

NATIELI DE SOUZA OLIVEIRA

ESTUDO DA HIDRODINÂMICA DE UMA COLUNA DE EXTRAÇÃO KÜHNI

DISSERTAÇÃO DE MESTRADO APRESENTADA AO
CURSO DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA QUÍMICA DA
UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS

Orientador: Prof. Marcelo Borges Mansur

Belo Horizonte
Escola de Engenharia da UFMG
2005

UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS
CURSO DE PÓS-GRADUAÇÃO
EM ENGENHARIA QUÍMICA

ESTUDO DA HIDRODINÂMICA DE UMA COLUNA DE EXTRAÇÃO KÜHNI

Autora: Natieli de Souza Oliveira
Orientador: Prof. Marcelo Borges Mansur

Dissertação de Mestrado apresentada ao
Curso de Pós-Graduação em Engenharia Química
como parte dos requisitos exigidos para a obtenção do título de
MESTRE EM ENGENHARIA QUÍMICA

Belo Horizonte
2005

AGRADECIMENTOS

Ao meu professor e orientador Marcelo Borges Mansur, pelos ensinamentos transmitidos, pelo acompanhamento e sugestões, pela disponibilidade de horários e amizade a mim dedicada.

Aos alunos de Iniciação Científica, Bruno Augusto Batista Ribeiro, Mariana Pinto Celso Gondim e Daniel Moraes Silva, pelos trabalhos realizados, pela dedicação, pelo bom convívio e pelo auxílio nos experimentos.

Aos professores Leandro Soares de Oliveira e Cláudio Patrício Ribeiro Jr, pelas sugestões e críticas dadas durante apresentação da proposta de mestrado que contribuíram bastante na elaboração desta dissertação.

À professora Maria Laura de Azevedo Passos, pelo incentivo, pela amizade e, principalmente, pelos ensinamentos que foram fundamentais na minha formação e que me incentivaram a trilhar o caminho da pesquisa.

Ao professor Lúcio Carlos Martins Pinto, do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear (CDTN) por ter gentilmente cedido o analisador de imagens Quantikov (versão 2004).

Ao professor Roberto Galery, do Departamento de Engenharia de Minas da UFMG, pelos ensinamentos e incentivos.

Ao Dr. Michael John Slater, da University of Bradford, no Reino Unido, por ter gentilmente doado a seção de coluna Kühni, em escala piloto, utilizada no presente trabalho.

À FAPEMIG (Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de Minas Gerais) e ao **CNPq** (Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico) pelo suporte financeiro que tornaram possível a realização desta pesquisa.

Aos meus pais que não mediram esforços e sacrifícios para me proporcionar uma formação ampla e sólida.

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	1
2	OBJETIVOS	3
3	REVISÃO DA LITERATURA	4
3.1	COLUNA KÜHNI	4
3.2	HIDRODINÂMICA EM COLUNAS DE EXTRAÇÃO LÍQUIDO-LÍQUIDO	10
3.2.1	<i>Diâmetro Médio das Gotas, Distribuição de Diâmetro das Gotas e Hold-up</i>	10
3.2.2	<i>Velocidades das Fases Líquidas no Interior da Coluna</i>	20
3.2.3	<i>Ponto de Inundação ou Flooding</i>	23
3.2.4	<i>Mistura Axial</i>	24
3.3	TRANSFERÊNCIA DE MASSA	28
3.4	MODELAGEM DE COLUNAS DE EXTRAÇÃO LÍQUIDO-LÍQUIDO	29
4	METODOLOGIA EXPERIMENTAL	33
4.1	DESCRIÇÃO DA COLUNA KÜHNI E DA UNIDADE PILOTO	33
4.2	METODOLOGIA ADOTADA PARA O ESTUDO DA HIDRODINÂMICA	36
4.2.1	<i>Condições Operacionais Investigadas</i>	36
4.2.2	<i>Descrição Experimental das Corridas</i>	37
4.2.3	<i>Estudo do Desvio da Esfericidade da Gota</i>	40
4.2.4	<i>Tomada e Análise das Fotografias</i>	41
4.2.5	<i>Reagentes e Equipamentos</i>	48
5	RESULTADOS E DISCUSSÕES	49
5.1	AVALIAÇÃO DA METODOLOGIA EXPERIMENTAL PARA A ANÁLISE DAS GOTAS	49
5.2	DIÂMETRO MÉDIO DE SAUTER	52
5.3	DISTRIBUIÇÃO DE TAMANHO DE GOTAS	60
5.4	ANÁLISE DO <i>HOLD-UP</i> TOTAL	68
5.5	ANÁLISE DO <i>HOLD-UP</i> LOCAL	72
6	CONCLUSÕES	75
7	SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS	77
8	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	78
A	ANEXOS	82

LISTA DE FIGURAS

Figura 3.1: Desenho esquemático de uma coluna de extração agitada	5
Figura 3.2: Estágio agitado da coluna Kühni (150 mm de diâmetro).....	7
Figura 3.3: Efeito do fluxo de descarga radial na proporção H/D em procedimento de <i>scale-up</i> (Bühlmann, 1993).....	7
Figura 3.4: Influência da agitação e da altura da coluna no diâmetro médio das gotas em uma coluna RDC (76,2 mm diâmetro, sistema água/ <i>n</i> -heptano) para diferentes vazões de fase dispersa: (a) $Q_d = 320$ mL/min; (b) $Q_d = 640$ mL/min (Moreira <i>et al.</i> , 2005).	13
Figura 3.5: Comparação entre o <i>hold-up</i> total experimental (Kentish, 1996) e calculado pela correlação de Kumar e Hartland (1995).	15
Figura 3.6: Efeito das condições operacionais no perfil de <i>hold-up</i> local (Tsouris <i>et al.</i> , 1990): (a) Efeito da agitação ($Q_d = 0,72$ L/min; $Q_c = 0,36$ L/min); (b) Efeito de Q_d ($Q_c = 0,72$ L/min; $N_R = 160$ rpm); (c) Efeito de Q_c ($Q_d = 0,72$ L/min; $N_R = 160$ rpm).....	17
Figura 3.7: Efeito da altura da coluna na distribuição de diâmetro das gotas em uma coluna RDC (Moreira <i>et al.</i> , 2005).	18
Figura 3.8: Mecanismos de formação de gotas e tamanho de gotas para diferentes velocidades (Vogelpohl e Korch, 2002).....	19
Figura 4.1: Detalhes da Coluna e unidade piloto.....	34
Figura 4.2: Esquema da montagem adotada para o presente trabalho.....	35
Figura 4.3: Prato perfurado com 30 % de área livre.....	36
Figura 4.4: Vista superior da coluna mostrando as posições da esfera de aço.....	40
Figura 4.5: Esquema ilustrativo do painel da câmera, destacando-se a configuração adotada neste trabalho.....	41
Figura 4.6: Esquema ilustrativo do painel da câmera, destacando-se a configuração adotada neste trabalho para a tomada de fotos nos estágios 3 e 5, nas velocidades de 150 e 180 rpm.....	42
Figura 4.7: Tela do programa Quantikov com imagem a ser analisada.	43
Figura 4.8: Tela do programa Quantikov para ajuste de escala.....	44
Figura 4.9: Exemplo de determinação de diâmetro de gota utilizando-se o Quantikov.....	44
Figura 4.10: Tela do programa Quantikov gerada pelo comando “Resultados/Gera Estatística/Filtro>Diâmetros”.....	45
Figura 4.11: Tela do programa Quantikov com os valores extremos de diâmetros medidos.....	45

Figura 4.12: Fator de forma considerado para as medidas efetuadas.....	46
Figura 4.13: Resumo dos dados processados pelo programa Quantikov.....	46
Figura 4.14: Exemplo de relatório gerado pelo analisador de imagens Quantikov.....	47
Figura 5.1: Verificação do número de gotas mínimo para a análise das fotografias.....	51
Figura 5.2: Efeito da velocidade de agitação e do número do estágio, fixando-se as vazões de aquoso e orgânico $Q_c = Q_d = 2.000$ mL/min.	53
Figura 5.3: Efeito da velocidade de agitação e do número do estágio, fixando-se as vazões de aquoso e orgânico $Q_c = 2.000$ mL/min e $Q_d = 1.240$ mL/min.....	54
Figura 5.4: Efeito da velocidade de agitação e do número do estágio, fixando-se as vazões de aquoso e orgânico $Q_c = 1.240$ mL/min e $Q_d = 2.000$ mL/min.....	55
Figura 5.5: Comparação entre o diâmetro médio de Sauter experimental e o predito pela correlação de Fischer (1973).	56
Figura 5.6: Comparação entre o diâmetro médio de Sauter experimental e o predito pela correlação de Kumar e Hartland (1996).	57
Figura 5.7: Comparação entre o diâmetro médio de Sauter experimental com o predito pela Eq (5.4) para a coluna Kühni, nas condições experimentais estudadas.....	58
Figura 5.8: Comportamento do diâmetro médio de Sauter medido no estágio zero em função da velocidade de agitação.....	59
Figura 5.9: Efeito da velocidade de agitação na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni.	61
Figura 5.10: Efeito da altura na coluna na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni.....	62
Figura 5.11: Efeito das vazões de fase contínua e dispersa na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni.....	63
Figura 5.12: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.....	66
Figura 5.13: Comparação entre o parâmetro μ experimental com o predito pela Eq. (5.8) para a coluna Kühni, nas dimensões e condições experimentais estudadas.....	66
Figura 5.14: Comparação entre o desvio médio experimental com o predito pela Eq. (5.9) para a coluna Kühni, nas dimensões e condições experimentais estudadas.....	67
Figura 5.15: Comportamento do <i>hold-up</i> total em função da velocidade de agitação e vazões de fases dispersa e contínua.....	68
Figura 5.16: Comparação entre o <i>hold-up</i> total experimental e o predito pela correlação de Kumar e Hartland (1995).....	70

Figura 5.17: Comparação entre o <i>hold-up</i> total experimental e o predito pela Eq. (5.3).	72
Figura 5.18: Comportamento do <i>hold-up</i> local em função da velocidade de agitação.	74
Figura A.1: Efeito da velocidade de agitação na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.	88
Figura A.2: Efeito da velocidade de agitação na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.	89
Figura A.3: Efeito da velocidade de agitação na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa igual a 1.240 mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.	90
Figura A.4: Efeito da altura na coluna na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.	91
Figura A.5: Efeito da altura na coluna na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.	92
Figura A.6: Efeito da altura na coluna na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa igual a 1.240 mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.	93
Figura A.7: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.	94
Figura A.8: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.	95
Figura A.9: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.	96
Figura A.10: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.	97
Figura A.11: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.	98
Figura A.12: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.	99
Figura A.13: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.	100

Figura A.14: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.	101
Figura A.15: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.	102
Figura A.16: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.	103
Figura A.17: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.	104
Figura A.18: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.	105
Figura A.19: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.	106
Figura A.20: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.	107
Figura A.21: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.	108
Figura A.22: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.	109
Figura A.23: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.	110
Figura A.24.: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.	111
Figura A.25: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.	112
Figura A.26: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.	113

LISTA DE TABELAS

Tabela 3.1: Dimensões da coluna Kühni utilizadas em trabalhos científicos.	8
Tabela 4.1: Dimensões da seção de coluna Kühni utilizada neste trabalho.	36
Tabela 4.2: Faixa operacional das variáveis investigadas neste estudo.	37
Tabela 4.3: Propriedades físicas dos fluidos empregados neste trabalho.	37
Tabela 5.1: Condições operacionais investigadas no estudo do <i>hold-up</i> local.	72
Tabela A.1: Determinação do número mínimo de gotas a serem contadas.	83
Tabela A.2: Dados utilizados na predição do fator de forma.	84
Tabela A.3: Resultados gerais obtido a partir da análise dos dados experimentais para vazão de contínua igual a 2.000 mL/min.	85
Tabela A.4: Resultados gerais obtido a partir da análise dos dados experimentais para vazão de contínua igual a 1.240 mL/min.	86
Tabela A.5: Valores de <i>hold-up</i> total obtido experimentalmente, pela correlação empírica proposta neste trabalho e por Kumar e Hartland (1995).	87
Tabela A.6: Valores de <i>hold-up</i> local obtido experimentalmente.	87

NOMECLATURA

a_i	parâmetro de ajuste das Eqs. (5.1), (5.4) e (5.9)
b	parâmetro de ajuste das Eqs. (3.11), (3.17) e (3.18)
C	concentração (mol.m^{-3})
C_1	parâmetro de ajuste da Eq. (3.3)
C_2	parâmetro de ajuste da Eq. (3.4)
C_Ψ	parâmetro que leva em consideração o efeito da transferência de massa na Eq. (3.5) e (3.8)
d	diâmetro da gota (m)
d_{32}	diâmetro médio de Sauter (m)
D	coeficiente de difusão ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
D_C	diâmetro da coluna (m)
D_R	diâmetro do rotor (m)
E_c	coeficiente de dispersão axial da fase contínua ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
E_d	coeficiente de dispersão axial da fase dispersa ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)
E	número do estágio (-)
F_i	função frequência cumulativa (-)
h	altura total da coluna (m)
H	altura do compartimento (m)
k	coeficiente individual de transferência de massa ($\text{kg.m}^{-2}.\text{s}$)
K	coeficiente global de transferência de massa ($\text{kg.m}^{-2}.\text{s}$)
k_1, k_2	parâmetro das Eqs. (3.20) e (3.21)
k_3, k_4	parâmetro das Eqs. (3.20) e (3.21)
N	número de estágios (-)
N_R	velocidade do rotor (s^{-1})
n	número de gotas de tamanho i
$P_{\log}(d)$	função distribuição log-normal (-)
Q	vazão de alimentação ($\text{m}^3.\text{s}$)
R^2	fator de correlação (-)
S_e	área livre fracional dos pratos (%)
t	tempo (s)
U	velocidade superficial (m.s^{-1})

U_k	velocidade característica (m.s ⁻¹)
U_{slip}	velocidade de deslizamento (m.s ⁻¹)
z	posição axial (m)

Grupos Adimensionais

Pe	número de Peclet	$Pe = \frac{d_{32} U_t}{D}$
Re _R	número de Reynolds do rotor	$Re_R = \frac{\rho_c N_R D_R^2}{\mu_c}$

Gregos

α	coeficiente de <i>back mixing</i> da fase contínua (-)
ε	força de dissipação mecânica por unidade de massa (W.kg ⁻¹)
ϕ	<i>hold-up</i> da fase dispersa (-)
γ	tensão interfacial (N.m ⁻¹)
κ	razão de viscosidade = μ_d/μ_c (-)
μ	viscosidade (Pa.s)
ρ	densidade (kg.m ⁻³)
$\Delta\rho$	diferença de densidade entre as fases (kg.m ⁻³)
σ	desvio padrão (-)

Subscritos

c	fase contínua
d	fase dispersa
flood	no ponto de inundação
i	inicial
industrial	em escala industrial
max	valor máximo
piloto	em escala piloto
T	total

RESUMO

Este trabalho teve por objetivo o estudo do comportamento hidrodinâmico de uma seção de coluna de extração líquido-líquido do tipo Kühni, em escala piloto, com 150 mm de diâmetro e 5 estágios. O estudo foi realizado na ausência de transferência de massa, utilizando-se o sistema binário água/Exxsol D-80, sendo a fase contínua constituída pela água em todas as corridas. A coluna foi operada em circuito fechado. O escoamento em contra-corrente das fases líquidas foi caracterizado com respeito ao tamanho médio das gotas, distribuição de tamanho das gotas e *hold-up* (total e local). As seguintes variáveis operacionais foram investigadas: velocidade de agitação (60, 90, 120, 150 e 180 rpm), vazão de fase dispersa (1.240 e 2.000 mL/min), vazão de fase contínua (1.240 e 2.000 mL/min) e altura na coluna (distribuidor e estágios 1, 3 e 5). O método fotográfico foi empregado para determinar o tamanho médio e a distribuição de tamanho de gotas. Verificou-se que as gotas se distribuem de acordo com a função de distribuição log-normal. O tamanho médio das gotas diminuiu com o aumento na velocidade de agitação, tornando-se mais uniformes (menos distribuídas). Correlações empíricas propostas na literatura foram empregadas na comparação com os resultados experimentais de diâmetro médio de Sauter e apresentaram desvios elevados. Uma nova correlação foi proposta no presente trabalho, tendo apresentado desvio de apenas 8,2 %. O *hold-up* total e local encontra-se diretamente relacionado à vazão de fase dispersa e a velocidade de agitação. Menores gotas promovem um aumento no tempo de residência das mesmas, resultando no aumento do *hold-up* total e local. O estudo permitiu um melhor conhecimento a respeito do comportamento hidrodinâmico na seção da coluna de extração líquido-líquido Kühni.

ABSTRACT

This work aimed at the experimental study of the hydrodynamic behavior of liquid-liquid extraction columns. A section of a pilot scale Kühni column containing 5 stages with 150 mm of diameter has been used. The study has been carried out in the absence of mass transfer between phases. The binary system water/Exxsol D-80 was employed. In all runs, water has been set as the continuous phase and the column was operated in a closed circuit mode. The hydrodynamics has been assessed regarding the average drop size, drop size distribution and hold-up (total and local). The following operational variables have been investigated: rotor speed (60, 90, 120, 150 and 180 rpm), flowrate of the dispersed phase (1.240 and 2.000 mL/min), flowrate of the continuous phase (1.240 and 2.000 mL/min) and column sections heights (distributor and stages 1, 3 and 5). A photographic method has been applied to measure drop sizes and distributions. It has been observed that drop size distributions follow a log-normal distribution function. Drop sizes were reduced with the increase of rotor speed, thus resulting in narrower size distributions. Empirical correlations proposed in the literature were employed in this study and the calculated diameters were compared to the experimental Sauter diameters. Considerable deviations were obtained and a new correlation was proposed in this work, with predictions presenting an 8,2 % deviation. Regarding hold-up measurements, it has been found a significant dependence on the flowrates of the dispersed phase and rotor speed. Smaller drops present longer residence times in the column stages, thus resulting in an increase of the total and local hold-up. The results obtained in this study have contributed to better understand the hydrodynamic behavior of binary systems in sections of a Kühni column.

