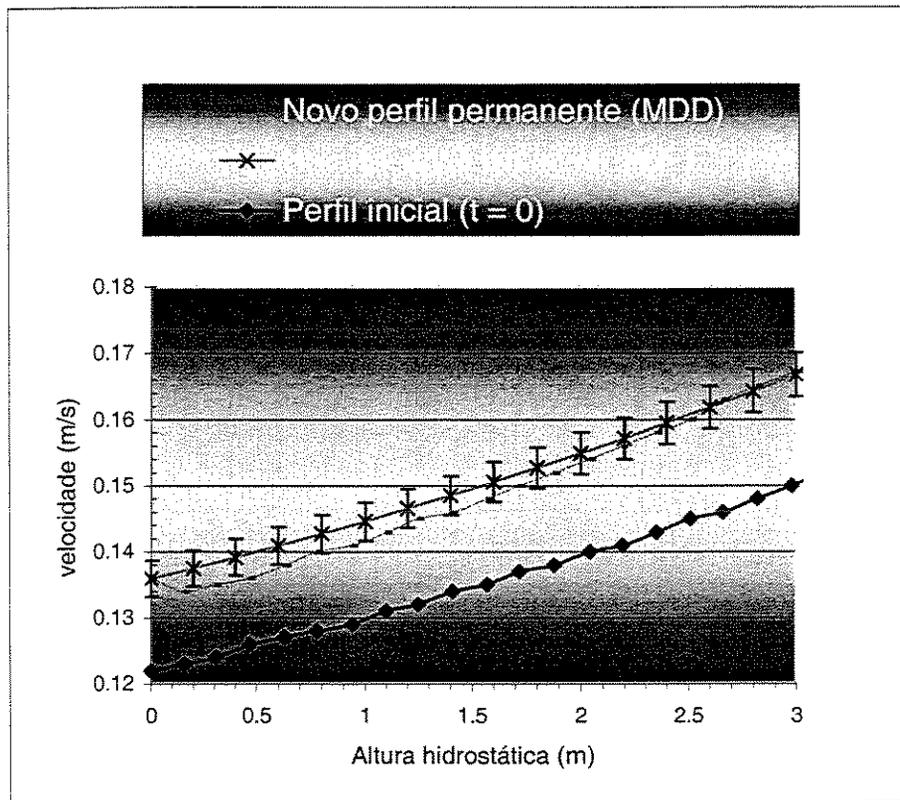


Fig. 5.15 - Analogia entre os Modelos de Equações Empíricas e o Modelo Dinâmico para velocidade gasosa.

Por fim, o perfil para transferência gasosa fica submetido aos valores de gás “hold up” e velocidade gasosa, já que não há perturbação na concentração de oxigênio do ar injetado. Nesta situação, a determinação do perfil final para fração molar dependerá do tempo determinado para os perfis de retenção e da velocidade de gás. Para o primeiro, o tempo foi de 4 segundos contra 8 segundos do segundo. Para a fração molar, a evolução do perfil até 5 segundos superestima (Fig. 5.16) a concentração de oxigênio, de acordo com o MEE (Fig. 5.17). No tempo de 4 segundos, satisfará tanto o novo perfil permanente para retenção gasosa quanto para a fração molar. Porém, para o tempo de 5 segundos a velocidade não terá atingido o novo regime permanente. Isso sugere que o MEE superestima os valores de velocidade gasosa, e que os valores de velocidade são menores.

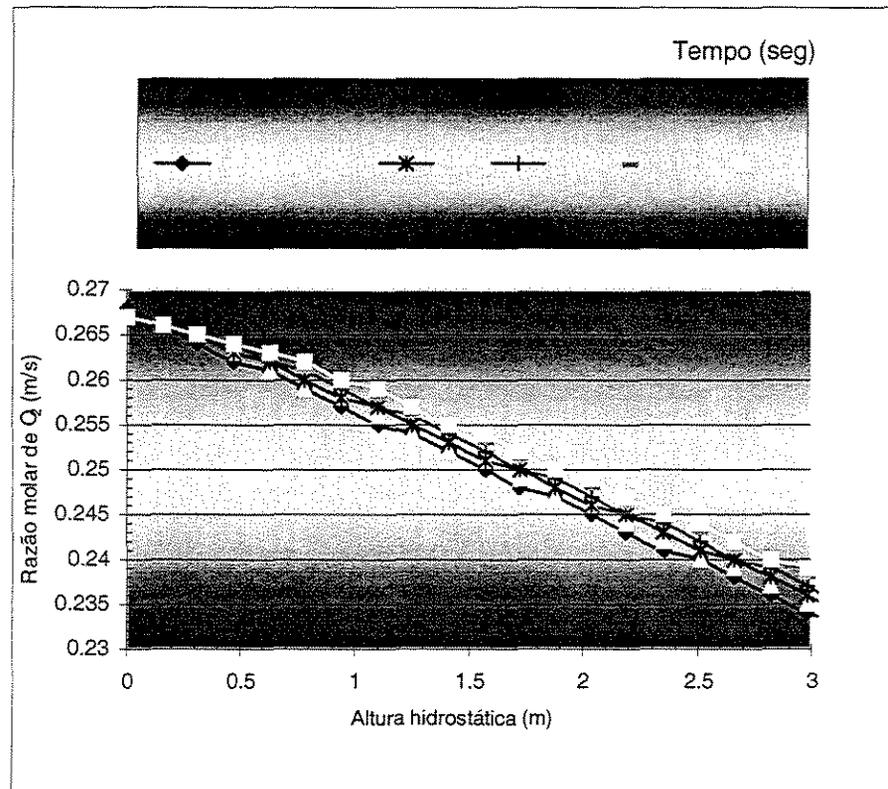


Fig. 5.16 - Transição do perfil para fração molar.

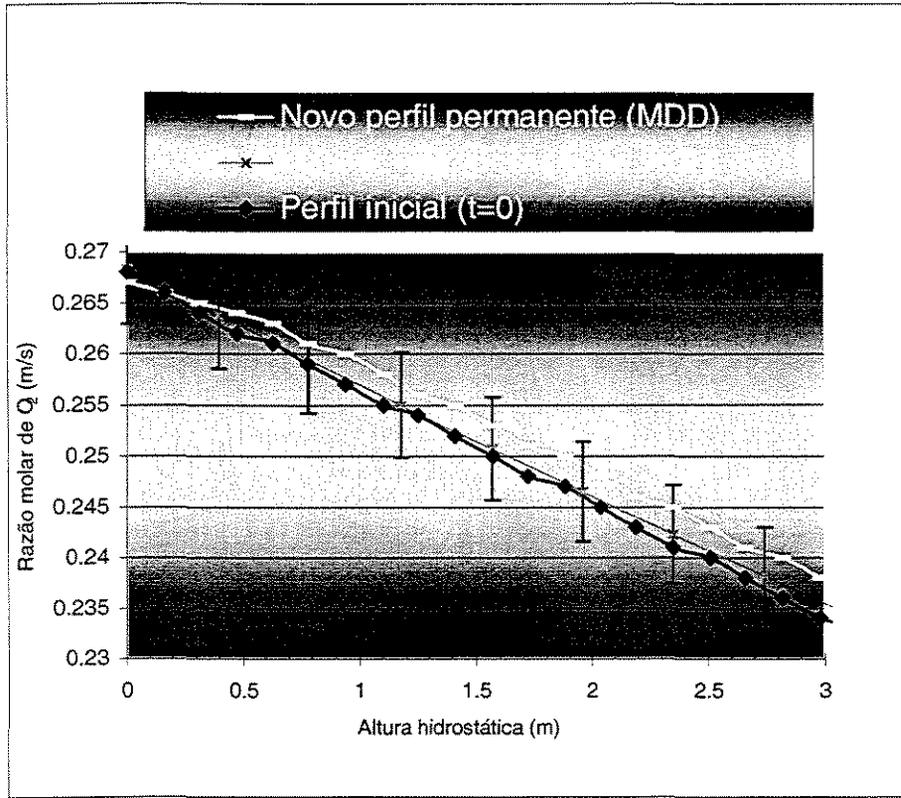


Fig. 5.17 - Analogia entre os Modelos de Equações Empíricas e o Modelo Dinâmico para fração molar.