1 INTRODUÇÃO

A extração líquido-líquido é uma técnica de separação bastante empregada nas indústrias petroquímica, farmacêutica, hidrometalúrgica, nuclear, dentre outras. Segundo Coulson e Richardson (1978), a técnica é complementar à destilação, sendo preferencial sua aplicação nos seguintes casos: (1) quando a destilação requer uma quantidade excessiva de calor; (2) em sistemas cuja volatilidade relativa das espécies a serem separadas encontra-se próxima da unidade; (3) quando a formação de azeótropo limita o grau de separação obtido na destilação; (4) quando se deseja evitar o aquecimento das soluções, normalmente em aplicações de biotecnologia; e (5) quando os componentes a serem separados são de naturezas totalmente diferentes. Em todas essas situações, a extração líquido-líquido pode constituir uma alternativa de separação vantajosa, tanto do ponto de vista técnico quanto econômico.

A operação de extração líquido-líquido consiste basicamente na contactação de duas fases líquidas imiscíveis, ou parcialmente miscíveis entre si, nas quais as espécies de interesse a serem separadas apresentam solubilidades relativamente diferentes. Em muitos processos, a afinidade da espécie por uma das fases pode ser puramente física, como, por exemplo, na extração de iodo com clorofórmio, ou, então, envolver uma reação química, como na extração de metais. Neste caso, uma fase aquosa contendo um metal de interesse, denominada alimentação, é contactada com uma fase orgânica, denominada solvente. Como os metais presentes na fase aquosa apresentam pouca ou nenhuma tendência a se solubilizar na fase orgânica, é necessária, pois, a adição de um extratante a esta última fase. O extratante reage com o metal na interface líquido-líquido, convertendo-o, assim, em uma espécie organo-solúvel. Segundo Ritcey e Ashbrook (1984), vários mecanismos de extração de metais podem ocorrer, dependendo do tipo de extratante empregado (catiônico, aniônico ou de solvatação).

Nas últimas décadas, verifica-se o uso cada vez mais freqüente da extração líquido-líquido em aplicações do setor mineral, como decorrência do esgotamento crescente das reservas de diversos metais. A técnica encontra-se atualmente consolidada, sendo aplicada industrialmente na separação seletiva de metais como zinco, níquel, cobalto, cobre, urânio, etc. A operação é historicamente realizada em baterias de misturadores-decantadores, uma vez que a cinética de extração de sistemas metálicos é geralmente lenta. Contudo, o desenvolvimento crescente de extratantes mais seletivos e eficientes do ponto de vista cinético tem favorecido

significativamente o emprego de colunas de extração líquido-líquido no tratamento industrial de sistemas metálicos. Uma coluna Kühni, equipamento de extração líquido-líquido utilizado industrialmente, foi objeto de estudo desta Dissertação de Mestrado.

Uma coluna agitada é constituída de múltiplos estágios separados por pratos perfurados, constituindo uma bateria de compartimentos verticais subseqüentes através da qual ambas as fases fluem em direções opostas. O conhecimento do escoamento das duas fases é de fundamental importância para se tentar quantificar a eficiência do equipamento. Assim, antes do estudo dos efeitos da transferência de massa para um dado sistema extrativo, se faz necessário conhecer os padrões de escoamento hidrodinâmico dos fluidos no interior da coluna. A eficiência da separação está relacionada não somente com a área interfacial formada pelas gotas, que se apresentam em diferentes tamanhos e velocidades de ascensão, mas também aos efeitos de mistura axial e pela interação das mesmas (quebra e coalescência). Portanto, para simular o comportamento de tais sistemas e predizer o efeito das variáveis de processo na eficiência da extração, é necessária uma descrição matemática fisicamente realista tanto da hidrodinâmica (envolvendo as interações entre as gotas e como estas se distribuem com relação ao seu tamanho em cada estágio ao longo do equipamento) quanto das taxas de transferência de massa entre as fases líquidas. Devido à complexidade inerente a esses fenômenos, a avaliação da qualidade de modelos teóricos requer a obtenção de dados experimentais em unidades piloto.

É neste contexto que se insere o presente trabalho, que pretende estudar a hidrodinâmica em colunas de extração líquido-líquido. Para tal, foi empregada uma seção de coluna Kühni, em escala piloto. Os objetivos do trabalho são apresentados no Capítulo 2. Em seguida, no Capítulo 3, apresenta-se a revisão da literatura, incluindo os efeitos das diversas variáveis operacionais que afetam a hidrodinâmica em colunas de extração. A revisão é direcionada preferencialmente para a coluna Kühni, utilizada neste trabalho, cujas características principais também são detalhadas neste Capítulo. A revisão da literatura inclui, por fim, uma descrição sucinta dos modelos matemáticos empregados para descrever o comportamento das colunas de extração, de maneira a evidenciar a relevância do trabalho desenvolvido nesta dissertação. Na seqüência, no Capítulo 4, apresenta-se a metodologia experimental proposta para o presente estudo da hidrodinâmica. No Capítulo 5, os resultados encontrados e discussões. Por fim, no Capítulo 6, a conclusão e, no Capítulo 7, sugestões para trabalhos futuros.

2 OBJETIVOS

A presente dissertação de Mestrado tem, como objetivo principal, o estudo experimental da hidrodinâmica em colunas de extração líquido-líquido com ênfase nos efeitos provocados pela população das gotas ascendentes de fase dispersa. Para atingi-lo, os seguintes objetivos específicos foram traçados e realizados:

- estudo dos efeitos das variáveis operacionais “velocidade de agitação”, “altura da coluna” e “vazão das fases líquidas (dispersa e contínua)”, em condições normais de operação, sobre os parâmetros *hold-up* (local e total), diâmetro médio das gotas e distribuição de diâmetro das gotas;
- comparação dos resultados experimentais obtidos para *hold-up* total e diâmetro médio das gotas com os calculados por correlações empíricas recomendadas na literatura para a coluna Kühni; e
- desenvolvimento de correlações empíricas utilizando-se os dados experimentais obtidos nesse trabalho visando melhorar a predição teórica dos parâmetros *hold-up* total, diâmetro médio de gotas e distribuição de tamanho de gotas no equipamento estudado.

O estudo foi desenvolvido na ausência de transferência de massa (sistema binário água/Exxsol D-80, sendo água a fase líquida estabelecida como contínua em todas as corridas), seguindo-se a metodologia fotográfica desenvolvida por Moreira *et al.* (2005). O estudo foi realizado utilizando-se uma seção de coluna agitada Kühni, em escala piloto, contendo 5 estágios, doada em 2003 pela University of Bradford, Reino Unido.

3 REVISÃO DA LITERATURA

Diversos fenômenos ocorrem simultaneamente durante operações de extração líquido-líquido em colunas. Uma análise adequada da operação neste tipo de equipamento requer informações detalhadas sobre a transferência de massa, a cinética da extração, o equilíbrio líquido-líquido e a hidrodinâmica das fases líquidas. Estes fenômenos dependem não somente do sistema líquido-líquido escolhido, mas também da geometria da coluna. Assim, como existem diversos tipos de colunas agitadas, com diferentes geometrias internas, é apresentada, inicialmente, a descrição detalhada da coluna Kühni. As informações encontradas na literatura sobre este equipamento, em escala piloto, são mostradas na seção 3.1. Em seguida, na seção 3.2, é apresentada a revisão sobre o tópico abordado neste trabalho, i.e., sobre a hidrodinâmica em colunas de extração líquido-líquido, enfocando, sempre que possível, a coluna Kühni. Por fim, nas seções 3.3 e 3.4, um breve resumo sobre a transferência de massa e modelagem em colunas de extração é apresentado, respectivamente, no sentido de evidenciar a relevância e a conexão que existe entre a hidrodinâmica e estes dois tópicos no estudo de colunas de extração.

3.1 Coluna Kühni

Segundo Mögli e Bühlmann (1983), a coluna Kühni surgiu na década de 60, sendo utilizada atualmente em vários processos industriais como, por exemplo, nas indústrias petroquímica (extração/reextração de aromáticos), hidrometalúrgica (remoção de zinco de soluções de níquel e cobalto), alimentícia (extração de vitaminas) e farmacêutica (recuperação e purificação de nitrobenzeno). A Kühni é uma coluna mecanicamente agitada constituída por uma série de estágios interconectados. Os estágios são separados por pratos perfurados, presos por eixos de sustentação revestidos por um cilindro oco de aço inoxidável, conforme mostrado nas Figuras 3.1 e 3.2. A altura do estágio é definida pelo comprimento dos cilindros ocos, e a área livre fracional dos pratos dada pelo número de furos em cada prato, podendo variar entre 20 e 40 %.

As colunas de extração são equipamentos cilíndricos, dispostos verticalmente, cuja alimentação das fases líquidas é realizada nas extremidades dos mesmos. A fase mais densa (pesada) é alimentada pelo topo e a fase menos densa (leve) pelo fundo da coluna. No caso de sistemas minerais, a fase pesada é a fase aquosa contendo os metais a serem separados, e a fase leve a fase orgânica contendo o extratante. Por diferença de densidade, a fase leve percorre todo o

comprimento da coluna, em movimento ascendente. À medida que esta ascende, ocorre a troca de massa desta com a fase mais densa, que escoar em sentido contrário. Uma das fases se encontra dispersada na outra sob a forma de gotas. A eficiência da troca de massa depende fundamentalmente da área de contactação entre as duas fases, dada pelo tamanho e pela distribuição de tamanho das gotas que, por sua vez, depende da forma de contactação entre os líquidos. Dentre as diversas formas de contactação empregadas em colunas de extração, a mais comum consiste na agitação das fases mediante o uso de rotores localizados axialmente, ou seja, ao longo do comprimento da coluna, como é o caso da Kühni, conforme mostrado na Figura 3.1. Outras possibilidades de agitação em colunas envolvem sistemas pulsados ou recíprocos (Aravamudan e Baird, 1999; Garnica *et al.*, 2002; Grob-Hardt *et al.*, 2002).

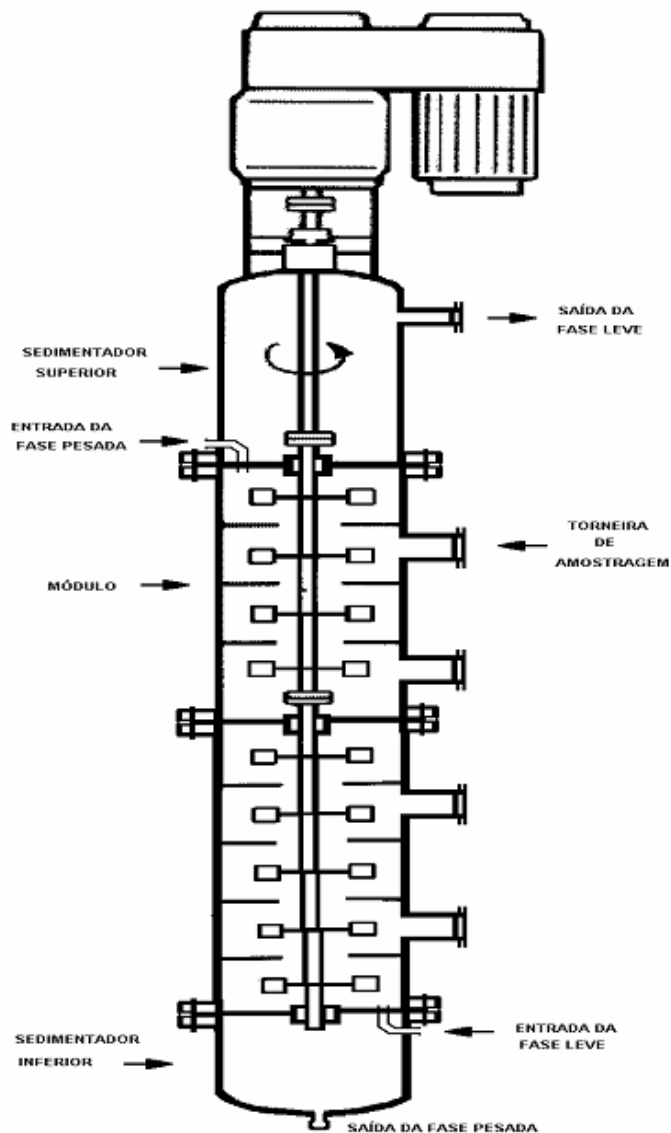


Figura 3.1: Desenho esquemático de uma coluna de extração agitada

Como se observa na Figura 3.1, uma coluna de extração líquido-líquido consiste de três regiões principais: (1) a zona de sedimentação inferior, localizada na base da coluna, em que é alimentada a fase leve, (2) a região de separação propriamente dita, em que as fases são contactadas via agitação promovida pelos rotores localizados em cada estágio da coluna, e (3) a zona de sedimentação superior, no topo da coluna, na qual ocorre a alimentação da fase pesada.

A principal vantagem que a Kühni apresenta em relação às outras colunas de extração está na possibilidade de adaptação da sua geometria interna. Durante o carregamento das gotas, à medida que estas ascendem no interior da coluna, mudanças nas propriedades físicas levam a alterações nos principais parâmetros hidrodinâmicos da coluna, como *hold-up*, diâmetro de gota e grau de mistura axial. Essas alterações afetam todo o desempenho da operação, uma vez que interfere na área interfacial onde se verifica a transferência das espécies entre as fases líquidas. Para evitar mudanças significativas nesses parâmetros, é possível alterar a geometria individual dos estágios ao longo da coluna, uma vez que a geometria afeta diretamente a hidrodinâmica do escoamento das fases. A coluna Kühni permite modificações no diâmetro e na altura dos rotores, na área livre dos pratos e na altura dos estágios. Outra vantagem importante está no desenho dos rotores da Kühni (vide Figura 3.2), que permite um elevado cisalhamento das fases líquidas. Com isso, a coluna pode ser empregada em operações contendo líquidos viscosos e/ou com elevada tensão interfacial. Em comparação com uma coluna de discos rotativos (RDC), por exemplo, gotas relativamente pequenas podem ser obtidas utilizando-se baixas velocidades de agitação, da ordem de 150 e 180 rpm, ao passo que rotações da ordem de 1.000 rpm seriam necessárias em uma RDC para se obter uma dispersão com características semelhantes.

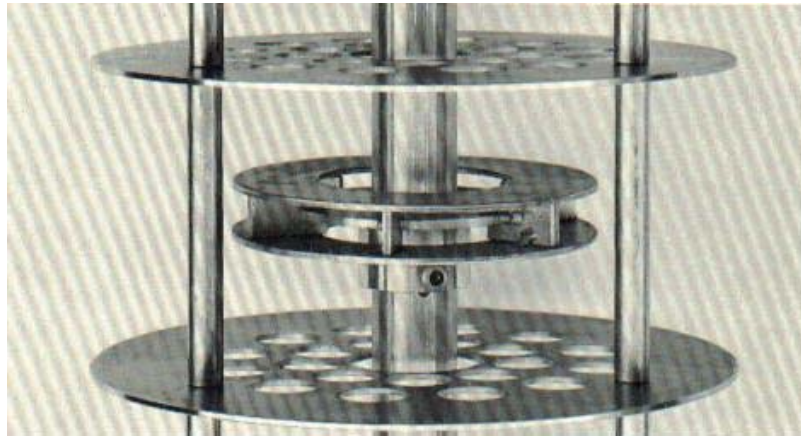


Figura 3.2: Estágio agitado da coluna Kühni (150 mm de diâmetro).

De acordo com informações do fabricante (www.kuhni.ch), a Kühni pode ser projetada para operar com o máximo da capacidade em cada seção da coluna com um mínimo de mistura axial nos estágios, mantendo-se a área interfacial e *hold-up* aproximadamente constantes ao longo da coluna. Isto a torna recomendada em processos com parâmetros variáveis ou com características reológicas complicadas. A taxa do fluxo de descarga radial, mostrada na Figura 3.3, é um parâmetro relevante a ser considerado no projeto da Kühni em maior escala. Segundo Bühlmann (1993), a importância do fluxo de descarga radial reflete-se na diminuição relativa na altura do estágio com o aumento no diâmetro da coluna. Assim, em procedimentos de *scale-up* da coluna Kühni, a seguinte relação deve ser considerada:

$$\frac{H_{\text{piloto}}}{D_{\text{piloto}}} > \frac{H_{\text{industrial}}}{D_{\text{industrial}}} \quad (3.1)$$

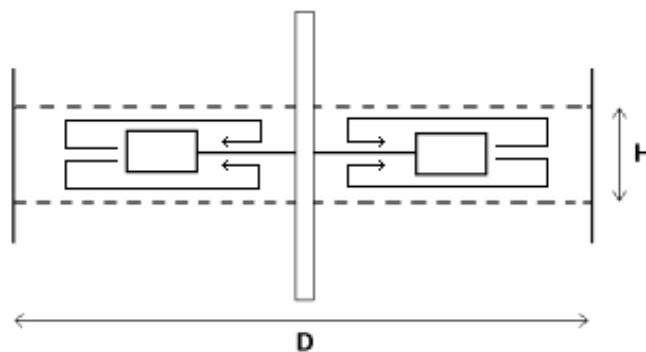


Figura 3.3: Efeito do fluxo de descarga radial na proporção H/D em procedimento de *scale-up* (Bühlmann, 1993).