O termo de perda de carga para a fase gasosa inclui a perda de carga por fricção na coluna somado a diferença de pressão hidrostática. A velocidade gasosa é muito sensível a variação de perda de carga, e apesar de ser relativamente constante, as mínimas variações mostradas no Gráfico 5.18 são muito significantes para a determinação dos valores coerentes da velocidade do gás.

A medida que aumenta o gás “hold up” a fase líquida se torna mais gaseificada e a densidade da suspensão cai de tal forma, que a diferença de pressão hidrostática é reduzida. Isso é claramente mostrado na Figura 5.18, em que há uma redução contínua da perda de carga. Por outro lado, quanto menor a perda de carga maior será a velocidade de ascensão das bolhas, já que haverá menor perda de energia cinética entre dois pontos da coluna.

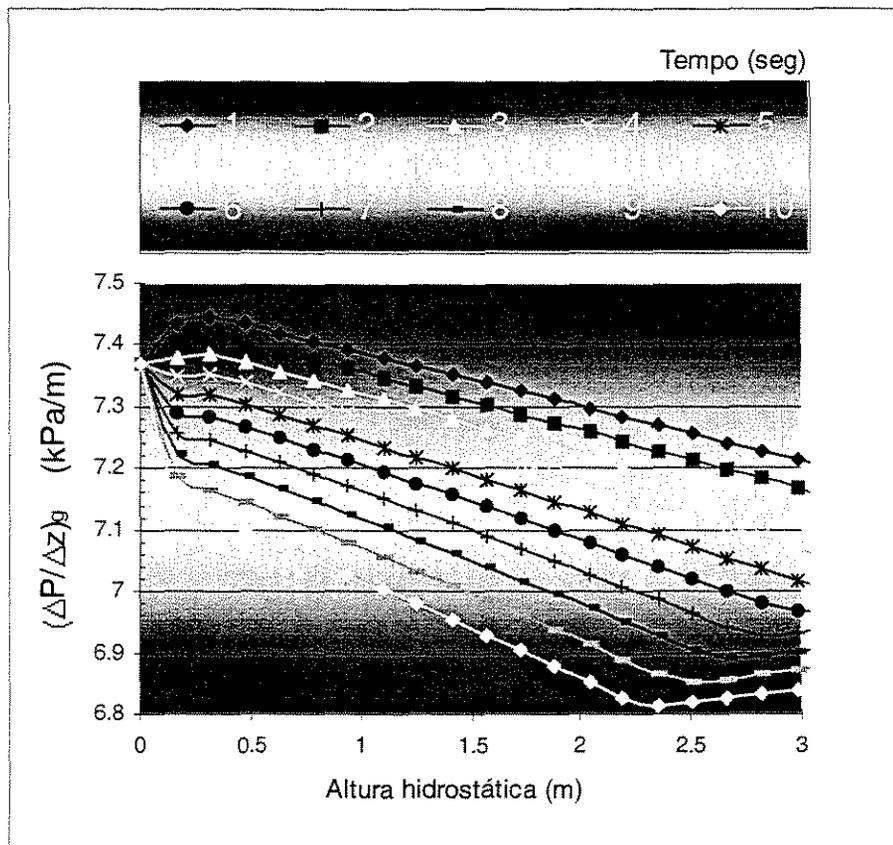


Fig. 5.18 - Evolução do perfil de perda de carga para fase gasosa.

5.2.3) - Análise da Performance da Metodologia Numérica.

A obtenção de perfis robustos, que indicam tendências bem definidas como as dos perfis mostrados até o momento, não foram obtidos de imediato. A princípio, a precisão e oscilação dos valores não foram satisfatórios com as Equações 3.29 e 3.30 como mostrado na Fig. 5.19.

Para aumentar a precisão e reduzir a oscilação, foi proposta uma Equação que envolve maior número de pontos na discretização: (Eq. 5.1 e 5.2):

$$\partial y / \partial z = (-y_{i-3} + 6y_{i-2} - 18y_{i-1} + 10y_i + 3y_{i+1}) / (12.h) \quad (\text{Eq. 5.1})$$

$$\partial^2 y / \partial z^2 = (-y_{i-3} + 4y_{i-2} + 6y_{i-1} - 20y_i + 11y_{i+1}) / (12.h^2) \quad (\text{Eq. 5.2})$$

Além disso, os intervalos de integração foram reduzidos 10 vezes o que possibilitou a discretização em intervalos menores. Tal procedimento possibilitou obter os resultados mostrados no Gráfico 5.12.

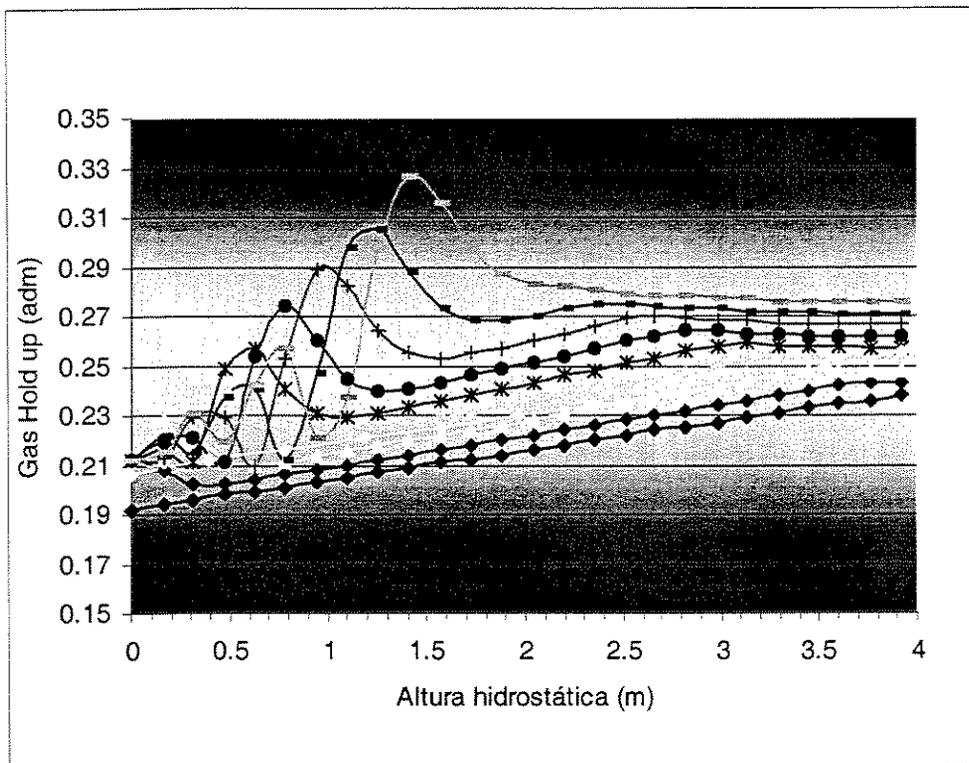


Fig. 5.19 - Evolução do perfil de gás "hold up" para discretizações de baixa precisão. (Tempo de 0 a 12 seg.)

5.2.4) - Analogia entre os Resultados de Modelos Dinâmicos com EDPs Completas e Simplificada.