A maioria dos estudos encontrados na literatura utilizando-se a coluna Kühni foi realizada empregando-se colunas com diâmetros de 150 mm (vide Tabela 3.1). De acordo com o fabricante do equipamento, este é o menor diâmetro de coluna que permite a obtenção de dados experimentais confiáveis para a realização de procedimentos de *scale-up*. De uma maneira geral, a Kühni é de construção simples e de *scale-up* confiável.

Tabela 3.1: Dimensões da coluna Kühni utilizadas em trabalhos científicos.

Referência	Diâmetro (mm)	Altura (mm)	Nº de estágios	Área dos pratos (%)	Sistema líquido
Gomes <i>et al.</i> (2004)	150	2520	36	25	Água/tolueno
Mansur (2001)	150	477	4	30	ZnSO ₄ /D2EHPA/ <i>n</i> -heptano
Zamponi <i>et al.</i> (1996)	150	2520	36	-	Água/acetona/tolueno
Weiss <i>et al.</i> (1995)	150	1250	18	23	Água/tolueno
Bailes <i>et al.</i> (1986)	150	1930	27	30	Água/ácido succínico/ <i>n</i> -butanol e Água/ácido isobutírico/cumeno
Kumar (1985)	150	1260	18	23,5 e 40	Água/acetona/ <i>o</i> -xileno
Haunold <i>et al.</i> (1990)	100	-	20	16	Água/ácido succínico/ <i>n</i> -butanol
Kentish (1996)	72,45	1390	27	30	Água/ácido acético/MIBK (Metil-isobutil-cetona)
Dongaonkar <i>et al.</i> (1991)	72,45	-	25	30	Água/ácido acético/MIBK (Metil-isobutil-cetona)

O estudo de colunas de extração líquido-líquido compreende normalmente duas etapas: (1) a investigação da hidrodinâmica, ou seja, do escoamento entre as fases líquidas, e (2) a investigação das taxas de transferência de massa das espécies de interesse. Como a operação do equipamento se dá pela contactação de dois líquidos dispersados entre si, a área interfacial na

qual ocorre a transferência de massa entre as fases depende da distribuição de tamanho das gotas gerada pelo distribuidor e pela ação dos rotores ao longo da coluna. Assim, existe uma forte relação entre a hidrodinâmica e a transferência de massa.

Os estudos sobre hidrodinâmica em colunas agitadas são, normalmente, tratados sob dois aspectos distintos: o da velocidade de deslizamento (*slip velocity*) e o de mistura axial. Estas abordagens são tratadas na seção seguinte.

3.2 Hidrodinâmica em Colunas de Extração Líquido-Líquido

De um modo geral, entende-se por hidrodinâmica em coluna o comportamento do escoamento das fases líquidas no seu interior, frente a variáveis operacionais diversas como vazão das fases líquidas, velocidade de agitação, geometria dos compartimentos, etc. Durante a operação, uma das fases encontra-se dispersada sob a forma de gotas (fase dispersa) na outra fase, esta última denominada de fase contínua, com o intuito de aumentar a superfície de contato entre as mesmas, favorecendo o fluxo interfacial das espécies. As fases escoam em contra-corrente com velocidades variáveis ao longo da coluna. Assim, os seguintes parâmetros são comumente utilizados para caracterizar a hidrodinâmica em colunas de extração líquido-líquido: diâmetro e distribuição de diâmetro das gotas, *hold-up* da fase dispersa, velocidade das fases líquidas, *backmixing* de ambas as fases (ou mistura axial, de uma maneira geral) e ponto de inundação (*flooding*). O conhecimento de todos esses parâmetros é de relevância para o projeto de colunas, entretanto, tem-se que estes se encontram fundamentalmente relacionados ao comportamento das gotas de fase dispersa. Assim, para se conhecer a hidrodinâmica de colunas de extração líquido-líquido, é preciso estabelecer a relação que existe entre o diâmetro médio das gotas e a distribuição de diâmetro das gotas com os demais parâmetros hidrodinâmicos. Essa relação será tratada a seguir, com base na informação até então disponível na literatura.

3.2.1 Diâmetro Médio das Gotas, Distribuição de Diâmetro das Gotas e *Hold-up*

O conhecimento do diâmetro das gotas de fase dispersa é de fundamental importância no projeto de colunas de extração líquido-líquido pois estas afetam diretamente o *hold-up*, o tempo de residência nos estágios, as velocidades superficiais das fases, a mistura axial, o ponto de inundação, além dos efeitos diretos nas taxas de transferência de massa. Segundo Mohanty (2000), a descrição realista de uma coluna de extração depende de forma primordial da informação disponível sobre o comportamento da fase dispersa.

De uma maneira geral, o tamanho das gotas de fase dispersa é governado pela agitação do sistema, pela geometria interna da coluna, pelas propriedades físicas das fases líquidas e pela direção da transferência de massa. Podem ocorrer alterações ao longo da coluna, tanto no diâmetro quanto na distribuição de diâmetro das gotas, em decorrência das taxas de quebra e de coalescência, de mudanças nas propriedades físicas, dentre outros fatores.

O diâmetro médio de Sauter (d_{32}), definido pela Eq. (3.2), é comumente empregado em cálculos com colunas de extração por relacionar volume e área das gotas, sendo, pois, mais adequado na descrição de processos que envolvem transferência de massa através de superfícies esféricas.

$$d_{32} = \frac{\sum_{i=1}^n d_i^3}{\sum_{i=1}^n d_i^2} \quad (3.2)$$

Na ausência ou em baixos níveis de agitação ($Re_R \leq 10.000$), o diâmetro médio das gotas é controlado pelo equilíbrio entre as forças de tensão interfacial do sistema e por forças de flutuabilidade. Um valor limite para o tamanho da gota em tais condições pode ser descrito adequadamente pela seguinte expressão apresentada por Bailes *et al.* (1986):

$$d_{32} = C_1 \left(\frac{\gamma}{\Delta\rho g} \right)^{1/2} \quad (3.3)$$

em que C_1 é um parâmetro empírico que depende da geometria da coluna, da transferência de massa, temperatura e do sistema líquido empregado. Para a coluna de discos rotativos (RDC), por exemplo, Chang-Kakoti *et al.* (1985) encontraram que $C_1 = 1,3$ para gotas de álcool *n*-butírico dispersas em água, valor este coincidente com o encontrado por Moreira *et al.* (2005), $C_1 = (1,4 \pm 0,2)$ para gotas de *n*-heptano em água.

Segundo Hinze (1955), a seguinte equação pode ser empregada para fases dispersas pouco viscosas, quando o efeito da tensão interfacial é menor que o da força coesiva das gotas:

$$d_{32} = C_2 \varepsilon^{-0,4} \left(\frac{\gamma}{\rho_c} \right)^{0,6} \quad (3.4)$$

Em condições de maior turbulência ($Re_R > 10.000$), tem-se que as gotas quebram pois a força exercida pelo movimento da fase contínua excede, em magnitude, aquela da combinação da força coesiva devido à tensão interfacial e da força viscosa da fase dispersa. Em níveis de

agitação mais elevado ($Re_R > 10.000$), as Eqs. (3.3) e (3.4) são inadequadas para a descrição do diâmetro médio das gotas, sendo essa informação comumente obtida através de correlações empíricas e/ou semi-empíricas, específicas para cada tipo de coluna.

As seguintes correlações foram propostas por Fischer (1973) para estimar o diâmetro médio na Kühni considerando-se que as forças inerciais ou as de equilíbrio prevalecem sobre as forças inerciais e viscosas, ocasionando a quebra das gotas. A correlação leva em consideração, ainda, os efeitos decorrentes do *hold-up* total e do número de estágios da coluna. Assim, para $\gamma < 0,012$ N/m:

$$\frac{d_{32}}{D_R} = 3,06 S_e^{0,1} \left(\frac{N_R^2 D_R^3 \rho_c}{\gamma} \right)^{-0,3} \left(\frac{N_R D_R^2 \rho_c}{\mu_c} \right)^{-0,4} \left[1 + \frac{11}{N^{1,22} \sqrt{\frac{N_R^2 D_R^3 \rho_c}{\gamma}}} \right] (1 + 2\phi) \quad (3.5)$$

e para $\gamma > 0,012$ N/m:

$$\frac{d_{32}}{D_R} = 0,39 S_\phi^{0,21} \left(\frac{N_R^2 D_R^3 \rho_c}{\gamma} \right)^{-0,61} \left[1 + \frac{11}{N^{1,22} \sqrt{\frac{N_R^2 D_R^3 \rho_c}{\gamma}}} \right] (1 + 2\phi) \quad (3.6)$$

De acordo com estas correlações, a tensão interfacial é tida como um fator crítico na avaliação do tamanho das gotas, sendo, portanto, necessário levar em conta a influência da coalescência e do número de estágios. Ambas as correlações foram obtidas na ausência de transferência de massa. Segundo os autores, o termo relacionado ao *hold-up* deve ser omitido caso haja impurezas no sistema, em decorrência da redução na taxa de coalescência das gotas.

Kumar e Hartland (1996) propuseram, mais recentemente, uma expressão empírica geral para a estimativa do diâmetro médio das gotas, válida para cinco diferentes tipos de colunas, a saber (desvio relativo de 26,1 %): RDC, RDC assimétrica, Kühni, Wirz-II e pulsada. Para a coluna Kühni, a seguinte correlação foi proposta via o ajuste de dados experimentais de gotas com o número de estágios da coluna, para 580 corridas ($0 < Re_R < 42.000$, erro médio de 18,4 %):

$$\frac{d_{32}}{H} = \frac{C_{\Psi} S e^{0,56} N^{-0,1}}{\frac{1}{2,13} \left(\frac{\gamma}{\Delta \rho g H^2} \right)^{0,5} + \frac{1}{0,0708 \left[\frac{\varepsilon}{g} \left(\frac{\rho_c}{g \gamma} \right)^{0,25} \right]^{-0,63} \left[H \left(\frac{\rho_c g}{\gamma} \right)^{0,5} \right]^{-0,5}}} \quad (3.7)$$

em que o valor da constante C_{Ψ} depende da direção da transferência de massa, se da fase contínua para a dispersa ($C_{\Psi} = 1$) ou vice-versa ($C_{\Psi} = 3,16$). O diâmetro médio de Sauter tende a aumentar com a tensão interfacial do sistema e diminuir com o nível de agitação mecânica fornecida (Aravamudan e Baird, 1999). Estudos experimentais realizados em uma coluna RDC por Yamaguchi *et al.* (2002) e Moreira *et al.* (2005) mostraram que o diâmetro médio das gotas é fortemente influenciado pela velocidade do rotor, pela altura da coluna e pela vazão da fase dispersa, em condições de turbulência em que $Re_R > 10.000$ (Figura 3.4).

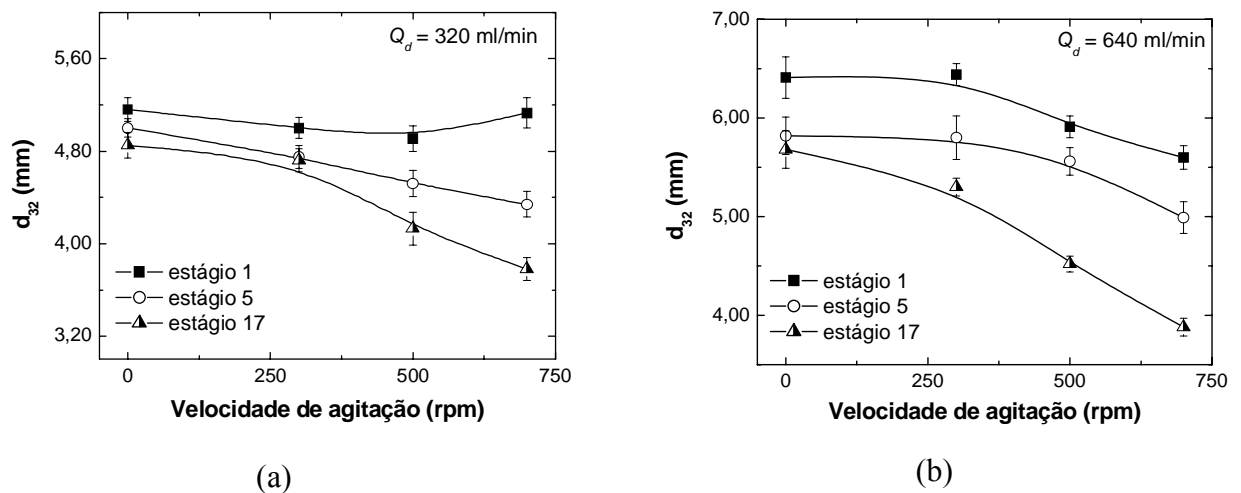


Figura 3.4: Influência da agitação e da altura da coluna no diâmetro médio das gotas em uma coluna RDC (76,2 mm diâmetro, sistema água/*n*-heptano) para diferentes vazões de fase dispersa: (a) $Q_d = 320 \text{ mL/min}$; (b) $Q_d = 640 \text{ mL/min}$ (Moreira *et al.*, 2005).

Verifica-se que, na coluna RDC, o efeito da agitação não é significativo abaixo de 300 rpm, sendo o diâmetro médio das gotas descrito adequadamente pela Eq. (3.3). Contudo, gotas cada vez menores são obtidas quando se aumenta a velocidade a partir deste valor, o que favorece a taxa de quebra das mesmas. Gotas menores são obtidas nos estágios mais superiores da coluna, também decorrentes do aumento na frequência dos choques e da agitação, o que está relacionado ao favorecimento da taxa de quebra das gotas. O efeito da variação no diâmetro médio das gotas é mais pronunciado quando se aumenta a vazão de fase dispersa alimentada à

coluna, contudo gotas maiores são obtidas, mantendo-se as mesmas condições de agitação do sistema. Neste caso, como um maior volume de fase dispersa é alimentado ao equipamento, a probabilidade de choques entre as gotas é maior, o que pode favorecer, assim, a taxa de coalescência das mesmas.

À medida que as gotas ascendem no interior da coluna, estas se tornam gradativamente menores devido à quebra resultante dos choques nos pratos perfurados e do efeito dos rotores, até que seja alcançado um equilíbrio entre as taxas de quebra e coalescência das gotas. Como gotas maiores ascendem mais rapidamente que gotas menores, o tempo de residência das gotas aumenta ao longo da coluna, o que implica no desenvolvimento de um perfil axial de *hold-up*. Segundo Mizek (1994), o *hold-up* é bastante sensível a qualquer mudança nas condições em que ocorre a dispersão. Mesmo assim, é usual considerá-lo constante ao longo da coluna, sendo esse denominado *hold-up* total (ou médio), cujo valor é representativo da coluna como um todo. Entretanto, como o *hold-up* é fortemente dependente da distribuição de tamanhos das gotas ao longo da coluna, tem-se que seu valor pode variar axialmente, para cada estágio da coluna, sendo este denominado, então, de *hold-up* local.

O *hold-up* total pode ser estimado utilizando-se a expressão empírica proposta por Kumar e Hartland (1995), válida para oito diferentes tipos de colunas (erro de 18 %), a saber: RDC, RDC assimétrica, Kühni, Wirz, Karr, pulsada, recheio e spray. Para a coluna Kühni, a correlação é válida para diâmetros de coluna entre 72-225 mm (erro de 21,3 %):

$$\phi = 2,27 S_e^{-0,77} C_\psi \left(\frac{\Delta\rho}{\rho_c} \right)^{-0,34} \left[0,0267 + \left[\frac{\varepsilon}{g} \left(\frac{\rho_c}{g\gamma} \right)^{\frac{1}{4}} \right]^{0,77} \right] \left[U_d \left(\frac{\rho_c}{g\gamma} \right)^{0,25} \right]^{-0,64} e^{\left[20,7 U_c \left(\frac{\rho_c}{g\gamma} \right)^{\frac{1}{4}} \right]} \quad (3.8)$$

em que o valor da constante C_ψ depende da direção da transferência de massa, se da fase contínua para a dispersa ($C_\psi = 1$) ou vice-versa ($C_\psi = 0,56$). Como se observa na Figura 3.5, a correlação de Kumar e Hartland (1995) se mostrou adequada na predição dos valores experimentais de *hold-up* obtidos por Kentish (1996) em uma coluna Kühni (72 mm de diâmetro), para o sistema água-ácido acético-MIBK (metil-isobutil cetona), com desvio relativo médio de 17,7 %.

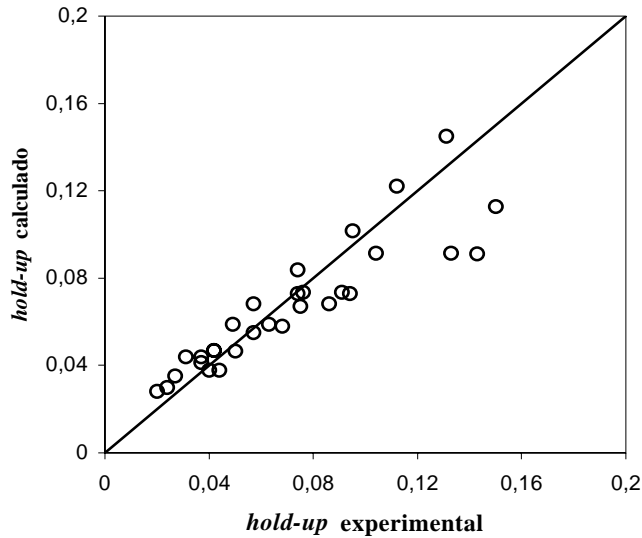


Figura 3.5: Comparação entre o *hold-up* total experimental (Kentish, 1996) e calculado pela correlação de Kumar e Hartland (1995).

Em cálculos mais rigorosos da hidrodinâmica em colunas, faz-se necessário incorporar o perfil do *hold-up* local ao longo do equipamento, para cada estágio. Segundo Kirou *et al.* (1988), esse perfil pode ser côncavo ou sigmoidal, e a localização do ponto de máximo depende das condições de operação. Aumentando-se a velocidade de agitação ou a vazão de fase dispersa, por exemplo, tem-se que o ponto de máximo no perfil axial de *hold-up* se desloca para a base da coluna, logo é possível estabelecer um critério para a determinação do ponto de inundação no equipamento. Estudos experimentais realizados por Moris *et al.* (1997) em uma coluna RDC confirmaram tal comportamento. Medições experimentais do perfil axial de *hold-up* em uma coluna Kühni (150 mm de diâmetro) conduzidas por Fisher (1973) e Kumar *et al.* (1986) mostraram a existência de um máximo nas proximidades do meio da coluna, que também se deslocou para a parte inferior do equipamento com o aumento da vazão de alimentação da fase dispersa.

Na Figura 3.6, é ilustrado o comportamento típico do *hold-up* ao longo de uma coluna de estágios múltiplos, com relação às variáveis operacionais velocidade de agitação e vazão das fases dispersa e contínua, respectivamente (Tsouris *et al.*, 1990). De uma maneira geral, tem-se que as gotas, ao saírem do distribuidor, quebram ao entrarem nos primeiros estágios da coluna em função da agitação e de choques sucessivos nas paredes e nos pratos. Esta redução no tamanho médio das gotas, em cada estágio, resulta no aumento gradual do tempo de residência

das gotas. Logo, se observa um perfil crescente no *hold-up* local na parte inferior da coluna. Comportamento inverso é observado no topo da coluna, neste caso, em decorrência do efeito da alimentação em contra-corrente da fase pesada (*end-effect*), que se contrapõe ao movimento de ascensão das gotas. Assim, estas se acumulam em alguma posição próxima ao topo da coluna, apresentando valor decrescente em direção ao estágio final do equipamento. Nas Figuras 3.6 (a), (b) e (c), para a faixa de condições operacionais investigadas, observa-se um valor de *hold-up* aproximadamente constante em algum ponto próximo ao meio da coluna. Isto resulta da obtenção de um estado de equilíbrio entre as taxas de quebra e coalescência das gotas. Segundo Tsouris *et al.* (1990), a forma côncava desse perfil de *hold-up* local é obtida com o máximo correspondendo ao estágio no qual a distribuição de tamanho de gotas alcança o estado permanente. Desta forma, evidencia-se a relação direta que existe entre o *hold-up* local e o tamanho das gotas ao longo da coluna.

Observa-se na Figura 3.6(a) que o aumento na velocidade de agitação desloca o *hold-up* máximo para os estágios mais inferiores da coluna, visto que menores gotas são obtidas. Da mesma forma, um aumento na vazão da fase dispersa implica uma maior quantidade de gotas na saída de cada estágio, logo vazões mais elevadas resultam em maiores valores de *hold-up* local, como se observa na Figura 3.6(b). O mesmo comportamento é observado na Figura 3.6(c) para o aumento na vazão da fase contínua, desta vez dada pelo aumento na resistência de ascensão das gotas. Portanto, o aumento destas três variáveis desloca o máximo no perfil de *hold-up* local para a base da coluna aumentando o tempo de residência médio das gotas no equipamento, favorecendo, também, a obtenção da condição de inundação da coluna, a ser tratado na seção 3.2.3. Além disso, a variação no *hold-up* afeta, também, o fenômeno de inversão de fases e o estabelecimento do tempo de residência das fases líquidas em cada estágio da coluna.

Além do efeito de variação no diâmetro médio das gotas ao longo da coluna, as gotas também apresentam variação de tamanho em cada estágio do equipamento, o que caracteriza uma distribuição de tamanho de gotas ou DTG. O efeito da DTG é bastante significativo quando a coluna opera sob condições de baixa agitação. Nestas condições, modelos monodispersos que consideram gotas de um mesmo tamanho ao longo do equipamento não descrevem, de forma adequada, o efeito provocado pela distribuição de gotas nas taxas de transferência de massa. Mansur *et al.* (2003) verificaram que, no ajuste de perfis de concentração experimentais, os parâmetros hidrodinâmicos e de transferência de massa nesse tipo de modelo encontram-se

correlacionados para baixas agitações, i.e., quando a DTG apresenta maior amplitude. No entanto, nenhuma correlação estatisticamente significativa foi observada para condições de agitação elevada. Como as taxas de transferência de massa são afetadas diretamente pela DTG, faz-se necessário, no projeto de colunas agitadas, o uso de modelos mais realistas e que incorporem populações de gotas divididas em classes, como fazem os modelos de *forward mixing* e de balanço populacional. O modelo de balanço populacional, por exemplo, é empregado na descrição da interação das gotas considerando as taxas de coalescência e quebra das gotas. Medições experimentais em coluna Kühni (150 mm de diâmetro) realizadas por Zamponi *et al.* (1996) e Gomes *et al.* (2004) mostraram que as simulações obtidas com o modelo populacional representaram adequadamente os dados experimentais de distribuição de tamanho de gota e *hold-up* da fase dispersa.

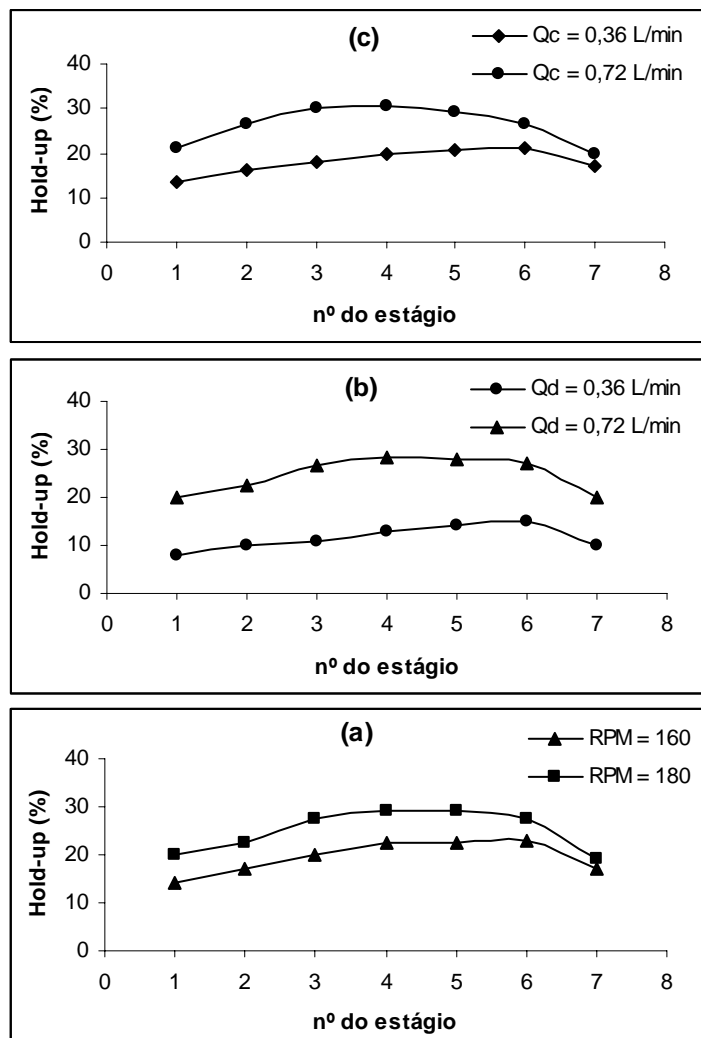


Figura 3.6: Efeito das condições operacionais no perfil de *hold-up* local (Tsouris *et al.*, 1990): (a) Efeito da agitação ($Q_d = 0,72$ L/min; $Q_c = 0,36$ L/min); (b) Efeito de Q_d ($Q_c = 0,72$ L/min; $N_R = 160$ rpm); (c) Efeito de Q_c ($Q_d = 0,72$ L/min; $N_R = 160$ rpm).

A evolução típica da DTG ao longo da altura da coluna encontra-se apresentada na Figura 3.7, obtida em uma coluna RDC com diâmetro 76,2 mm (sistema água/*n*-heptano). Tem-se que as gotas mudam consideravelmente de tamanho à medida que ascendem na coluna, o que revela a dificuldade intrínseca em se definir um diâmetro médio que seja adequadamente representativo da população de gotas ao longo do equipamento. Esta diminuição progressiva de tamanho é resultado da quebra oriunda de choques com os agitadores e pratos, bem como do cisalhamento provocado pela agitação dos discos rotativos.

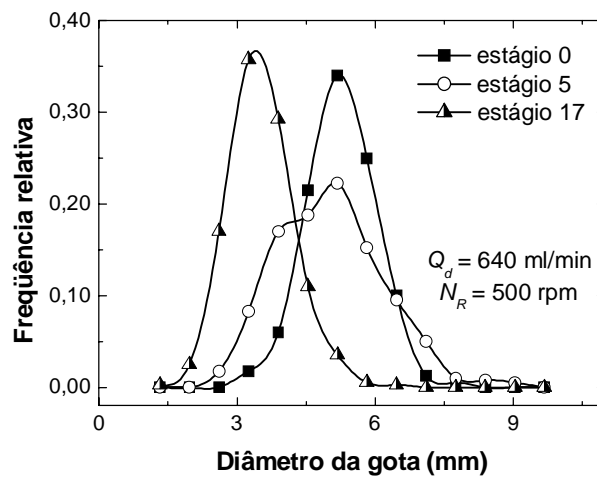


Figura 3.7: Efeito da altura da coluna na distribuição de diâmetro das gotas em uma coluna RDC (Moreira *et al.*, 2005).

Verifica-se, ainda pela Figura 3.7, que DTG's mais estreitas são obtidas à medida que as gotas atingem os estágios mais superiores da coluna. Assim, é possível que um comportamento mais uniforme das gotas possa vir a ser obtido caso estas já sejam alimentadas à coluna com uma distribuição de tamanho adequadamente estreita. Vogelpohl e Korch (2002) estudaram diferentes distribuidores visando alimentar a fase dispersa com um tamanho de gota adequado para reduzir o efeito das DTG's. Os autores obtiveram um maior controle do tamanho das gotas quando alimentaram a fase dispersa via pulsação, dentro do distribuidor. Com a pulsação, as gotas foram formadas com uma distribuição mais estreita, diminuindo, assim, o efeito de *forward mixing* da fase dispersa, já que gotas de mesmo tamanho apresentam velocidades de ascensão similares.

Na Figura 3.8 são mostrados diferentes mecanismos de formação de gotas e a dependência do tamanho destas com a variação da velocidade do fluido alimentado. Em baixas velocidades, a

formação das gotas é similar àquelas formadas durante a abertura inicial de uma torneira, por exemplo. O tamanho das gotas, neste caso, não é de interesse prático, pois, em vazões baixas, as gotas formadas são grandes e não uniformes. O aumento da velocidade de alimentação do líquido favorece a formação de um jato, cujo rompimento leva à formação de gotas menores e mais uniformes. Velocidades muito elevadas, contudo, ocasionam a formação de gotas muito pequenas, sob a forma de um spray. Assim, o modo de operação do distribuidor permite controlar melhor a distribuição de tamanho de gotas alimentadas.

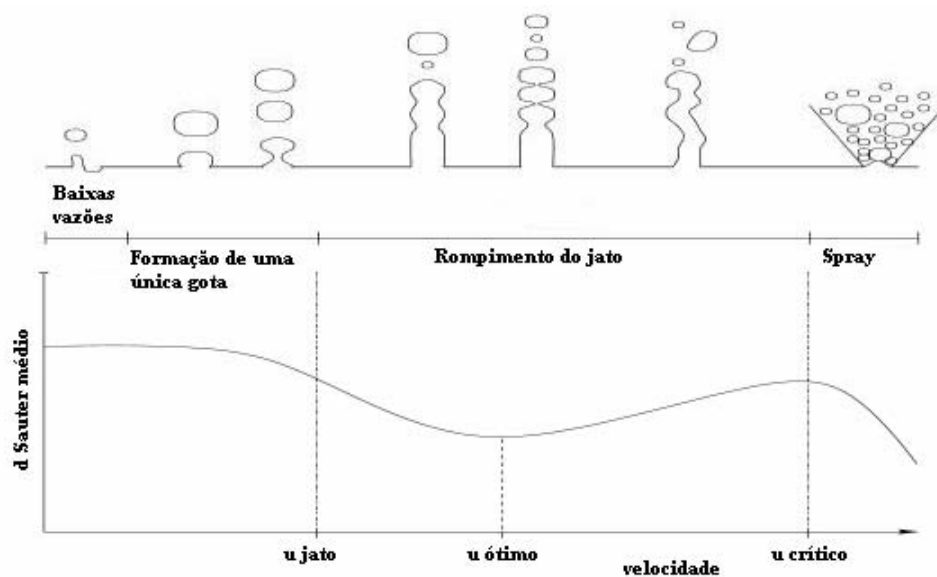


Figura 3.8: Mecanismos de formação de gotas e tamanho de gotas para diferentes velocidades (Vogelpohl e Korch, 2002).

É importante comentar que, em experimentos realizados em maior escala (piloto ou mesmo industrial), a DTG é possivelmente influenciada pela contaminação dos fluidos, caso haja a presença de contaminantes que altere a tensão interfacial das fases líquidas (Gomes *et al.*, 2004). Esse efeito depende, também, da temperatura ambiente, uma vez que essa variável não é geralmente controlada em plantas piloto de extração líquido-líquido.

Diversas funções de distribuição têm sido comumente sugeridas para representar a distribuição de tamanho de gotas em colunas de extração, por exemplo, a função Gama (Mohanty e Vogelpohl, 1997), Gal-Or (Gal-Or e Hoelscher, 1966), dentre outras. Tem-se que a distribuição Gaussiana normal não descreve de forma adequada o comportamento das gotas encontrado na prática, uma vez que valores negativos poderiam ser considerados (Kumar e Hartland, 1994).

Moreira *et al.* (2005) representaram adequadamente dados de distribuição de tamanho de gotas obtidas em uma coluna RDC (76,2 mm de diâmetro) empregando a função de distribuição log-normal (coeficientes de ajuste R^2 superiores a 0,95); a função de distribuição normal se mostrou inadequada em decorrência da elevada correlação entre os parâmetros de ajuste. Ainda no caso específico da coluna RDC, além da distribuição de Mugele e Evans, a função log-normal é comumente empregada, pois requer a determinação apenas de dois parâmetros de ajuste, enquanto que aquela, três parâmetros de ajuste. A função de distribuição de Mugele-Evans considera ainda a existência de um limite máximo de tamanho de gota. Uma comparação sobre a aplicação destas funções de distribuição em colunas é apresentada em Chang-Kakoti *et al.* (1985).

No caso da Kühni, Kumar (1985) encontrou um melhor ajuste dos resultados utilizando-se a função de distribuição de Mugele-Evans (Mugele e Evans, 1951) do que por outras funções como normal, log-normal e Gal-Or. Kumar e Hartland (1999) utilizaram, posteriormente, a função Gal-Or e a de Mugele-Evans para predizerem a distribuição de tamanho de gotas que entram na coluna Kühni. Os dados calculados pela função Gal-Or eram praticamente indistinguíveis daqueles obtidos pela função de distribuição de Mugele-Evans. Kentish (1996) obteve um melhor ajuste das curvas de distribuição de tamanho utilizando a função de distribuição de Mugele-Evans para velocidades de agitação acima de 100 rpm. A função log-normal apresentou resultados praticamente semelhantes.

3.2.2 Velocidades das Fases Líquidas no Interior da Coluna

Como observado na seção anterior, o comportamento não ideal da fase dispersa é causado principalmente pela distribuição de velocidade das gotas, decorrente da variação de tamanho dessas em cada estágio, ao longo da coluna. Desta forma, para caracterizar tal fenômeno, de maneira generalizada, diversos tipos de velocidade entre as fases líquidas têm sido definidos ao longo dos anos para descrever o comportamento em contra-corrente das fases dispersa e contínua, a saber, velocidade de deslizamento, velocidade característica, velocidade terminal, etc. Em geral, a grande maioria dos textos encontrados na literatura emprega valores médios. Somente em alguns textos mais recentes, a partir da década de 1990, é que estas definições passaram a ser adaptadas no intuito de se incorporar o efeito da distribuição de tamanho das gotas.