O desenvolvimento completo do MDD, demonstrou a relevância que existe em considerar todos os termos pertinentes da equação modelo, evitando fazer simplificações sem fundamentos firmes, com heurísticas infundadas ou até mesmo considerando valores médios para parâmetros que variam ao longo do perfil axial ou no tempo. Até o momento, só foram encontrados artigos que descrevessem as equações modelos com diversas simplificações, desconsiderando dessa forma, alguns termos pertinentes ao modelo. Essas simplificações facilitam a resolução,

mas não garantem uma precisão dos resultados. Além disso, nenhuma das publicações encontradas desenvolveram modelos para o “riser” de forma integrada como foi proposta nesta tese. Ou seja, os modelos de transferência de massa ou hidrodinâmico eram desenvolvidos separadamente. Este procedimento gera imprecisão dos resultados ou mesmo previsões erradas, já que a EDP de transferência de massa, por exemplo, dependem dos valores pontuais de retenção e velocidade de gás. Os valores pontuais são obtidos resolvendo o algoritmo, com modelos integrados de hidrodinâmica e de transferência de massa, em forma de matriz e usando os pontos precedentes nos próximos cálculos.

O Gráfico 5.20 mostra o resultado da Equação Modelo 1.26 considerando um valor de gás “hold up” médio para qualquer posição axial e considerando o termo $\partial \epsilon / \partial z$ igual a zero para qualquer situação, sendo esta última, uma consideração comum de *Dhaouadi (1996)*.

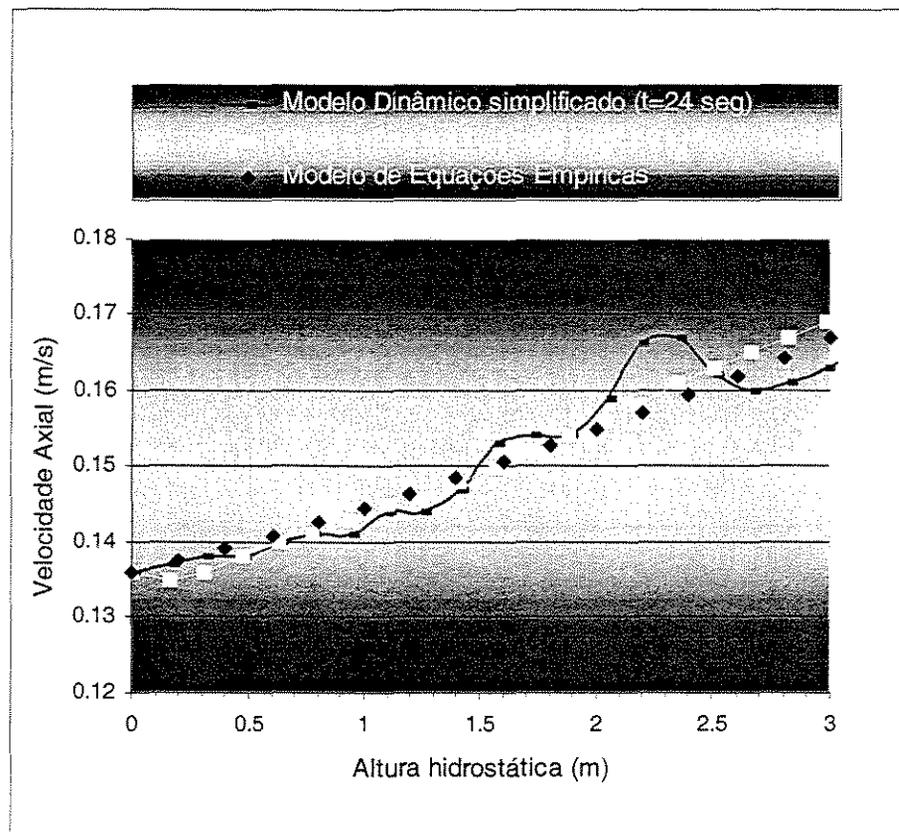


Fig. 5.20 - Comparações dos resultados para a velocidade gasosa axial.

Os resultados para o modelo simplificado, além de implicar em variações da tendência do perfil, divergem do tempo de convergência necessário para atingir o novo regime permanente. Para o modelo simplificado, o tempo foi de 24 seg. enquanto que para o modelo dinâmico integrado foi de 9 seg.

5.3) - *Modelo Híbrido Neural (MHN)*

A parte determinística relativa a transferência de massa foi substituída pela rede neural tipo MLP. Essa rede foi treinada e validada (Capítulo 3) e o número de neurônios mais apropriado determinado. Os perfis transientes de “gás hold up” e velocidade de gás gerados pelo MDD, foram usados num programa de redes neurais (*soft-sensor.f90*) e o novo perfil transiente de transferência de massa determinado via redes neurais. (Figura 5.21).

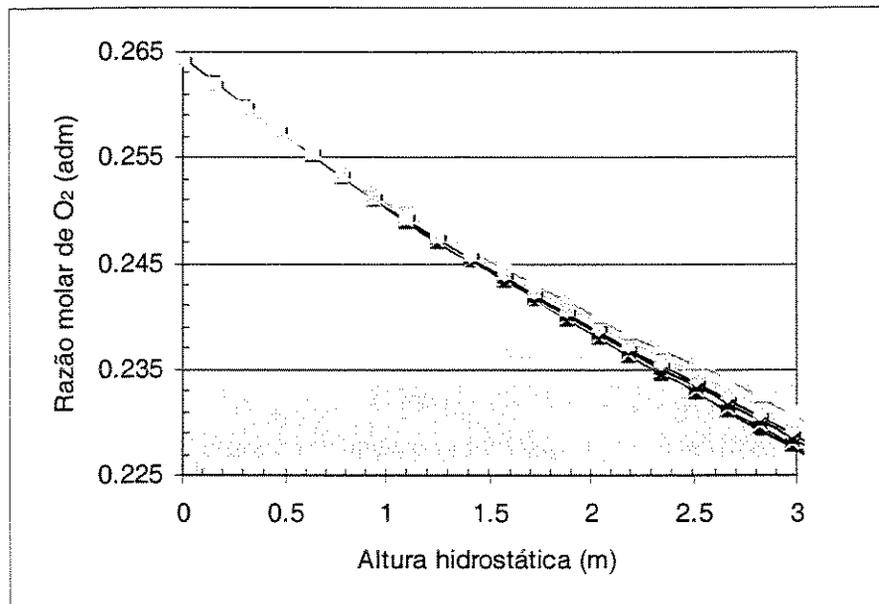


Fig. 5.21 - Perfil transiente de transferência de massa gerado pelo MHN para o “riser” do reator “air-lift”. Transição de 0 (perfil inferior) a 10 segundos (perfil superior).

5.3.1) - Analogia entre o Resultado do MHN, MEE e MDD

No capítulo 3, foi mostrado que a rede neural tipo MLP interpolou os resultados com uma excelente precisão. No entanto, uma das propostas de estudo desta tese é avaliar a capacidade de extrapolação da rede neural. Para tal, foram usados dados para o treinamento aquém dos perfis de transição. Os resultados gerados foram comparados com os resultados dos modelos previamente criados. (Figura 5.22 e 5.23).