A velocidade de deslizamento (U_{slip}) foi definida por Gayler e Pratt (1951) e representa a velocidade média das fases líquidas escoando em contra-corrente, no interior da coluna. Constitui, ainda, um parâmetro de relevância empregado no projeto de colunas, em especial no cálculo do ponto de inundação (Seção 3.2.3). Para uma dada condição operacional, a velocidade de deslizamento é comumente considerada constante e o seu valor está relacionado com o *hold-up* total das gotas da fase dispersa (ϕ).

$$U_{slip} = \frac{U_d}{\phi} + \frac{U_c}{1-\phi} \quad (3.9)$$

Segundo Gayler e Pratt (1951), a velocidade de deslizamento é determinada por forças gravitacionais, interfaciais e de arraste local, que dependem da agitação e da geometria do estágio. Fisicamente, quando o *hold-up* da fase dispersa se aproxima de zero ($\phi \rightarrow 0$), a velocidade de deslizamento é denominada de velocidade característica (U_k), e corresponde à velocidade do movimento de uma única gota sob as restrições impostas pela agitação e pela geometria dos internos da coluna. Gayler e Pratt (1951) também propuseram uma expressão que correlaciona esses três parâmetros (U_k , U_{slip} e ϕ):

$$U_{slip} = U_k (1 - \phi) \quad (3.10)$$

O valor médio da velocidade característica é comumente obtido por ajuste gráfico, fazendo-se um gráfico dos dados experimentais sob a forma $[U_d + \phi U_c / (1 - \phi)]$ versus $[\phi (1 - \phi)]$, após substituição da Eq. (3.10) na Eq. (3.9), e multiplicação por ϕ para evitar que valores muito baixos de *hold-up* interfiram de maneira mais significativa no ajuste dos dados. Dessa forma, retas com inclinação U_k passando pela origem são obtidas para $\phi < 0,2$ (Godfrey e Slater, 1991). Convém ressaltar que tais expressões envolvem parâmetros médios e não incorporam o efeito da variação no *hold-up* ao longo da coluna.

Bailes *et al.* (1986) incluíram, posteriormente, o parâmetro empírico b para obter um melhor ajuste dos dados, em que b depende do tipo de coluna. Assim, a Eq. (3.10) torna-se um caso particular da Eq. (3.11), i.e., quando b é igual a 1.

$$U_{slip} = U_k (1 - \phi)^b \quad (3.11)$$

Para a coluna Kühni (150 mm de diâmetro), a correlação empírica dada pela Eq. (3.12) foi proposta com base no número de Reynolds da gota e válida para $\phi < 0,25$ (Godfrey e Slater, 1991).

$$b = 0,15 \left(\frac{\rho_c d U_k}{\mu_c} \right)^{0,8} \quad (3.12)$$

Assim, substituindo-se a Eq. (3.12) na Eq. (3.11), o valor de U_k passa a ser obtido implicitamente via resolução numérica:

$$U_{slip} = U_k (1 - \phi)^{0,15 \left(\frac{\rho_c d U_k}{\mu_c} \right)^{0,8}} \quad (3.13)$$

Kentish (1996) modificou as constantes propostas por Godfrey e Slater (1991) mediante o ajuste de dados experimentais obtidos para o sistema água/ácido acético/MIBK (metil isobutil cetona), utilizando-se uma coluna Kühni com diâmetro de 72,45 mm.

$$b = 0,019 \left(\frac{\rho_c d U_k}{\mu_c} \right)^{1,2} \quad (3.14)$$

Comparando-se as constantes de ajuste nas Eqs. (3.12) e (3.14), verifica-se que o efeito do parâmetro b é significativo em colunas com menor diâmetro, uma vez que $0,15/0,019 \approx 8,0$. Quanto ao expoente, tem-se que seu valor independe do diâmetro da coluna, uma vez que as faixas de valores relatadas pelos autores se interceptam ($1,2 \pm 0,1$ e $0,8 \pm 0,5$).

Uma expressão empírica para a velocidade de deslizamento foi proposta por Kumar e Hartland (1999), sendo válida para diversos tipos de colunas, como Kühni, RDC, pulsada e Karr. Para a Kühni, a correlação foi obtida mediante o ajuste de dados obtidos em uma coluna com 500 mm de diâmetro, sendo dada por:

$$U_{slip} = \frac{\left(\frac{\rho_c}{g\mu_c}\right)^{\frac{1}{3}}}{0,061 + \left(\frac{\varepsilon}{g}\left(\frac{\rho_c}{g\mu_c}\right)^{\frac{1}{3}}\right)^{0,6}} \left[U_d \left(\frac{\rho_c}{g\mu_c}\right)^{\frac{1}{3}} \right]^{0,86} \left[d_{32} \left(\frac{\rho_c^2 g}{\mu_c^2}\right)^{\frac{1}{3}} \right]^{19,2} * \quad (3.15)$$

$$\left(\frac{\Delta\rho}{\rho_c}\right)^{-0,5} \frac{1}{1 + \kappa^{-0,85}} 1,12 \left[H \left(\frac{\rho_c^2 g}{\mu_c^2}\right)^{\frac{1}{3}} \right]^{-0,77}$$

3.2.3 Ponto de Inundação ou *Flooding*

A capacidade operacional de uma coluna de extração líquido-líquido é determinada pelo ponto de inundação, que está relacionado ao limite máximo na quantidade de uma das fases que pode estar dispersa na outra fase. Essa quantidade é função de diversos fatores como vazões de alimentação, intensidade de agitação, tensão interfacial, viscosidade dos fluidos e, também, da direção da transferência de massa. O ponto de inundação normalmente ocorre pela interrupção no escoamento de uma das fases como decorrência da resistência imposta pela vazão da outra fase, em direção contrária a esta, sendo caracterizado pela formação de uma segunda interface na região ativa da coluna, resultando na diminuição da velocidade das gotas.

A determinação do ponto de inundação está baseada no fato de que o aumento na vazão da fase contínua leva à diminuição na velocidade da fase dispersa, para uma vazão de alimentação fixa. Dessa forma, as gotas encontram uma maior resistência hidrodinâmica para atingir o topo da coluna, favorecendo a coalescência e o conseqüente aumento no *hold-up*. A expressão para a velocidade de inundação da fase contínua é obtida pela diferenciação, com relação ao *hold-up*, das equações propostas para o cálculo de velocidade de deslizamento apresentadas anteriormente (Eqs. (3.9) e (3.11)), igualando-se a zero a expressão resultante. No ponto de inundação, verifica-se que a velocidade superficial da fase contínua (ou da dispersa) passa por um mínimo à medida que o *hold-up* cresce, sendo expresso matematicamente pela seguinte condição:

$$\left(\frac{dU_c}{d\phi} \right)_{U_d} = 0 \quad \text{onde} \quad \phi = \phi_{flood} \quad (3.16)$$

As seguintes expressões foram propostas por Slater (1985) para estimar a velocidade das fases contínua e dispersa no ponto de inundação da coluna, respectivamente:

$$U_{c,flood} = U_k (1 - \phi_{flood})^2 \left[(1 - \phi_{flood})^b - b \phi_{flood} (1 - \phi_{flood})^{b-1} \right] \quad (3.17)$$

$$U_{d,flood} = (b + 1) U_k \phi_{flood} (1 - \phi_{flood})^b \quad (3.18)$$

Kumar *et al.* (1986) avaliaram esse procedimento de cálculo para o caso linear ($b = 1$), em uma coluna Kühni (150 mm de diâmetro), com 18 estágios e área livre fracional de 23,5 e 40,0 %, com e sem transferência de massa (sistema água/acetona/*o*-xileno). Os autores verificaram uma concordância satisfatória nos resultados experimentais com a metodologia proposta por Slater (1985), com erro relativo de 15 %. O *hold-up* na condição de inundação é obtido igualando-se U_k nas Eqs. (3.17) e (3.18):

$$\phi_{flood} = \frac{-b - 2 \pm \sqrt{(b + 2)^2 + 4(b + 1) \left(\frac{U_{c,flood}}{U_{d,flood}} - 1 \right)}}{2(b + 1) \left(\frac{U_{c,flood}}{U_{d,flood}} - 1 \right)} \quad (3.19)$$

Na prática, opera-se a coluna em condições 50-75 % abaixo das condições de inundação (Cusack e Fremeaux, 1991).

3.2.4 Mistura Axial

Os fenômenos hidrodinâmicos que promovem a alteração no tempo de residência das fases líquidas no interior da coluna são denominados comumente de mistura axial. Como efeito direto da mistura axial, as fases líquidas permanecem contactadas por mais tempo, promovendo a aproximação entre as curvas de equilíbrio e de operação, em cada estágio, prejudicando, assim, a força-motriz do processo de transferência de massa.

Os primeiros modelos propostos para descrever o comportamento de colunas de extração em contra-corrente foram baseados no modelo empistonado ou *plug-flow*. A simulação do comportamento das fases dada por esses modelos geralmente resulta em equipamentos subdimensionados, já que os efeitos de mistura axial não são considerados. A incorporação desses efeitos, particularmente significativos para a descrição do comportamento do observado para a fase contínua, levam à idéia de fluxo não ideal. Os efeitos de mistura axial, ao contrário do observado para a fase contínua, são pouco significativos para a fase dispersa, sendo o desvio do escoamento ideal dessa fase atribuído às diferentes velocidades de ascensão das gotas, para classes de tamanho distintas (Chartres e Korchinsky, 1975; Dongaonkar *et al.*, 1991; Mizek, 1994; Mansur *et al.*, 2003).

Diversas pesquisas têm sido realizadas empregando-se diversos tipos de colunas no sentido de analisar os efeitos de mistura axial, além da medida experimental de parâmetros de mistura axial (Tsouris *et al.*, 1990; Aravamudan e Baird, 1999; Haunold *et al.*, 1990; Godfrey *et al.*, 2001). A mistura axial da fase contínua é comumente caracterizada pelo coeficiente de dispersão axial da fase contínua (E_c), utilizando-se um modelo diferencial em torno da posição axial z da coluna. A seguinte equação define o fluxo de dispersão local do soluto para um gradiente de concentração local, via analogia à teoria de difusão da lei de Fick:

$$J = -E_c \frac{dC_c}{dz} \quad (3.20)$$

Normalmente, valores medidos de E_c são distintos de zero mesmo em condições de não agitação, por causa dos efeitos de *channelling* ou caminhos preferenciais da fase dispersa. Com o aumento da agitação, o coeficiente de dispersão axial tende a aumentar.

A mistura axial é um termo geral empregado para descrever os desvios do escoamento empistonado das fases líquidas no interior da coluna. É comum considerá-lo como sendo a soma dos efeitos de *backmixing* (ou retromistura) e *forward mixing*. O efeito de *backmixing* da fase contínua é atribuído ao fluxo circulatório difusivo ou induzido da fase contínua nos estágios, e em parte pelo arraste das gotas da fase dispersa. A quantificação dos parâmetros de *backmixing* é feita mediante ajuste de dados experimentais a um modelo discreto, considerando mistura perfeita em cada estágio da coluna, sendo o efeito não-ideal dado pelo retorno de parte das fases líquidas na direção contrária ao escoamento natural das fases (Mansur *et al.*, 2003).

Esse efeito somente é significativo para a fase contínua. Já o efeito de *forward mixing* da fase contínua é causado pela variação radial na velocidade axial das fases, sendo que a distribuição de tamanho das gotas fornece um efeito similar para a fase dispersa. De uma maneira geral, esse efeito é mais significativo na fase dispersa. Os efeitos do *forward mixing* são maiores em baixos níveis de agitação e baixos valores de *hold-up*, onde se verificam distribuições de tamanho de gotas mais largas. Em condições de elevada agitação, a distribuição de tamanho de gotas se torna mais uniforme e, conseqüentemente, o efeito de *forward mixing* é reduzido. O movimento das gotas é complicado pela interação entre estas, ou seja, pelas taxas de quebra e coalescência, e, também, por distorções durante a sua ascensão na coluna. Assim, o fluxo ao redor das gotas pode ser impedido pelas outras gotas na dispersão e, algumas vezes, muitas gotas podem se mover em direção contrária devido ao arraste pela fase contínua. Em suma, o comportamento de ascensão das gotas é descrito melhor por efeitos de *forward mixing* do que por efeitos de *backmixing*, que por sua vez, descreve melhor o comportamento da fase contínua.

Os coeficientes de dispersão axial das fases dispersa (E_d) e contínua (E_c) são geralmente medidos pelo uso da técnica de injeção de traçador sob a forma de pulso ou degrau. Com a injeção de um pulso de traçador dentro da fase contínua, por exemplo, é possível medir o tempo de residência e a distância percorrida dentro da coluna, que normalmente segue uma função de distribuição log-normal. Pela distribuição do tempo de residência obtido, é possível calcular o tempo médio de residência e o número de Peclet (Pe_c). Segundo Mizek (1994), somente gotas muito pequenas são arrastadas pelos turbilhões da fase contínua e sofrem ação de *backmixing*. As gotas maiores escapam do arraste e escoam na direção natural ascendente. A menos que o tamanho médio das gotas seja muito pequeno, o valor médio de E_d é sempre inferior ao de E_c , sendo praticamente nulo em condições normais de operação. Assim, somente correlações para o cálculo de E_c são mostradas a seguir.

A mistura axial da fase contínua é usualmente descrita pelo modelo de dispersão, uma vez que esta fase é contínua ao longo da coluna. Existem diversas correlações para a sua predição, em vários tipos distintos de colunas, normalmente apresentadas em dois formatos:

$$\frac{E_c}{U_c H} = k_1 + k_2 \left[\frac{D_R N_R}{U_c} \right]^{k_3} \quad (3.21)$$

$$\frac{E_c}{U_c H} = k_1 + k_2 \frac{\text{Re}_R^{k_3}}{\text{Re}^{k_4}} \quad (3.22)$$

A Eq. (3.21) é inconsistente para fases contínuas estagnadas quando $U_c = 0$ (exceto se $k_3 = 1$). Em ambas as correlações, a constante k_2 é função da geometria particular da coluna, incluindo o diâmetro da coluna (Godfrey *et al.*, 2001). Kumar (1985), Dongaonkar *et al.* (1991) e Godfrey *et al.* (2001) observaram um aumento mais ou menos linear no coeficiente de mistura axial da fase contínua (E_c) com a velocidade de agitação. Kumar (1985) sumarizou diversas correlações empíricas para o cálculo do coeficiente de mistura axial da fase contínua e dispersa. Para a Kühni, a seguinte correlação foi obtida para colunas com diâmetros de 150, 600 e 800 mm (Godfrey *et al.*, 2001):

$$\frac{E_c}{U_c H} = 0,14 + 0,046 \frac{N_R D_R S_e}{U_c} \quad (3.23)$$

A Eq. (3.23) foi obtida a partir do ajuste de dados experimentais do escoamento de apenas uma única fase, contudo ela é bastante empregada na literatura por se mostrar adequada na estimativa de E_c mesmo sob condições de escoamento bifásico, além de ser válida para vários diâmetros de coluna.

O modelo discreto, em comparação ao modelo contínuo, é mais adequado na descrição de equipamentos em estágios, como é o caso da coluna Kühni. A coluna é tratada como uma série de estágios interconectados, em mistura perfeita, onde a retromistura ocorre na forma de fluxos contrários à direção normal das fases ou retrofluxo. O parâmetro de dispersão utilizado neste caso é o coeficiente de *back-mixing* (α), que representa a razão do retrofluxo com relação ao fluxo da fase contínua. A solução do modelo discreto se aproxima da solução do modelo contínuo com o aumento no número de estágios, sendo a relação entre os coeficientes dada pela seguinte expressão (Pratt, 1983):

$$\frac{1}{Pe_c} = \frac{E_c(1-\phi)}{U_c H} = \alpha + 0,5 \quad (3.24)$$

3.3 Transferência de Massa

Os efeitos hidrodinâmicos encontram-se intimamente relacionados aos de transferência de massa em operações com colunas de extração líquido-líquido, e vice-versa. Com relação ao primeiro aspecto, ou seja, o efeito da hidrodinâmica na transferência de massa, tem-se que a taxa de transferência de massa depende fundamentalmente da área superficial entre as fases, dada pela distribuição de diâmetro das gotas. Por outro lado, com relação ao efeito contrário, tem-se que a taxa de coalescência das gotas é significativamente afetada pela transferência de massa (Slater, 1994), sendo esse, pois, um fator decisivo na determinação do tamanho das gotas. Gotas maiores, decorrentes do aumento nas taxas de coalescência, se movem mais rapidamente através da coluna, resultando na diminuição do tempo de residência das gotas e, conseqüentemente, diminuindo o *hold-up* da fase dispersa (Tsouris e Tavlarides, 1993). Da mesma forma, tais alterações nas velocidades superficiais das fases provocam mudanças no ponto de inundação, mistura axial, etc. Portanto, o efeito da transferência de massa associado ao da hidrodinâmica das fases líquidas é decisivo no estudo de colunas de extração líquido-líquido.

Baseando-se na teoria da dupla película, ao redor e internamente às gotas de fase dispersa, tem-se que a transferência de massa ocorre por difusão do soluto através dos filmes estagnados externo e interno às gotas, através da interface líquido-líquido. A taxa de transferência de massa é dinâmica e controlada pela resistência à difusão nas fases líquidas, cuja contribuição em cada uma das fases pode ser quantificada mediante o uso de coeficientes individuais de transferência de massa para as fases contínua (k_c) e dispersa (k_d). O processo de transferência de massa se encerra ao se atingir a condição de equilíbrio de concentrações, quando não mais se verifica o fluxo de massa interfacial. Em algumas situações, o cálculo dos coeficientes individuais de transferência de massa envolve o ajuste de dados experimentais a modelos complexos, daí o uso corriqueiro de coeficientes globais de transferência de massa, englobando os efeitos individuais mencionados. A resistência à transferência de massa em sistemas não-reativos ou com reação interfacial instantânea é dada por (Kumar e Hartland, 1999):

$$\frac{1}{K_c} = \frac{1}{k_c} + \frac{1}{mk_d} \quad (3.25)$$

$$\frac{1}{K_d} = \frac{1}{k_d} + \frac{m}{k_c} \quad (3.26)$$

em que m representa o coeficiente de partição do soluto entre as fases líquidas. A maior das duas resistências controla o processo global de transferência de massa.

A transferência de massa no interior de gotas esféricas de sistemas líquido-líquido apresenta dois comportamentos distintos, a depender do seu tamanho. Gotas menores geralmente se comportam como esferas rígidas, sendo a transferência de massa determinada por efeitos puramente difusivos. Gotas maiores, ao contrário, apresentam movimentação interna dos fluidos, sendo a transferência de massa em seu interior determinada por efeitos difusivos e convectivos. Além da transferência de massa no interior das gotas, o processo de extração também é influenciado pelas condições existentes na superfície dessas, que pode ser imóvel, parcialmente móvel ou completamente móvel. A transferência de massa dentro ou fora das gotas é um processo transiente onde se verifica o acúmulo ou esgotamento do soluto dentro das gotas. Para descrever o processo de transferência de massa, soluções analíticas têm sido obtidas pelo estudo da difusão em gotas estagnadas ou que estão sobre o efeito de circulação laminar. Uma revisão detalhada sobre a transferência de massa em colunas de extração é apresentada por Slater (1994).

3.4 Modelagem de Colunas de Extração Líquido-Líquido

Nos últimos anos, considerável progresso tem sido alcançado na modelagem de colunas de extração líquido-líquido (Steiner, 1994). Isto se verifica na medida em que os fundamentos relativos a hidrodinâmica e a transferência de massa são melhor compreendidos, como é o caso, por exemplo, da quebra das gotas, da velocidade característica para gotas individuais e o coeficiente de mistura axial em ambas as fases, para colunas de diversos tipos e diâmetros (Haunold *et al.*, 1990; Tsouris *et al.*, 1990; Aravamudan e Baird, 1999; Godfrey *et al.*, 2001). Um importante fenômeno que ainda não é conhecido completamente é o de coalescência das gotas e suas conseqüências para a hidrodinâmica da coluna e a transferência de massa.

A descrição matemática da fase dispersa de maneira realista constitui o principal obstáculo à elaboração de procedimentos de cálculo para colunas de extração líquido-líquido. Por essa

razão, ainda é comum o uso de modelos simplificados que representam apenas uma aproximação da realidade. A aplicação dos modelos demanda o conhecimento de diversos parâmetros físicos, geométricos, operacionais e químicos. Dentre estes, a maioria dos parâmetros operacionais (*hold-up*, diâmetro das gotas, coeficiente de mistura axial, etc.) são comumente estimados mediante correlações empíricas disponíveis na literatura ou medidos experimentalmente.

De uma maneira geral, três tipos básicos de equacionamento são identificados na literatura (Mohanty, 2000): (1) empíricos, mais simples e obtidos a partir do ajuste de dados experimentais em função de propriedades físicas, geometria da coluna e condições operacionais; (2) contínuos, que são obtidos através da formulação de equações de conservação diferenciais para as fases líquidas; (3) discretos ou em estágios, para os quais a coluna é dividida em vários estágios, em mistura perfeita, nos quais são aplicados os balanços de massa. É comum observar a existência de modelos híbridos do tipo contínuo e/ou discreto, apresentando a estimação de alguns parâmetros operacionais via o uso de modelos empíricos. Assim, a escolha de um modelo matemático a ser utilizado na descrição do comportamento operacional de uma coluna de extração líquido-líquido deve ser criteriosa, dado os vários modelos encontrados na literatura.

Os modelos mais simples utilizados na descrição da operação em colunas de extração líquido-líquido consideram que ambas as fases são contínuas no interior do equipamento. Tem-se, contudo, que uma das fases sempre se encontra dispersa sob a forma de gotas durante a operação em colunas. Entretanto, se as gotas quebram e/ou coalescem com frequência, qualquer mudança de concentração é rapidamente sentida nas suas vizinhanças, de forma que não existe diferença significativa de concentração em gotas de diferentes tamanhos. Esta consideração simplifica bem os cálculos uma vez que podem ser utilizados valores médios de determinados parâmetros como *hold-up* e coeficiente de transferência de massa. Assim, o mais simples de todos os modelos assume as duas fases escoando em regime empistonado (*plug flow*), sem nenhum efeito da mistura axial. Estes modelos, tanto contínuo ou em estágios, somente podem ser utilizados para gerar aproximações iniciais do comportamento da coluna. Da mesma forma, dois modelos distintos são obtidos, a depender da estrutura do equacionamento considerado, quando se consideram os efeitos de mistura axial: contínuo (modelo da dispersão) ou em estágios discretos (modelo *backmixing*). A descrição do escoamento não-ideal no interior da coluna é feita por analogia à difusão molecular unidimensional, substituindo o

coeficiente de difusão (função das propriedades dos fluidos) pelo coeficiente de dispersão (função do regime hidrodinâmico), como mostrado na Eq. (3.20). Tem-se que a solução do modelo discreto se aproxima da solução do modelo contínuo com o aumento do número de estágios.

Segundo Kumar e Hartland (1999), as principais características do modelo discreto são: (1) a não idealidade da fase contínua é expressa em termos da taxa de *backflow*; (2) o comportamento da fase dispersa é descrito em termos de cada estágio; (3) as propriedades físicas variam de estágio para estágio; (4) o valor dos parâmetros de operação, tamanho de gota, *hold-up*, velocidade de deslizamento, mistura axial da fase contínua e coeficientes de transferência de massa variam de estágio para estágio; (5) a relação de equilíbrio pode não ser linear; e (6) as duas fases são parcialmente miscíveis.

O maior problema associado ao modelo *backmixing* reside no fato de se considerar ambas as fases líquidas contínuas. É por este motivo que o coeficiente de *backmixing* é realista somente para a descrição da fase contínua. Ajustes de dados experimentais a modelos indicam que, para a fase dispersa, o coeficiente de *backmixing* é nulo ou muito pequeno (Chartres e Korshinsky, 1975; Mansur *et al.*, 2003). As gotas não retornam aos estágios inferiores da coluna, a não ser quando estas são muito pequenas ou quando a coluna opera em condições próximas às de *flooding* ou inundação. Tem-se, pois, que a dispersão axial sofrida pela fase dispersa decorre da própria distribuição de tamanho de gotas. Dessa forma, modelos que levam em conta o caráter discreto das gotas devem ser utilizados quando a homogenização da concentração da fase dispersa não é suficientemente rápida, ou seja, as gotas não coalescem ou quebram de forma acentuada. Neste caso, cada elemento de material escoar segundo seu próprio caminho de escoamento, ou seja, a fase dispersa é representada em estado polidisperso. O modelo *forward mixing* pertence a essa classe de modelos, e considera que as gotas encontram distribuídas em diferentes classes de tamanho, sem sofrer, contudo, coalescência ou quebra. Em outras palavras, considera uma distribuição estática das gotas. O termo *forward mixing* foi proposto por Rod (1966) para descrever o efeito convectivo provocado pela distribuição de tamanho de gotas na hidrodinâmica e na transferência de massa em uma coluna de extração líquido-líquido. Desta forma, cada tamanho de gota é caracterizado por uma velocidade individual, coeficiente de transferência de massa e área interfacial próprios. A distribuição de tamanho das gotas provoca dois efeitos importantes: (1) gotas maiores movem-se mais rapidamente, logo apresentam menor tempo de residência dentro da coluna; (2) gotas maiores possuem menor

área interfacial em comparação a gotas menores, conseqüentemente ocorre uma diminuição na taxa de transferência de massa. Por outro lado, gotas menores atingem o equilíbrio de concentração mais rapidamente. Assim, para baixos valores de agitação, o efeito de *forward mixing* tende a ser mais significativo, uma vez que a faixa de distribuição de tamanho de gotas é ampla. Um modelo polidisperso mais elaborado é o de balanço populacional, desenvolvido para prever a distribuição de tamanho das gotas e o *hold-up* ao longo da coluna considerando taxas dinâmicas de coalescência e quebra das gotas (Ribeiro *et al.*, 1995; Kentish, 1996; Zamponi *et al.*, 1996; Kumar e Hartland, 1999). Contudo, a estrutura e a avaliação dos parâmetros requeridos por este tipo de modelo são mais complicadas, o esforço computacional muito maior quando comparado aos outros modelos.

Em suma, existe uma considerável variedade de modelos na literatura. Mohanty (2000) apresentou uma revisão atualizada sobre a modelagem de colunas para cada tipo de equipamento, a saber, pulsadas de pratos perfurados, discos rotativos (RDC), Kühni, spray, Scheibel, de recheio e Oldshue-Rushton. Mansur (2001) apresentou uma descrição detalhada dos modelos supracitados, principalmente o *backmixing*. Modelos de balanços populacionais são detalhados em Gourdon *et al.* (1994).

4 METODOLOGIA EXPERIMENTAL

Investigações experimentais em unidades em escala piloto são necessárias na condução de um projeto de colunas de extração líquido-líquido em função dos padrões de escoamento líquido-líquido no interior do equipamento. Esses padrões dependem fundamentalmente da geometria interna dos estágios, que é singular para cada tipo de coluna. Por esta razão, a descrição puramente teórica dos comportamentos operacionais em colunas de extração é bastante complexa, sendo necessário, portanto, o uso de correlações empíricas para a quantificação de parâmetros operacionais de relevância. Neste contexto, o desenvolvimento de um procedimento experimental capaz de caracterizar o comportamento hidrodinâmico em colunas contribui significativamente para a pesquisa nestes equipamentos.

Neste capítulo, é apresentado o procedimento experimental adotado para o presente estudo da hidrodinâmica de uma seção de coluna Kühni, tendo como objetivo a quantificação experimental do *hold-up* local e total, diâmetro médio de Sauter e a distribuição de tamanho de gotas de fase dispersa. Na seção 4.1, é feita uma descrição detalhada da coluna Kühni e da unidade experimental utilizada neste estudo. Na seção 4.2, são apresentadas as condições operacionais investigadas, o procedimento experimental adotado no estudo da hidrodinâmica na coluna, na ausência de transferência de massa, os testes realizados para estudar o efeito da deformação das gotas em virtude da curvatura da coluna, a metodologia empregada para a tomada das fotografias e análise das mesmas utilizando o analisador de imagens Quantikov, além das medições do *hold-up* e, ainda, a listagem de equipamentos e reagentes empregados nesta pesquisa.

4.1 Descrição da Coluna Kühni e da Unidade Piloto

A coluna Kühni empregada neste trabalho (escala piloto) apresenta três seções distintas: (1) o sedimentador inferior, que compreende a região entre a base da coluna e o primeiro prato perfurado, (2) a seção útil de separação, formada por 5 estágios agitados verticalmente conectados em série, e (3) o sedimentador superior, que compreende a região localizada acima do último prato da coluna. Uma foto da unidade piloto é mostrada na Figura 4.1, seguida por um esquema da mesma mostrada na Figura 4.2, para facilitar a visualização das correntes e dos equipamentos. A coluna encontra-se construída no interior de um tubo de vidro temperado de

borosilicato com 150 mm de diâmetro e 670 mm de altura, contendo bocais para a coleta de amostras ao longo da mesma, em cada estágio. A fase orgânica é introduzida na coluna através de um distribuidor cônico construído em aço inoxidável situado na base da coluna, no centro da mesma. A fase contínua é removida da coluna por gravidade, no fundo, e a fase dispersa por transbordamento na seção do sedimentador superior, localizado no topo. O detalhamento da configuração geométrica do impelidor usado para promover a contactação entre as fases mediante agitação, em cada estágio, é mostrado na Figura 3.1. Cada estágio é separado por pratos perfurados com área livre fracional de 30 %, cujo desenho e dimensão são mostrados detalhadamente na Figura 4.3. Na Tabela 4.1, são apresentadas as dimensões da coluna empregada. Esta coluna foi doada pelo Departamento de Engenharia Química da Universidade de Bradford, no Reino Unido, e a unidade piloto montada com financiamento da FAPEMIG (Demanda Espontânea/2002) com a participação de alunos de Iniciação Científica.



Figura 4.1: Detalhes da Coluna e unidade piloto.

A unidade piloto usada neste trabalho consiste de uma seção da coluna Kühni, dois tanques para as fases aquosa e orgânica (construídos em polipropileno, com 10 L de capacidade cada), duas bombas rotativas de deslocamento positivo (bomba Nemo, marca Netzsch, modelo NM021B, com cabeçotes em viton para a fase aquosa e em poli (fluoreto de vinilideno) - PVDF para a fase orgânica), munidas de sistema de controle contendo indicador digital e controlador de vazão para ambas as fases líquidas (sistema com inversores de frequência,

marca WEG, série CFW-08), e um agitador central dos impelidores, localizado no topo da unidade piloto (marca Fisatom, com controle digital de velocidade), conforme mostrado esquematicamente na Figura 4.2.

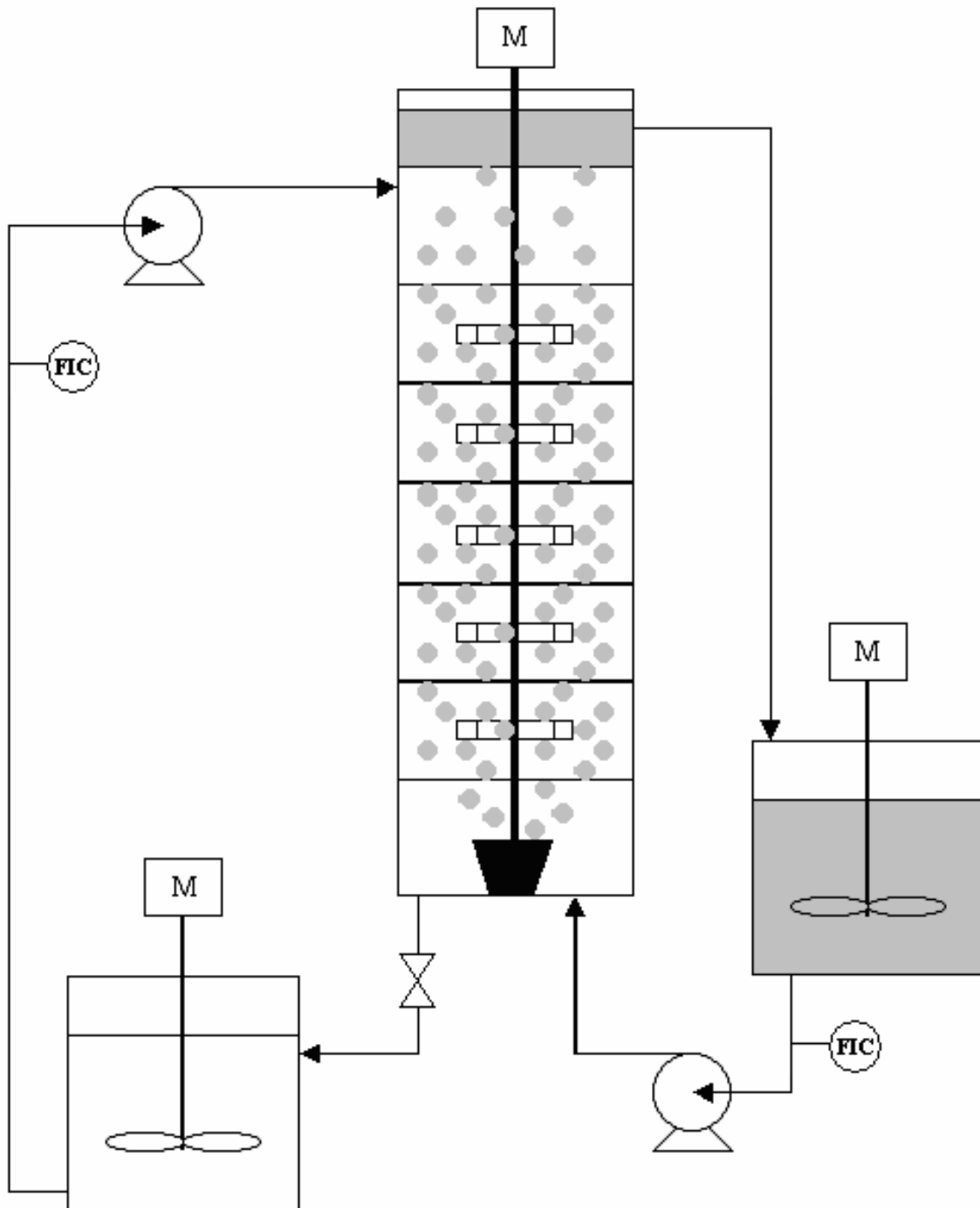


Figura 4.2: Esquema da montagem adotada para o presente trabalho.

Tabela 4.1: Dimensões da seção de coluna Kühni utilizada neste trabalho.

Diâmetro da Coluna (mm)	150
Número de Estágios	5
Altura do Estágio (mm)	70
Diâmetro do Impelidor (mm)	85
Altura do impelidor (mm)	10
Área Livre Fracional dos Pratos (%)	30

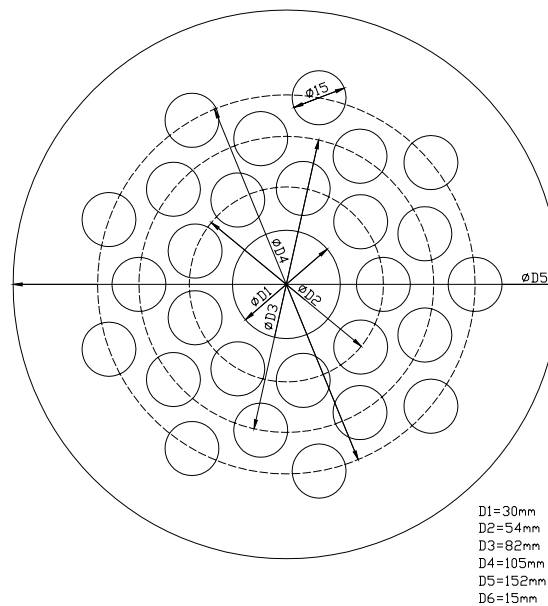


Figura 4.3: Prato perfurado com 30 % de área livre.