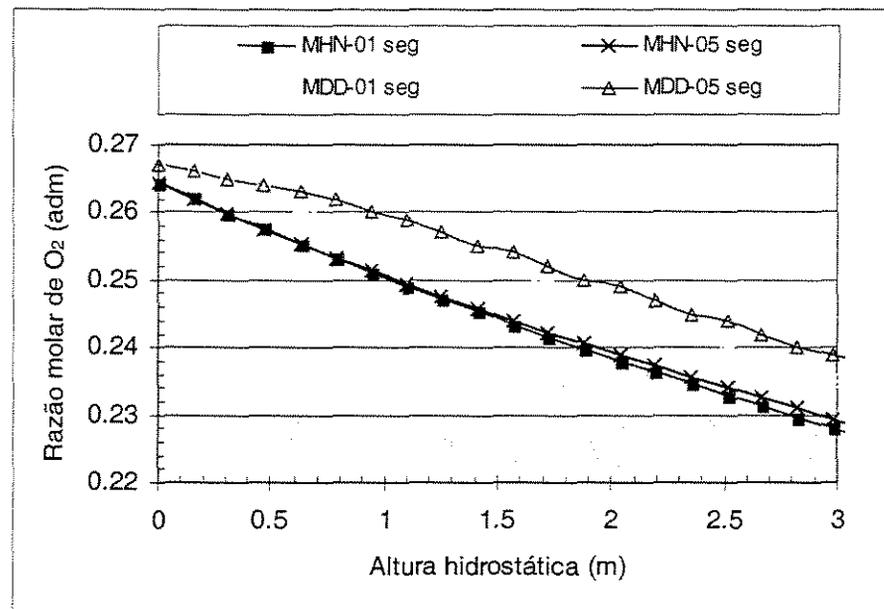


Fig. 5.22 - Analogia entre os perfis iniciais e finais da transição de transferência de massa no “riser” do reator “air-lift”.

Como se observa, a rede MLP não é apropriada para predição de resultados extrapolados. Houve significativa perda de precisão e o erro aumenta a medida que os resultados se afastam do intervalo de treinamento. Porém a magnitude dos resultados e a tendência da curva foram preservadas, o que mostra um potencial para extrapolação nas fronteiras do intervalo de treinamento.

Ao comparar os perfis dos três modelos desenvolvidos, observa-se nitidamente que a precisão relativa ao MDD foi menor que a do MEE. (Figura

5.22 e 5.23) o que demonstra que o MDD desenvolvido, super-estima os valores de razão molar.

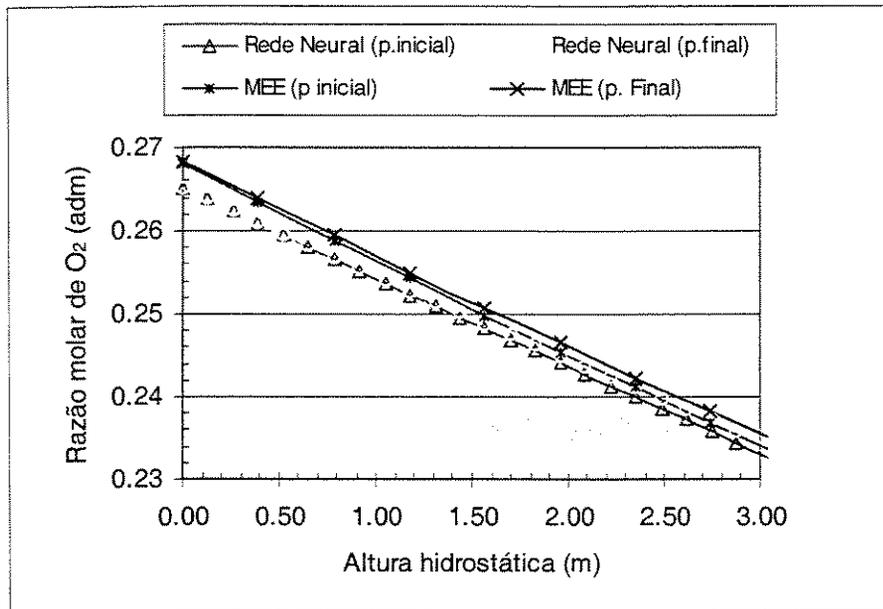


Fig. 5.23 - Analogia entre o perfil inicial ($Q_g=17740$ L/h) e final ($Q_g=19664$ L/h) do MHN e MEE para o perfil de transferência de massa no “riser” do reator “air-lift”.

6. - Conclusões e Sugestões de Trabalhos Futuros

6.1) - Progressos e Discussão dos Resultados

A partir dos dados obtidos da planta piloto, posteriormente foi desenvolvido o Modelo de Equações Empíricas (MEE) abrangendo as equações fundamentais para o tipo de reator estudado. Em seguida, desenvolveu-se um Modelo Determinístico Dinâmico (MDD), completamente integrado com vários programas. Os mesmos parâmetros que foram empregados para o MEE foram usados para o MDD, o que possibilitou analisar o desempenho de ambos os modelos estudados e concluir o trabalho com qualidade desejada. Numa terceira etapa foi criado o Modelo Híbrido Neural, cuja hidrodinâmica continuou sendo definida pelo MDD, porém a predição do perfil de transferência de massa passou a ser feita pela rede neural tipo MLP.

Apesar de ter se estudado três sistemas multifásicos diferentes, o sistema com a mistura orgânica específica, não pôde ser discutido com detalhes devido as restrições industriais e devido a inexistência de dados gerais referente as suas características. O sistema ar-água com butanol diluído foi usado unicamente para verificar o seu comportamento não coalescente frente a um sistema bifásico clássico bem conhecido. Dessa forma, o único sistema bifásico que tinha todos requisitos para o desenvolvimento do modelo foi o sistema ar-água.

Os modelos desenvolvidos foram de fundamental importância para a análise de tendência e comportamento dos parâmetros em questão. A convalidação dos resultados pelo experimento atestaram a confiabilidade desses modelos.

O Modelo de Equações Empíricas (MEE) foi desenvolvido exclusivamente para gerar perfis iniciais, estabelecer as perturbações para o MDD e gerar o banco de dados para o MHN. Porém, o MEE mostrou-se uma ferramenta apropriada para avaliação dos parâmetros pertinentes a hidrodinâmica e transferência de massa de um “riser”. Além disso, o Modelo possibilita determinar perfis de

transferência de massa e hidrodinâmica com qualquer variação inicial na fração molar da mistura gasosa O_2-N_2 .

Os resultados obtidos pelo Modelo Dinâmico superaram as expectativas em relação a metodologia numérica usada. Tanto a precisão quanto a robustez do algoritmo dinâmico foram boas mediante as perturbações geradas nas condições iniciais. As EDPs desenvolvidas proporcionaram as mesmas tendências que as equações algébricas e EDOs do MEE. Os resultados mostram claramente que os perfis de gás “hold up” e fração molar estão em fase temporal, mas que a velocidade gasosa se encontra defasada em relação ao perfil final. Este resultado sugere que a velocidade gasosa seja menor que os valores encontrados pelo modelo MEE.

O algoritmo do Modelo Determinístico Dinâmico não precisou de um otimizador e dispensou a maioria das equações empíricas presumidas para o MEE. Essa característica exclusiva do MDD, dispensa as considerações relativa ao tipo de fluxo da mistura multifásica. Para o MEE, o tipo de fluxo foi classificado como sendo heterogêneo e pré estabelecer essa condição foi necessária para definir o conjunto de equações que seriam usadas.

Para o MDD, novos programas com algoritmos completos e integrados foram desenvolvido. Todos os termos pertinentes as EDPs foram incluídos no programa, nenhum termo foi desprezado ou simplificado. Todos os parâmetros que mudam conforme as posições axiais e temporais foram pontualmente calculados. Nenhuma média relativa e heurística infundada foi acrescentada para simplificar a resolução, portanto, não foram economizados esforços para definir os resultados com coerência, conforme as equações propostas. E por fim, a resolução foi obtida além das fronteiras do sistema, mas apresentadas dentro dos limites do “riser” que é o objeto de estudo deste projeto.