4.2 Metodologia adotada para o Estudo da Hidrodinâmica

4.2.1 Condições Operacionais Investigadas

As seguintes variáveis operacionais foram investigadas no estudo da hidrodinâmica da coluna Kühni: velocidade de agitação, altura na coluna e vazão das fases dispersa e contínua. Os valores da faixa operacional investigada foram definidos com base na máxima capacidade operacional da coluna (ponto de inundação) e informações da literatura (Mansur, 2001), além da realização de ensaios preliminares. Assim, foram estudadas as condições mostradas na Tabela 4.2.

Tabela 4.2: Faixa operacional das variáveis investigadas neste estudo.

	Condição operacional investigada
Agitação (rpm)	60, 90, 120, 150 e 180
Vazão da fase dispersa (mL/min)	1240 e 2000
Vazão da fase contínua (mL/min)	1240 e 2000
Estágio, a partir da base	0 (distribuidor), 1, 3 e 5

A faixa experimental das vazões empregada neste estudo foi estabelecida em termos da limitação operacional da unidade piloto. Vazões superiores a 2.000 mL/min provocavam o arraste de aquoso na saída de orgânico, dado o pequeno volume da zona de sedimentação no topo da coluna, enquanto que vazões abaixo de 1.240 mL/min não foram possíveis com as bombas empregadas no estudo.

Na Tabela 4.3, apresentam-se as propriedades físicas dos fluidos utilizados nos ensaios. Em todos os ensaios realizados, utilizou-se água como fase contínua e querosene Exxsol D-80 como fase dispersa. Os ensaios foram realizados a temperatura ambiente.

Tabela 4.3: Propriedades físicas dos fluidos empregados neste trabalho
(Angeli e Hewitt, 2000).

	Água	Querosene Exxsol D-80
Densidade (kg/m ³)	1000	801
Viscosidade (kg/m.s)	0,001	0,0016
Tensão interfacial (N/m)		0,017

O querosene Exxsol D-80 é fornecido pela Exxon Mobil, e possui composição essencialmente alifática (percentual máximo de aromáticos de 0,50 % em peso).

4.2.2 Descrição Experimental das Corridas

O procedimento experimental adotado para as corridas na coluna foi proposto por Moreira *et al.* (2005) no estudo da hidrodinâmica de uma coluna de discos rotativos (RDC). Inicialmente, procede-se a saturação das fases líquidas, para evitar a ocorrência de interferências na medição

experimental das gotas decorrentes do efeito de miscibilidade das fases líquidas. Em seguida, faz-se a realização das corridas para a tomada de fotografias das gotas e mensuração do *hold-up* local e total. O ensaio para a saturação das fases líquidas é idêntico às corridas definitivas.

Para a saturação das fases, a coluna é preenchida com água, bombeada a partir do tanque de aquoso, até encobrir todos os estágios. A válvula localizada na linha de retorno de aquoso para o tanque é ajustada de forma a manter o nível de fase aquosa na coluna sempre constante. Em seguida, a coluna é alimentada com querosene comercial Exxsol D-80, bombeado a partir do tanque de orgânico, usado nas corridas como fase dispersa. Para evitar a miscibilidade parcial entre a água e o querosene, a coluna é operada por cerca de 30 minutos ininterruptos para saturar as fases líquidas entre si. Nesta corrida, a coluna opera com agitação tal que promova um contato efetivo entre os líquidos. Depois de transcorrido o tempo de contactação, a agitação é interrompida, a bomba de alimentação de orgânico é desligada, seguida da bomba de alimentação de aquoso, e a válvula é fechada.

A corrida para a tomada de fotografias das gotas é realizada estando a coluna preenchida com água, então saturada com querosene, que recircula através da unidade com uma vazão pré-estabelecida. A fase dispersa é, então, alimentada ao se ligar a bomba de orgânico, na vazão escolhida para o ensaio. O nível de orgânico, na seção superior, move-se para cima até que essa fase passa a circular para o tanque e novamente para a coluna, fechando o circuito. A vazão de ambas as fases é ajustada para o valor desejado na corrida utilizando-se o sistema de controle digital das respectivas bombas, através do inversor de frequência. A seguir, o motor que aciona a agitação dos impelidores é ligado e sua velocidade de agitação ajustada para o valor desejado. A coluna é operada por no mínimo 20 minutos para o estabelecimento do regime estacionário hidrodinâmico. Após escolhido o estágio para a tomada das fotografias, a câmera fotográfica é posicionada com o auxílio de um tripé, de onde são tiradas as fotos das gotas para posterior análise (vide item 4.2.3). Repete-se o mesmo procedimento, variando, para cada estágio, a vazão de alimentação das fases e/ou velocidade de agitação. O número de fotos em cada corrida não é fixo e depende da quantidade aproximada de gotas que se observa nas fotos, quantidade esta que se mostrou diretamente proporcional à vazão da fase dispersa e velocidade de agitação dos impelidores.

Prevendo-se que um número razoável de gotas deveriam ser contadas, partiu-se para um estudo estatístico antes de se iniciar a análise da distribuição de tamanho propriamente dita.

Objetivou-se determinar quantas gotas seria necessário contar, no mínimo, para que o resultado fosse estatisticamente representativo da população de gotas em cada estágio, para cada condição operacional investigada. Foi realizada, então, uma análise individual dos mesmos dados, só que investigados por diferentes usuários, de maneira a se verificar o efeito do contador nos resultados obtidos. Os resultados encontrados para três contadores distintos são apresentados no Anexo 1.

Após a análise das imagens, realizou-se a medição do *hold-up* local e total. O *hold-up* total foi medido experimentalmente pelo método de desligamento da coluna (*shutting down method*), baseada na posição da interface líquido-líquido no topo da coluna. As duas bombas são desligadas e a válvula de saída de aquoso fechada simultaneamente, mantendo-se a agitação para promover a subida das gotas remanescentes sob os pratos e impelidores. De acordo com este método, a diferença entre os níveis interfaciais medidos durante a operação e após interrupção das vazões de alimentação está relacionada com o volume da fase orgânica dispersa na aquosa. Nesse caso, o *hold-up* é calculado dividindo-se o volume de orgânico, equivalente à diferença dos níveis, pelo volume da mistura orgânico-aquoso abaixo da interface líquido-líquido durante a operação da coluna. Para a medição do *hold-up* local, amostras de ambas as fases foram recolhidas ao longo da coluna, nos bocais de recolhimento de amostras, utilizando-se provetas graduadas. A mistura de líquidos foi deixada em repouso para a separação das fases e o *hold-up* local calculado a partir da razão entre o volume de orgânico e o volume total de líquidos coletados na proveta (Kumar, 1985).

4.2.3 Estudo do Desvio da Esfericidade da Gota

A superfície curva da coluna e as diferenças entre os índices de refração do ar e do vidro levam a erros sistemáticos nas medidas dos diâmetros das gotas através de análise fotográfica. A fim de quantificar o desvio de esfericidade das gotas nessas medidas, foram realizados testes utilizando-se uma esfera de aço, de diâmetro conhecido, imersa na coluna preenchida com água. O diâmetro real da esfera é medido com um paquímetro e esta é, então, submersa na água, fixada a um fio de Nylon, de modo a permitir sua movimentação em diversas posições dentro da coluna (Figura 4.4). As fotografias são tiradas com a esfera posicionada de forma desejada sob as mesmas condições de iluminação e configurações da máquina fotográfica adotadas para a tomada de fotos na coluna.

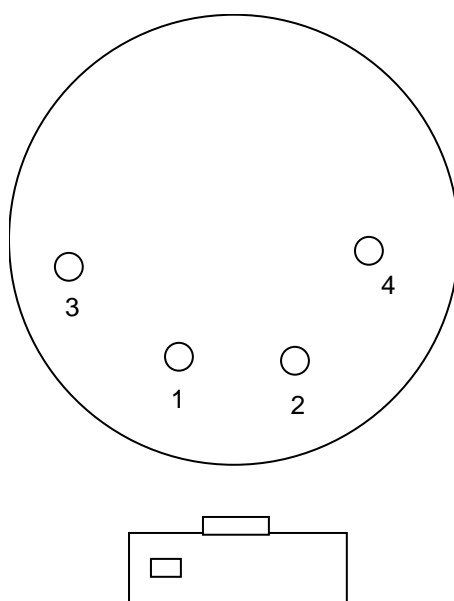


Figura 4.4: Vista superior da coluna mostrando as posições da esfera de aço.

As fotos obtidas são analisadas e o diâmetro da esfera é quantificado para as várias posições na coluna, seguindo-se exatamente o mesmo procedimento de análise fotográfica adotados para os ensaios na coluna Kühni. Os resultados encontram-se no Anexo 2.

4.2.4 Tomada e Análise das Fotografias

O estudo do diâmetro médio e da distribuição de diâmetro das gotas de fase dispersa na Kühni foi feito através da análise de fotografias tiradas ao longo da coluna, em pontos específicos e sob as condições operacionais apresentadas na Tabela 4.2.

Para a realização das fotografias, foi utilizada uma câmera digital marca Nikon, modelo Coolpix 990, apoiada sobre um tripé (marca Ikon, modelo SLIK U 9000). A câmera é posicionada a cerca de 20 cm de distância da coluna, de modo a permitir que a imagem esteja nítida sem o uso do recurso de “zoom” da câmera. Exceto para a tomada de fotos nos estágios 3 e 5, na velocidade de rotação do impelidor de 150 e 180 rpm, utilizou-se o “zoom” para tornar mais nítidas as imagens das gotas, uma vez que estas se apresentavam em tamanho extremamente pequeno, de difícil mensuração. Foram testadas diversas condições de luz, abertura de diafragma, etc., até se chegar à configuração apresentada nas Figuras 4.5 e 4.6, que oferece imagens com qualidade e nitidez das gotas de fase dispersa no interior da coluna para as condições operacionais investigadas. Utilizou-se, também, um fundo azul de cartolina, fixada na superfície externa da mesma, com o objetivo de realçar o contraste e permitir uma visualização mais nítida do contorno das gotas. Além disso, para a determinação do diâmetro das gotas através de análise das fotografias, fixou-se uma régua contendo uma escala graduada em papel milimetrado externamente à coluna e em cada estágio fotografado, situada na mesma distância focal das gotas a serem analisadas, no caso, no plano central da coluna. As fotografias foram tiradas em seqüência ininterrupta, no modo manual, sem alterações nas configurações. A posição da máquina em relação à coluna é alterada apenas na tomada de fotos nos estágios 3 e 5, na rotação de 150 e 180 rpm, pelos mesmos motivos expostos anteriormente.

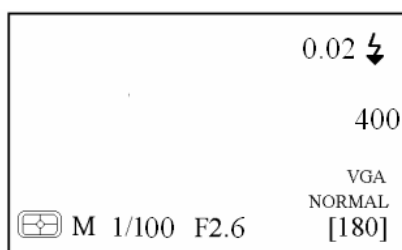


Figura 4.5: Esquema ilustrativo do painel da câmera, destacando-se a configuração adotada neste trabalho.

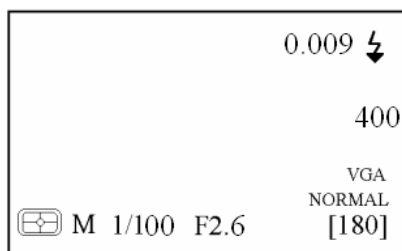



Figura 4.6: Esquema ilustrativo do painel da câmera, destacando-se a configuração adotada neste trabalho para a tomada de fotos nos estágios 3 e 5, nas velocidades de 150 e 180 rpm.

0,02 e 0,009 - Fotografia de um objeto a 20 e 9 cm da máquina;

 - Flash sempre ligado;

VGA
NORMAL - Relacionado com a resolução da foto;


[180] - Número máximo de fotos na resolução determinada;

F2.6 - Distância focal;

1/100 - Tempo de abertura do diafragma;

M - Modo manual de operação;


400 - ISO 400;

 - Foco na melhor posição de acordo com condições do ambiente.

Os diâmetros das gotas foram analisados, neste trabalho, com o auxílio do analisador de imagens Quantikov (versão 2004). O programa, desenvolvido e gentilmente cedido pelo Dr. Lúcio Carlos Martins Pinto, do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear (CDTN), localizado em Belo Horizonte, quantifica distribuições de área e de volume de micropartículas, como grãos e poros, por exemplo. O programa, além de ser compatível com a plataforma operacional Windows, oferece informações como fator de forma, perímetro, relação área superficial por unidade de volume e intercepto linear médio, dentre outras. Para o caso específico do estudo na coluna Kühni, o programa possibilita a determinação do diâmetro das gotas analisadas e a distribuição estatística destes diâmetros.

Após obtidas as fotografias digitais, estas foram descarregadas da câmera digital em um computador. Os arquivos de fotografia, em formato JPG, são, então, convertidos para a

extensão BMP pelo próprio programa Quantikov. Em seguida, são determinados os diâmetros das gotas através da medição manual das gotas em cada fotografia.

Uma escala de referência é definida no programa para a análise de cada grupo de fotografias, obtidas obrigatoriamente sob as mesmas condições de posição da máquina. Para a calibração da medida, se utiliza a imagem da escala graduada em papel milimetrado localizada ao lado da coluna, visível em cada fotografia. A calibração é efetuada pelo comando , como pode ser visto na Figura 4.7. Ao se clicar neste botão, efetua-se uma medida de tamanho conhecido (no caso, a escala milimetrada) e o valor medido é então corrigido no campo “Largura (mm)”, com um duplo clique do mouse, que leva à tela ilustrada na Figura 4.8, na qual dá-se o valor real da medida efetuada e nomeia-se a escala definida.

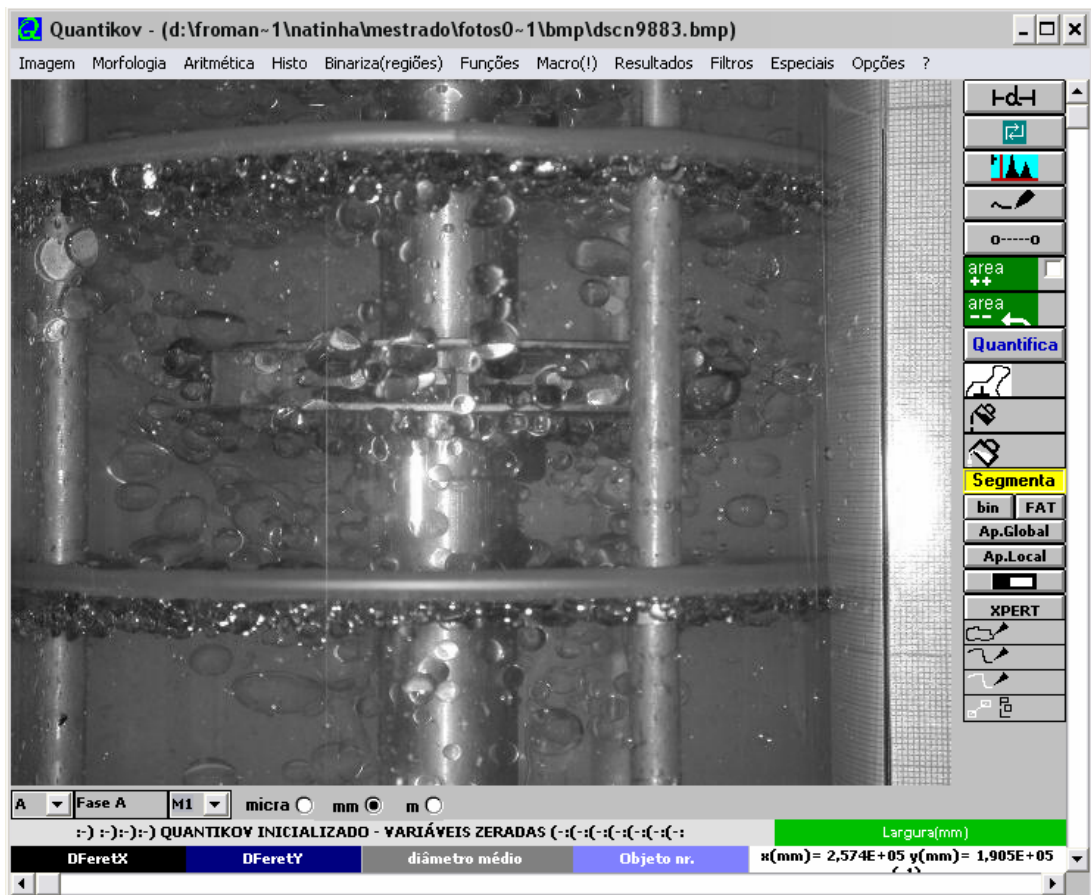


Figura 4.7: Tela do programa Quantikov com imagem a ser analisada.



Figura 4.8: Tela do programa Quantikov para ajuste de escala.

Após a calibração, parte-se para a medida do diâmetro das gotas através do botão que retorna o comprimento de uma reta formada ao se clicar em dois pontos da imagem. Assim, os pontos são escolhidos no contorno da gota, ao longo do diâmetro vertical, como pode ser visto no exemplo da Figura 4.9, de acordo com a metodologia proposta por Moreira *et al.* (2005).