As três ferramentas desenvolvidas tem aplicações particulares e diferenciadas. O MEE é ideal para a avaliação dos parâmetros de projeto, processo e operacionais. Tais como: o aumento do diâmetro do “riser”, da área interfacial

ou o atrito. O MDD é adequado para simulação e modelagem do processo. Prediz a influência de perturbações e poderia ser incorporado numa metodologia de controle. Pode abordar reações químicas e outras forças interfaciais. O MHN é uma excelente ferramenta para interpolar, mas perde sua eficiência na predição de valores na extrapolação. É uma ferramenta que tem grande desempenho em sistemas não lineares, portanto poderia ser eficazmente usado na predição de sistemas multifásico coalescentes. Além disso, dispensa a determinação empírica de uma série de parâmetros, o que o torna adequado para sistemas industriais desconhecidos.

Por fim, o trabalho desenvolvido e concluído nesta Tese, complementou os trabalhos precedentes sobre modelagem em reatores “air-lift”. O mérito desse progresso foi atribuído aos Modelos Integrados desenvolvidos, que abordaram transferência de massa e hidrodinâmica simultaneamente; ao desenvolvimento de três algoritmos essencialmente diferentes, cujos programas geraram resultados semelhantes; e ao tipo de analogia que pôde ser feita entre os três Modelos, correlacionando-os entre si e estabelecendo a utilidade e aplicabilidade dos Modelos conforme os propósitos industriais.

6.2) - Novas Propostas de Estudo

A partir desses modelos, novas propostas de estudos podem ser desenvolvidos e aprimorados. Uma delas leva em consideração uma reação química de oxidação no MDD, que pode ser incorporado facilmente nas EDPs. Outra proposta envolve a expansão do modelo para todo o reator, incorporando o “downcomer” e as zonas de separação e mistura, uma terceira proposta envolveria a reestruturação do modelo MHN para incorporar os efeitos de coalescência e novos ensaios com sistemas industriais; a incorporação de rotinas que possam identificar simultaneamente o regime da mistura, a definição dos perfis radiais para o “riser” e a determinação do volume líquido no reator para caracterização da cinética reacional quando envolver reação química.

7. - Bibliografia

BAUER, M.; EIGENBERGER, G. – A Concept For Multi-Scale Modeling Of Bubble Columns And Loop Reactors – Chemical Engineering Science, 54, 5109-5117. (1999).

BECKER, S; DE BIE, H.; SWEENEY, J., - Dynamic Flow Behavior in Bubble Columns- Chemical Engineering Science Vol. 54, p. 4929-4935, (1999).

BHAT, N; MC AVOY, T.J., - Use of Neural Nets for Dynamic Modelling and Control for Chemical Process Systems -, Comput. Chem. Eng., Vol 14 4/5, 573-582, (1990).

CAMARASA, E. ET AL. – Development of a complet Model for an “Air-Lift” Reactor” – Chemical Eng. Science, Vol. 56 pp. 493-502, 2001.

CHISTI, M.Y.; HALARD B. E MOO-YOUNG, M. – Liquid Circulation In Air-Lift.- C.E.S, 43, 451-457 (1988).

CHITRA, S. P., - Neural Net Applications in Chemical Engineering -, AI Expert p 7-11, (1992).

COCKX, A. ET AL. – Numerical Simulation And Physical Modeling Of Hydrodynamics In An Air-Lift Internal Loop Reactor. - C. E. S, 52, 3787-3793, (1997).

COUVERT, A.; ROUSTAN, M.; CHATELLIER P. - Two-phase Hydrodynamic Study of a Rectangular Air-lift Loop Reactor with a Internal Baffle - , C.E.S., Vol. 54, p 5245-5252, (1999).

DHAOUADI, H., ET AL. – Hydrodynamics Of An Air-Lift Reactor: Experiments And Modeling. - C.E.S, 51, 2625-2630, (1996).

DECKWER, W. -D., - Bubble Columns Reactors -, J. Wiley & Son LTD, Chichester (GB), (1992).

DHAOUADI, H.; PONCIN, S; HOURNUT, J.M; WILD, G; OINAS, P.; KORPIJARVI, J., - Mass Transfer in na External-loop Air-lift Reactor: Experiments and Modeling -, C.E.S., Vol. 52, p 21-22, (1997).

DUDUKOVIC, M.P.; DEVANATHAN, N; HOLUB, R;, - Multiphase Reactors – Models and Experimental-Verification - , Revue de L Institut Francais Du Petrole, Vol 46: (4), p 439, (1991).

DUDUKOVIC, M.P.; LARACHI, F; MILLS, P.L, - Multiphase Reactors – Revisited- , C.E.S, Vol 54, p 1975-1995, (1999).

FREITAS, C.; FIALOVÁ, M.; ZAHRADNIK, J. ; TEIXEIRA, J.A, - Hydrodynamic Model for Three-phase Internal and External-Loop Airlift Reactors - C.E.S, Vol 54, p 5253-5258, (1999).

ELK, VAN E. P.; ET AL – **Modelling Of Gas-Liquid Reactors – Stability And Dynamic Behavior Of Gas-Liquid Mass Transfer Accompanied By Irreversible Reaction.** – C.E.S, 54, 4869-4879, (1999).

GE S. S.; HANG, C.C; ZHANG, T.- **Nonlinear Adaptative Control Using Neural Networks and its Application to CSTR Systems** -, Vol 9(4), p 313-323, (1999).

GRACE, J. R., ET AL – **Shapes And Velocitie Of Single Drops And Bubbles Moving Freely Through Immiscible Liquids** – Trans. Inst. Chem. Eng. 54, 167-173 (1976).

HINKS, W. J., ET AL. – **Prediction Of Flow Rates And Stability In Large Scale Airlift Reactors.** - C.E.S, 34, 51-57, (1996).

HILLMER, G.; WEISMANTEL, L. E HOFMANN H. – **Investigations And Modelling Of Slurry Bubble Columns.** – C.E.S, 49, 837-843, (1994).

HONG-TE, SU; BHAT, N.; MINDERMAN;, P. A.; MC AVOY, T.J. - **Integrating Neural Networks with First Principles Models for Dynamic Modeling** -, IFAC Symposia, Serie 2, Apr 26-29 (1992).

HOSKINS, J.C; HIMMELBLAU, D.M, - **Artificial Neural Network Models of Knowledge Representation in Chemical Engineering** - , Computers Chemical Engineering, Vol 12, p 881-890, (1988).

HUNT, K. J.; SBARBARO, D., ZBIKOWSKI, R.; GAWTHROP, P. J., - **Neural Networks for Control Systems – A Survey** -, Automatica, Vol 28, cp 6, 1083-1112, (1992).

JOSHI, J. B. E LALI, A. M. – **Velocity – Hold-Up Relationship In Multiphase Sparged Reactors In Frontiers In Chemical Engineering** – Vol 1 Wiley Eastern Ltd., New Delhi), pp 314 – 329, (1984).

JOSHI, J. B.; RANADE, V. V.; GHARAT, D. S. E LELE, S. S. – **Sparged Loop Reactors.** – The canadian journal of chemical engineering, V.68, 705-741, (1990).

JOSHI, J.B. & SHAH, Y. T, - **Hydrodynamic And Mixing Models For Bubble Columns.**- Trans. Inst. Chem. Engin. 57 (1981) 165-99.

KASTANEK, F., ZAHRADNIK, J. KRATOCHVIL, J. E CERMAK, J. – **Modelling Of Large Scale Bubble Column Reactor For Non Ideal Gas-Liquid Systems** – in frontiers in Chemical engineering, Wiley Eastern Ltd, Nova Delhi, pp 330-344. Wiley Eastern (1984).

LAIN, S.; BRÖDER, D; SOMMERFELD, F. – **Experimental And Numerical Studies Of The Hydrodynamics In A Bubble Column** – Chemical Engineering Science, 54, 4913-4920, (1999).

MACIEL, R. F.; AGUIAR, C. , - **Modeling and Optimization of Pulp and Paper Processes using Neural Networks** - , Computers Chem. Eng. Science, Vol. 22, Suppl., p. S981-S984, (1998).

MERCHUCK, J. C & STEIN, J.C. – **Local Hold-up and Liquid Velocity in Air-lift Reactors** – Aiche J., 27, 377-388 (1981).

MODAK, S. Y.; JUVEKAR, V. A.; RANE, V. C., - **Dynamics of the Gas-phase in Bubble Columns** - Chem. Engin. & Technology, Vol 16, n5, p303-306, (1993).

OINAS, P.; TURUNEN I, HAARIO H., - **Experimental-Design with Steady and Dynamic- Models of Multiphase Reactors** - , C.E.S, Vol 47: (13-14), p3689-3696, (1992).

OINAS, P.; TURUNEN I, HAARIO H., - **Experimental-Design with Steady and Dynamic- Models of Multiphase Reactors** - , C.E.S, Vol 47: (13-14), p3689-3696, (1992).

OREJAS, A. J., - **Modelling and Simulation of a Bubble-Column Reactor with External Loop: Application to Direct Chlorination of Ethylene.**- C.E.S, Vol. 54, p. 5299-5309, (1999).

RANADE, V.V. E JOSHI, J. B. – **Transport Phenomena In Multiphase Reactor** – Proceedings of International Symposium on Transport Phenomena in Multiphase Systems, BHU Press, Varanasi, India, in press, (1988).

SAVKOVIC-STEVANOVIC, J - **Networks for Process Analysis and Optimization: Modeling and Applications** -, Computers & Engineering, v18 (11-12), p 1149-1155, (1994).

SCHENKER, BENEDIKT; AGARWAL, MUKUL., - **Predictive Control of a Bench-Scale Chemical Reactor Based on Neural-Network Models** -, IEEE Transactions on Control Systems Technology", Vol. 6, p 388-400, (1998).

SHAH, Y. T.; KELKAR, B. G.; GODBOLE, S.P; DECKWER W.D., - **Design Parameters Estimation for Bubble Columns Reactors** -, Aiche Journal, Vol. 28, p 353-379, (1982).

SNAPE, J. B. ET AL – **Liquid-Phase Properties and Sparger Design Effects in a External-Loop Air-lift Reactors.** - C.E.S, v. 50, p3175-3186, (1995).

TENDULKAR, SHILPA B.; TAMBE, S.; CHANDRA, I.; RAO, P.V; NAIK, R.V; KULKARNI, B.D, - **Hydroxilation of Phenol to Dyhydroxybenzenes: Development of Artificial Neural Network Based Process Identification and Model Predictive Control Strategies for a Pilot Plant Scale Reactor** -, Industrial & Engineering Chemistry Research, Vol 37 (6), p 2081-2085, (1998).

SOKOLICHIN, A. E EIGENBERGER, G – **Dynamic Numerical Simulation Of Gas-Liquid Two Phase Flows.** – C. E. S, 52, 611-626, (1997).

SOKOLICHIN, A. E EIGENBERGER G. – **Gas-Liquid Flow In Bubble Columns And Loop Reactors: Part I. Detailed Modelling And Numerical Simulation.** – C.E.S, 49, 5735-5746, (1994).

VAN ELK , E.P; BORMAN P.C; KUIPERS, J.A.M.; VERSTEEG, G.F, - **Modelling of Gas-Liquid Reactors – Stability and Dynamic Behaviour of Gas-Liquid Mass Transfer Accompanied by Irreversible Reaction** - C.E.S., Vol 54, p. 4869-4879, (1999).

VERLAAN, P., E ET AL – **Hydrodynamics Of The Flow Transition From A Bubble Column To An Airlift-Loop Reactor.** – J. Chem.. Tech. Biotechnol., v 45, 109-121 (1989).

WALLIS, G.B., - **One Dimensional Two Phase Flow**, 1^a, ed, Mc Graw Hill, New York, (1969).

WU, YUANXIANG; GIDASPOW, DIMITRI – **Hydrodynamic Of Methanol Synthesis In Gas-Liquid Slurry Bubble Column Reactors.** - Chemical Engineering Science, 55, 573-587, (2000).

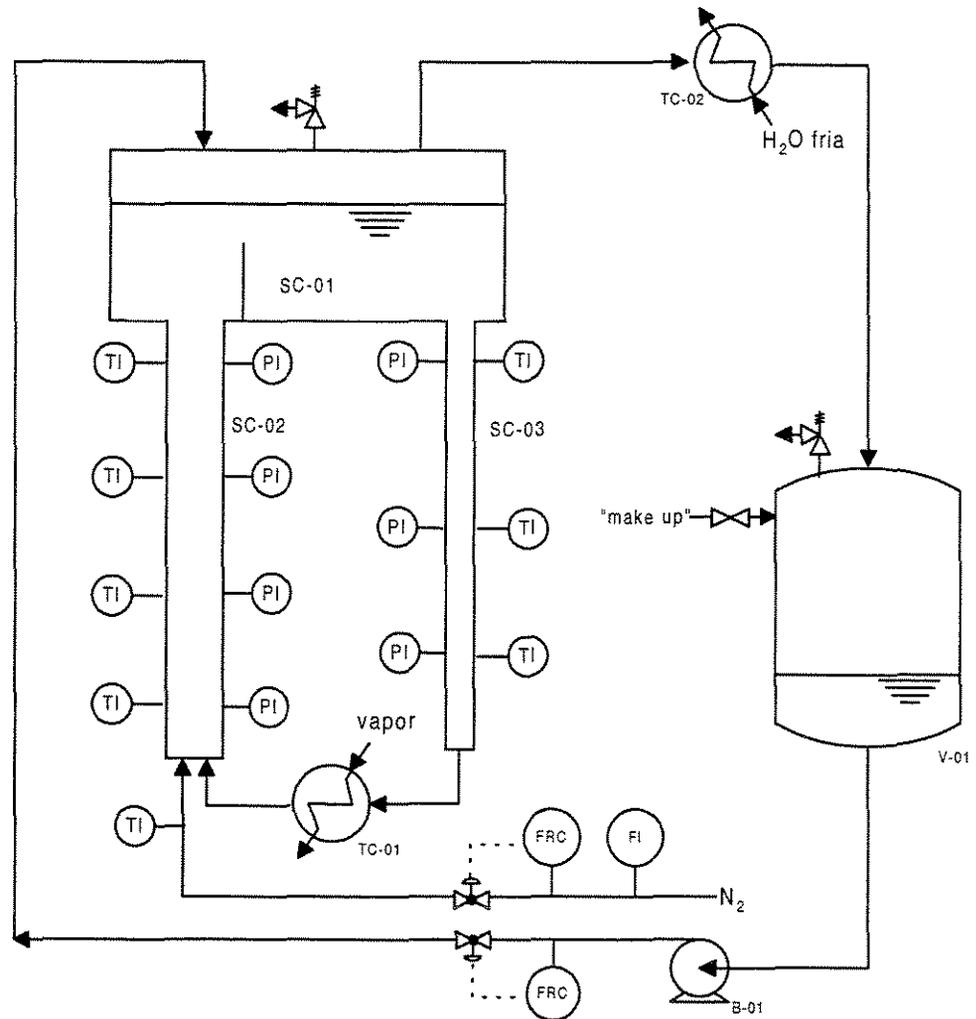
YAMAMOTO, C.I; BABA, E.H; NASCIMENTO, C. A. O . - **Previsão do Comportamento de Reator de Síntese de Amônia Via Rede Neural** - , I Simpósio Brasileiro de Automação inteligente (I SBAI), Anais, p 48-57, Rio Claro/SP, setembro de 1993.

ZUBER, N. E FINDLAY, J. A. – **Average Volumetric Concentration In Two Phase Systems** – ASME J. Heat Trans, 87, 453-468, (1965).

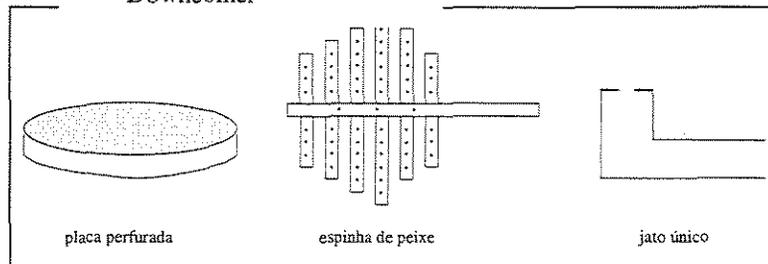
-ANEXOS-

Anexo 1

Planta Piloto do Reator "Air-lit" de Oxidação



- TC - Trocadores de Calor
- B - Bombas
- V - Vasos
- Sc1 - Separador de mistura
- Sc2 - Riser
- Sc3 - Downcomer



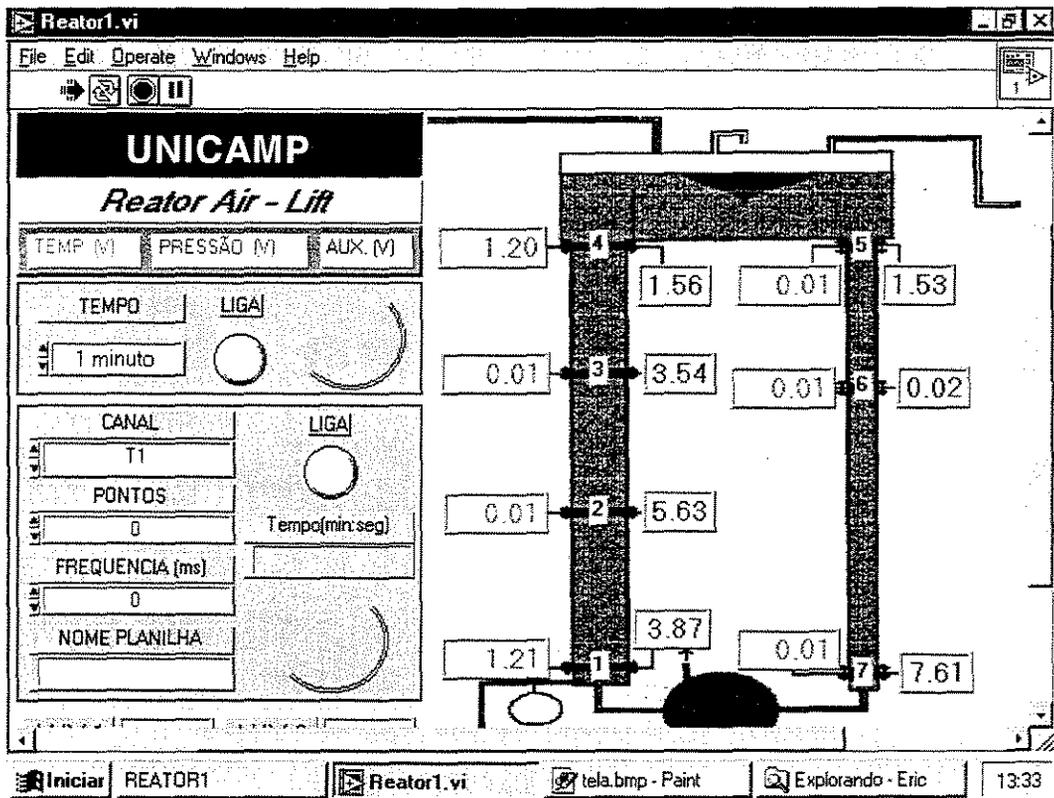
Anexo 2

Tabela com as dimensões do reator “Air-lift” Piloto

| <i>Equipamento</i> | <i>Característica</i> | <i>Dimensão</i> |
|---------------------|-----------------------------|---------------------|
| Riser (Sc 02) | comprimento | 3 m |
| | diâmetro | 0.23 m |
| | material | vidro |
| Downcomer (Sc 03) | comprimento | 2 m |
| | diâmetro | 0.152 m |
| | material | vidro |
| | redução | 0.152 p/ 0.076m |
| Aquecedor (TC 01) | tipo casco-tubo 1-1 | |
| | número de tubos | 73 |
| | área de troca térmica | 5.5 m ² |
| | diâmetro interno dos tubos | 0.152 m |
| | diâmetro externo dos tubos | 1.88 m ² |
| | diâmetro interno da carcaça | 0.27 m ² |
| | arranjo dos tubos | triangular |
| | ‘pitch’ | 0,025 m |
| | fluido quente | mistura água-vapor |
| Condensador (TC 02) | tipo casco-tubo 1-1 | |
| | número de tubos | 24 |
| | área de troca térmica | 5.54 m ² |
| | diâmetro interno dos tubos | 0.26 m ² |
| | diâmetro externo dos tubos | 0.30 m ² |
| | diâmetro interno da carcaça | 0.27 m |
| | arranjo dos tubos | triangular |
| | ‘pitch’ | 0.0425 m |

Anexo 3

Tela de Aquisição de dados do Labview



Anexo 4

Definição do Drift flux

O Drift-flux (fluxo flutuante) é definido como o fluxo volumétrico da fase gasosa relativa ao deslocamento da interface com a velocidade média da dispersão.

A formulação conceitual do modelo *Drift Flux*, assume a forma da eq. A4.2. Essa equação é proveniente da equação 3.8 e da equação A4.1, em que se adota a velocidade local para o gás e para o líquido. Esse, modelo foi introduzido por *Zuber e Findlay (1965)* e aprimorado por *Wallis (1969)*, que propôs um modelo Drift-Flux considerando a velocidade “slip” entre as bolhas e a fase líquida.

$$\varepsilon_g + \varepsilon_l = I \quad (\text{eq. A4.1})$$

$$\frac{u_g}{\varepsilon_g} = (u_g + u_l) + \varepsilon_l v_s \quad (\text{eq. A4.2})$$

Usando o gás hold-up como uma função peso, e modificando a equação para uma média ponderada da área, chega-se a eq. A.4.3.

$$\frac{\langle \varepsilon_g (u_g / \varepsilon_g) \rangle}{\langle \varepsilon_g \rangle} = \frac{\langle \varepsilon_g (u_g + u_l) \rangle}{\langle \varepsilon_g \rangle} + \frac{\langle \varepsilon_g \varepsilon_l v_s \rangle}{\langle \varepsilon_g \rangle} \quad (\text{eq. A4.3})$$

O coeficiente de distribuição de *Zuber e Findlay (1965)* equivale ao termo da eq A4.4

$$C_0 = \frac{\langle \varepsilon_g (u_g + u_l) \rangle}{\langle \varepsilon_g \rangle (v_g + v_l)} \quad (\text{eq. A4.4})$$

Substituindo na eq. A4.3, gera:

$$\frac{v_g}{\langle \varepsilon_g \rangle} = C_0 (v_g + v_l) + \frac{\langle \varepsilon_g \varepsilon_l v_s \rangle}{\langle \varepsilon_g \rangle} \quad (\text{eq. A4.5})$$

O segundo termo do membro à direita da equação, é um termo bem menor que o primeiro termo $C_0(v_g + v_l)$, para uma determinada faixa de condições operacionais. Por isso, o segundo termo pode ser tratado como constante C_1 , o que nos leva a equação almejada. (eq. A4.6)

$$\frac{v_g}{\bar{\varepsilon}_g} = C_0 (v_g + v_l) + C_1 \quad (\text{eq. A4.6})$$

No regime homogêneo, a taxa de retenção gasosa é uniforme na direção radial, e o coeficiente C_0 é “um”, o seu valor aumenta com o aumento da não-uniformidade. A Figura A4.1 mostra o comportamento dos parâmetros de distribuição. O valor de C_0 aumenta rapidamente com o aumento da velocidade gasosa, atinge um valor máximo correspondente a região de transição, e em seguida decresce até atingir valores estáveis. Enquanto o valor de C_1 aumenta continuamente com o aumento da velocidade gasosa.

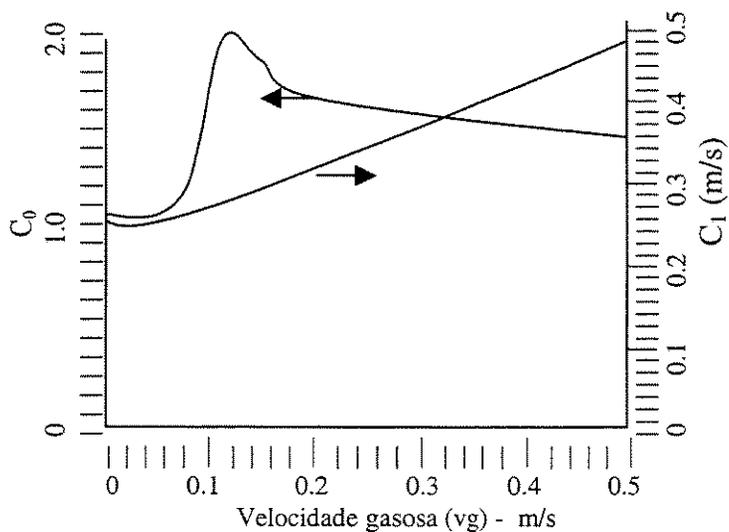


Fig. A4.1 - Coeficientes de distribuição para $v_{1s} = 0$

Na Figura 4.2, à medida que aumenta a velocidade líquida, o valor de C_0 diminui gradativamente até atingir um valor constante de 1.1 a 1.2. O valor de C_1 diminui até um limite, então permanece constante.

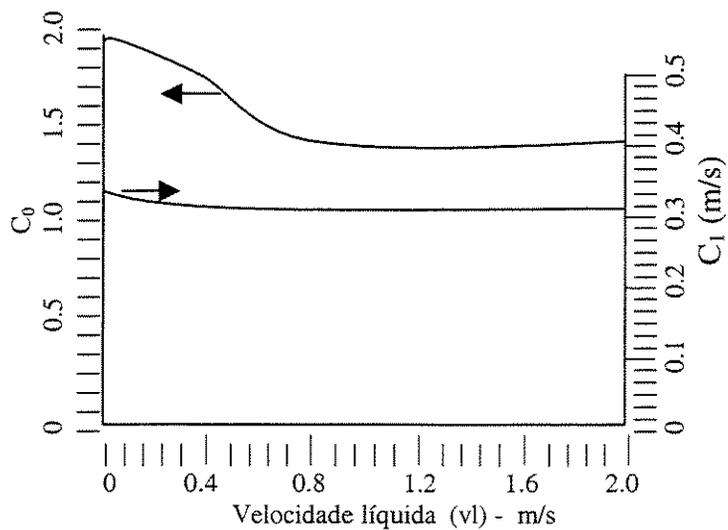


Fig. A4.2 - Coeficiente de distribuição em função da velocidade líquida (v_l)

Anexo 5

Dados de Simulação

| <i>Parâmetros</i> | <i>Variável</i> | <i>Dimensão</i> | <i>Unidades</i> |
|---|-----------------|----------------------|-------------------|
| Operacional | | | |
| Temperatura | T | 293.0 | Kelvin |
| Diâmetro equivalente das bolhas | d_b | 0.0033 | m |
| Tensão cisalhante normal | σ | 54 | N/m ² |
| Difusão de O ₂ na H ₂ O | D_{AB} | $2.41 \cdot 10^{-9}$ | m ² /s |
| dos Fluidos | | | |
| Densidade da água | d_l | 1000.0 | kg/m ³ |
| Densidade do ar | d_g | $1.29 \times T/273$ | kg/m ³ |
| Viscosidade da água | μ | 0.001 | Pa . s |
| de Projeto | | | |
| Coeficiente de rugosidade | e | 0.0 | adm |
| Diâmetro da coluna | D | 0.23 | m |
| Altura hidrostática total | L,H | 3.917 | m |
| de Otimização | | | |
| Precisão | me | + - 1% de Y_{in} | % |
| Passo | ** | 5 | % |

| <i>Constantes</i> | <i>Variável</i> | <i>Dimensão</i> | <i>Unidades</i> |
|-------------------|-----------------|------------------------|-----------------------------|
| Gravitacional | g | 9.8 | m/s ² |
| Henry | He | 1.249×10^{-5} | kgmol/(m ³ .kPa) |
| Gases ideais | R | 8.314 | J/kmol.K |

| <i>Condições de Contorno</i> | <i>Variável</i> | <i>Dimensão</i> | <i>Unidades</i> |
|--|-----------------|-----------------|-----------------|
| Razão molar de O ₂ /N ₂ na entrada | Y_{in} | 21.0/79.0 | adm |
| Pressão de saída | P^*, P^0 | 94.65 | kPa |
| Altura hidrostática inicial | $z^{(L)}$ | 3.917 | m |
| Altura hidrostática final | $z^{(0)}$ | 0 | m |

Anexo 6

Vazões gasosa e de líquido usado no experimento e na simulação.

| <i>Vazão gasosa (L/h)</i> | <i>Vazão líquida (L/h)</i> |
|---------------------------|----------------------------|
| 1338.33 | 148.67 |
| 2141.85 | 187.98 |
| 3097.6 | 221.6 |
| 4140.23 | 250.55 |
| 5240.6 | 264.74 |
| 6202.16 | 284.07 |
| 7163.72 | 301.57 |
| 8125.28 | 315.06 |
| 9086.85 | 324.97 |
| 10048.41 | 335.29 |
| 11009.98 | 344.77 |
| 11971.54 | 353.45 |
| 12933.1 | 361.71 |
| 13894.6 | 371 |
| 15817.8 | 387 |
| 17740.9 | 400 |
| 19664.0 | 415 |

Anexo 7

Resultados gerados após otimização das variáveis

| z | Vg | Eg | Dpc | fr | fm | pz | Y(z) |
|-------|--------|-------|-------|-------------------|-------------------|-------------------|--------|
| m | m/s | adm | kPa/m | kN/m ² | kN/m ² | kN/m ² | adm |
| 3.917 | 0.179 | 0.255 | 1.092 | 0.428 | 2.858 | 94.658 | 0.2261 |
| 3.525 | 0.1735 | 0.25 | 1.092 | 0.856 | 5.759 | 97.944 | 0.2301 |
| 3.134 | 0.1683 | 0.244 | 1.092 | 1.284 | 8.7 | 101.273 | 0.2341 |
| 2.742 | 0.1634 | 0.239 | 1.092 | 1.711 | 11.68 | 104.642 | 0.2382 |
| 2.35 | 0.1587 | 0.234 | 1.092 | 2.139 | 14.694 | 108.049 | 0.2423 |
| 1.959 | 0.1544 | 0.23 | 1.092 | 2.567 | 17.743 | 111.492 | 0.2465 |
| 1.567 | 0.1502 | 0.225 | 1.092 | 2.995 | 20.823 | 114.968 | 0.2507 |
| 1.175 | 0.1463 | 0.221 | 1.092 | 3.423 | 23.932 | 118.475 | 0.255 |
| 0.783 | 0.1425 | 0.216 | 1.092 | 3.851 | 27.069 | 122.013 | 0.2594 |
| 0.392 | 0.139 | 0.212 | 1.092 | 4.278 | 30.231 | 125.577 | 0.2638 |
| 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 | 129.168 | 0.2683 |