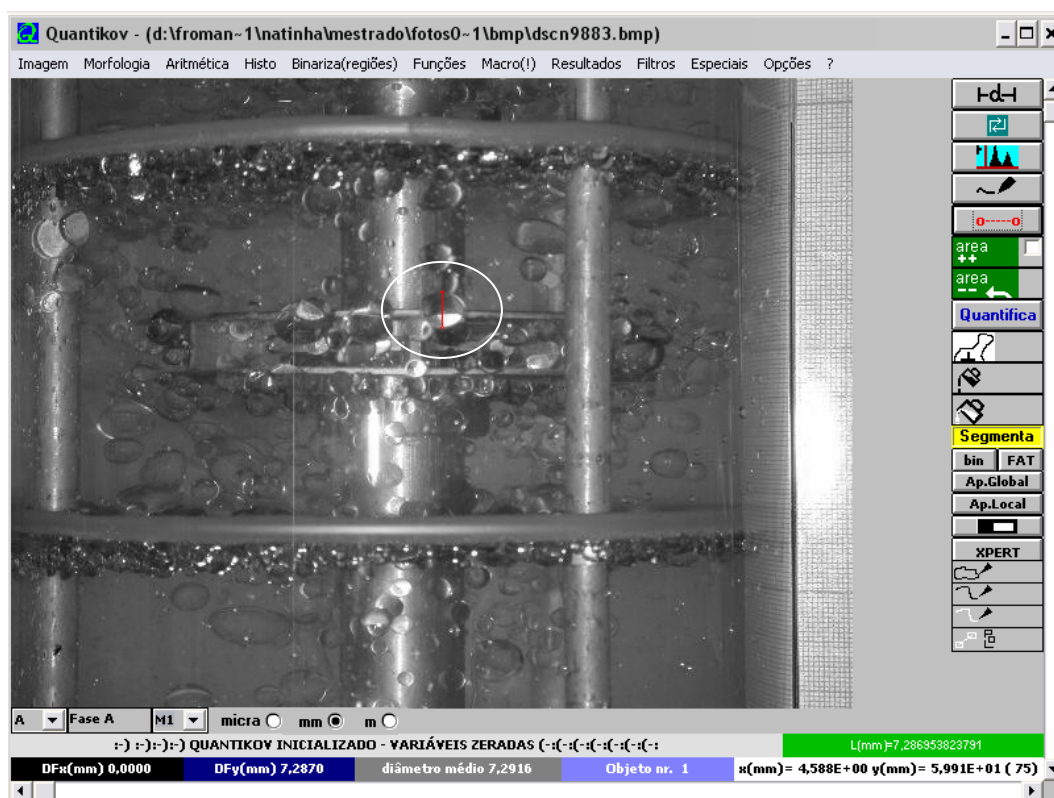


Figura 4.9: Exemplo de determinação de diâmetro de gota utilizando-se o Quantikov.

Em cada foto, passa-se à determinação do diâmetro do maior número possível de gotas visíveis, com boa definição de contornos. O programa permite, também, o armazenamento dos dados. Assim, é possível a análise de diversas fotos sob as mesmas condições, a fim de se obter um número estatisticamente significativo de gotas dimensionadas. No presente trabalho, são analisadas 400 gotas para cada condição investigada (até 60 fotos). O programa gera um relatório ao término da análise das fotos, contendo os valores de diversos parâmetros como diâmetro, perímetro, área, fator de forma, etc., discriminados individualmente para todas as gotas analisadas. Para a geração do relatório, deve-se primeiramente utilizar o comando “Resultados/Gera Estatística/Filtro>Diâmetros”, que leva à tela mostrada na Figura 4.10.

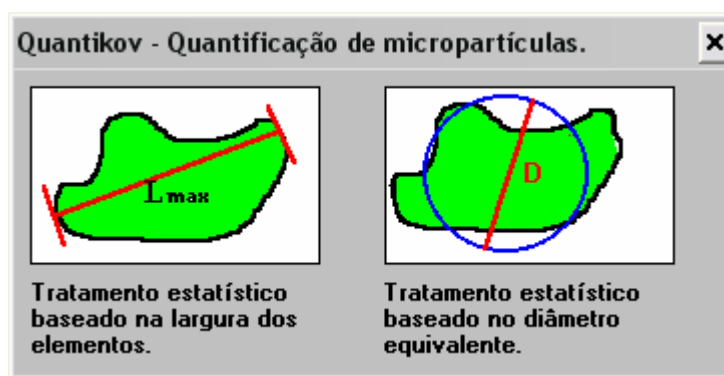


Figura 4.10: Tela do programa Quantikov gerada pelo comando “Resultados/Gera Estatística/Filtro>Diâmetros”.

Ao se clicar na tela apresentada na Figura 4.10, é originada a tela apresentada na Figura 4.11, que retorna o maior e o menor diâmetro encontrados nas medidas efetuadas.

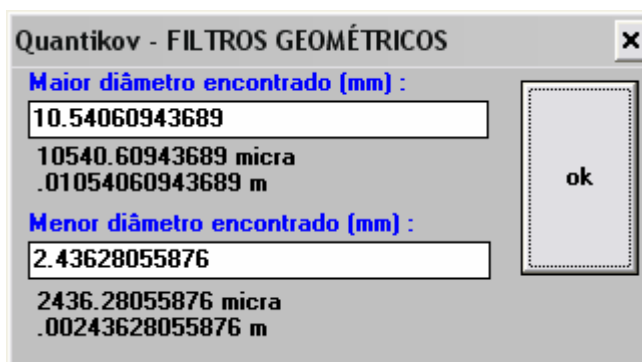


Figura 4.11: Tela do programa Quantikov com os valores extremos de diâmetros medidos.

Para a análise da fotografia, o programa requer que um fator de forma seja considerado, adotando-se valor unitário, ou seja, estima-se um diâmetro equivalente das gotas em diferentes

estágios, considerando-as perfeitamente esféricas. Este fator é introduzido na tela subsequente àquela apresentada na Figura 4.11, como pode ser visto na Figura 4.12.

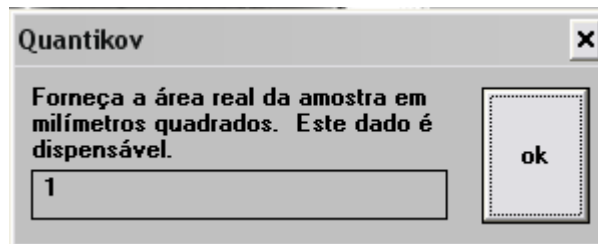


Figura 4.12: Fator de forma considerado para as medidas efetuadas.

Após a inserção deste último dado, o programa retorna um resumo dos dados processados, conforme mostrado na Figura 4.13.

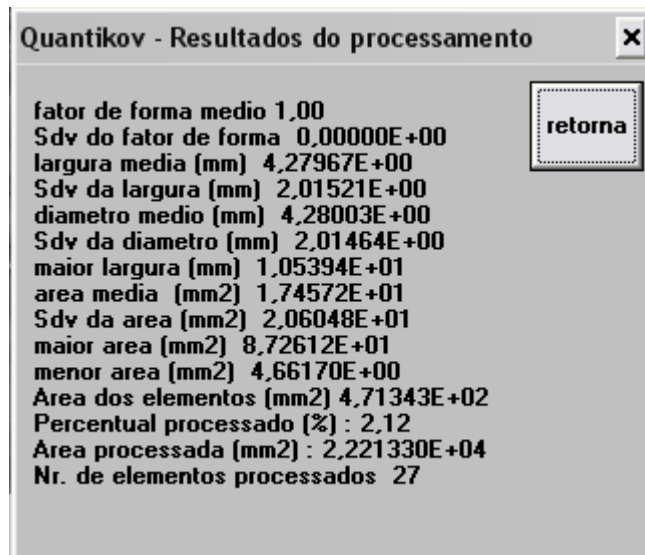


Figura 4.13: Resumo dos dados processados pelo programa Quantikov.

Ao final deste procedimento, o programa está apto a gerar um relatório global contendo dados de vários parâmetros quantificados para cada medida efetuada, como pode ser visto no exemplo da Figura 4.14. Este relatório é gerado através do comando "Resultados/Globais".

dscn9882.prn - WordPad

Arquivo Editar Exibir Inserir Formatar Ajuda

Quantikov Image Analyzer
 RESULTADO DA QUANTIFICAÇÃO DE ELEMENTOS
 21/11/04 - 21:52

 RESULTADOS DAS MEDIÇÕES EM CADA ELEMENTO

ELEMENTO NR.	largura (nm)	perimetro (nm)	area (nm ²)	diametro (nm)	F. forma
1	1,001440E+01	3,135072E+01	7,874042E+01	1,001276E+01	1,00
2	5,667631E+00	1,781255E+01	2,520232E+01	5,664680E+00	1,00
3	3,238646E+00	1,025571E+01	8,230817E+00	3,237252E+00	1,00
4	3,778420E+00	1,187504E+01	1,121722E+01	3,779181E+00	1,00
5	3,508533E+00	1,106537E+01	9,687599E+00	3,512070E+00	1,00
6	4,857969E+00	1,538357E+01	1,850113E+01	4,853490E+00	1,00
7	3,778420E+00	1,187504E+01	1,121722E+01	3,779181E+00	1,00
8	3,508533E+00	1,106537E+01	9,687599E+00	3,512070E+00	1,00
9	1,053943E+01	3,319612E+01	8,726123E+01	1,054061E+01	1,00
10	3,238646E+00	1,025571E+01	8,230817E+00	3,237252E+00	1,00
11	3,508533E+00	1,106537E+01	9,687599E+00	3,512070E+00	1,00
12	4,048308E+00	1,268470E+01	1,289252E+01	4,051576E+00	1,00
13	4,588082E+00	1,430402E+01	1,653447E+01	4,588283E+00	1,00
14	2,981001E+00	9,446052E+00	6,992553E+00	2,983822E+00	1,00
15	2,968759E+00	9,446052E+00	6,919713E+00	2,968241E+00	1,00
16	4,351800E+00	1,376425E+01	1,485917E+01	4,349631E+00	1,00
17	3,249872E+00	1,025571E+01	8,303656E+00	3,251545E+00	1,00
18	3,238646E+00	1,025571E+01	8,230817E+00	3,237252E+00	1,00
19	3,238646E+00	1,025571E+01	8,230817E+00	3,237252E+00	1,00
20	2,428985E+00	7,556841E+00	4,661702E+00	2,436281E+00	1,00
21	4,318195E+00	1,349436E+01	1,464066E+01	4,317530E+00	1,00
22	3,238646E+00	1,025571E+01	8,230817E+00	3,237252E+00	1,00

Para obter ajuda, pressione F1

Figura 4.14: Exemplo de relatório gerado pelo analisador de imagens Quantikov.

Estes dados são, então, transferidos para uma planilha de dados (Excel for Windows) e submetidos ao tratamento estatístico adequado.

4.2.5 Reagentes e Equipamentos

Os seguintes materiais foram utilizados nos ensaios com a coluna Kuhni:

Câmera digital, marca Nikon, modelo Coolpix990

Tripé Ikon, SLIK U900

Água destilada

Querosene Exxsol D-80

Béquer de 600 e 1000 mL

Provetas de 50 e 100 mL

Cronômetro

Papel milimetrado

Régua de 30 cm

Cartolina azul, tesoura, fita adesiva

Esfera de aço

5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

Neste capítulo, são apresentados e discutidos os resultados experimentais obtidos sobre a hidrodinâmica de uma seção de coluna Kühni, em escala piloto, na ausência de transferência de massa. O presente trabalho trata do comportamento de ascensão das gotas de fase dispersa, do efeito da vazão de fase contínua em contracorrente sobre estas mesmas gotas e de suas relações com o *hold-up*, em condições reais de operação (vazões e agitação). A análise das fotografias permitiu a obtenção do diâmetro médio e da distribuição de diâmetro de gotas de fase dispersa ao longo da coluna, em função das variáveis operacionais como vazões de fase contínua e dispersa, velocidade de agitação e posição axial na coluna. Em todos os testes, foi empregado o sistema líquido-líquido água como fase contínua e querosene comercial Exxsol D-80 como fase dispersa. Os ensaios foram realizados à temperatura ambiente.

Neste estudo, primeiramente foi investigado o comportamento do *hold-up* total e local frente aos diferentes regimes de operação da coluna, nas condições experimentais estudadas, sendo proposta uma correlação empírica para o *hold-up* total baseada nestes mesmos dados. Em seguida, é apresentado um estudo para a estimativa do diâmetro médio das gotas. As correlações empíricas propostas por Fischer (1973) e Kumar e Hartland (1996) para a estimativa do diâmetro médio das gotas, normalmente recomendadas para a Kühni, foram comparadas aos resultados experimentais, tendo sido proposta uma nova correlação empírica obtida a partir dos dados experimentais na seção da coluna Kühni. E, por último, foram analisadas as distribuições de tamanhos das gotas em função das variáveis operacionais investigadas. Utilizou-se a função de distribuição log-normal na avaliação quantitativa das distribuições de tamanhos das gotas.

5.1 Avaliação da metodologia experimental para a análise das gotas

Várias técnicas de medição do tamanho de gotas foram desenvolvidas e/ou adaptadas a partir de técnicas oriundas da caracterização do tamanho de partículas sólidas (Godfrey e Slater, 1991). A aplicação dessas técnicas permite conhecer tanto o diâmetro médio das gotas de uma população quanto a sua distribuição de tamanho ao longo da coluna, em função de variáveis operacionais diversas. A técnica por capilar, por exemplo, requer amostragem física e baseia-se na conversão do comprimento das gotas coletadas no interior de um capilar de diâmetro

conhecido em um tamanho equivalente a uma esfera. Outro método, fácil, direto, porém não-invasivo, para a aquisição da distribuição de diâmetro das gotas é o fotográfico, que foi utilizado no presente trabalho. Seu uso, contudo, requer um número considerável de fotografias e tempo para análise das imagens. Segundo Kentish (1996), os métodos por capilar ou fotográfico produzem distribuições de densidade volumétrica comparáveis e diâmetros de Sauter coincidentes com 15 % de diferença. Este valor é consideravelmente menor do que os 50 % de diferença observado por Pacek e Nienow (1995), que trabalharam com gotas e diâmetro de capilar menor. Segundo estes autores, a técnica por capilar falha na captura de gotas grandes ou pequenas demais. Outro ponto importante reside no número mínimo de gotas que devem ser medidas a fim de se obter estimativas estatisticamente significativas de distribuição de tamanho das gotas. Ribeiro *et al.* (2004) mostraram, sob certas condições experimentais, a necessidade de amostrar no mínimo 1.000 gotas. Moreira *et al.* (2005), ao contrário, estudaram satisfatoriamente a hidrodinâmica de uma coluna de discos rotativos sob condições de agitação baixa via a contabilização de apenas 400 gotas. Assim, uma vez conhecida a distribuição de gotas para certa condição experimental, é possível estimar a área efetiva de transferência de massa interfacial. No entanto, antes de se determinar o número mínimo de gotas, é preciso determinar um fator que corrija a deformação das gotas medidas nas fotografias decorrentes tanto da curvatura da coluna quanto dos efeitos de paralaxe entre os ambientes interno e externo à coluna (água + vidro + ar).

Com o objetivo de quantificar o desvio de esfericidade das gotas, foram realizados testes utilizando-se uma esfera de aço de $(4,7 \pm 0,5)$ mm de diâmetro imersa na coluna Kühni preenchida com água. Pretendeu-se verificar os efeitos de paralaxe nas fotografias, decorrentes da curvatura do vidro da coluna. A medida do diâmetro da esfera, nas fotografias, utilizando-se o analisador de imagens Quantikov, foi feita nas direções horizontais e verticais. Na Figura 4.5, ilustra-se a montagem utilizada nos testes no qual a esfera foi colocada nas posições de 1 a 4. Uma escala em papel milimetrado serviu como parâmetro de comparação, e para a calibração do programa antes das medições.

Ao efetuar as medidas de diâmetro da esfera observou-se que, na posição vertical, esta sofria menores distorções, da ordem de 26 % (vide Anexo 2). Na horizontal, a distorção situou-se em 40 %. Desta maneira, convencionou-se pela medição das gotas somente na posição vertical. Assim, o seguinte fator de correção relacionando o diâmetro real da esfera e a média dos

diâmetros medidos na posição vertical foi adotado para corrigir as medidas das gotas na coluna:

$$\text{Fator de correção} = \frac{d_{real}}{d_{m\u00e9dio}} = \frac{4,7}{5,9} = 0,80 \quad (5.1)$$

Com o intuito de determinar a quantidade de gotas a serem contadas, no m\u00ednimo, foi realizado, ent\u00e3o, uma an\u00e1lise individual dos dados experimentais de di\u00e2metro por diferentes usu\u00e1rios, de maneira a se verificar o efeito do contador nos resultados obtidos. Analisando-se a Figura 5.1, para gotas do terceiro est\u00e1gio (vaz\u00e3o da fase org\u00e2nica e aquosa de 1,24 L/min, 60 rpm), observa-se uma redu\u00e7\u00e3o no desvio das medidas a partir de 400 gotas, quando realizadas por 3 operadores diferentes. Abaixo de 400 gotas, verifica-se uma diferen\u00e7a consider\u00e1vel das medidas. Assim, estabeleceu-se, para esse trabalho, que 400 gotas seriam contadas para cada ensaio (desvio m\u00e9dio inferior a 2,2 %, de acordo com os dados mostrados no Anexo 1).

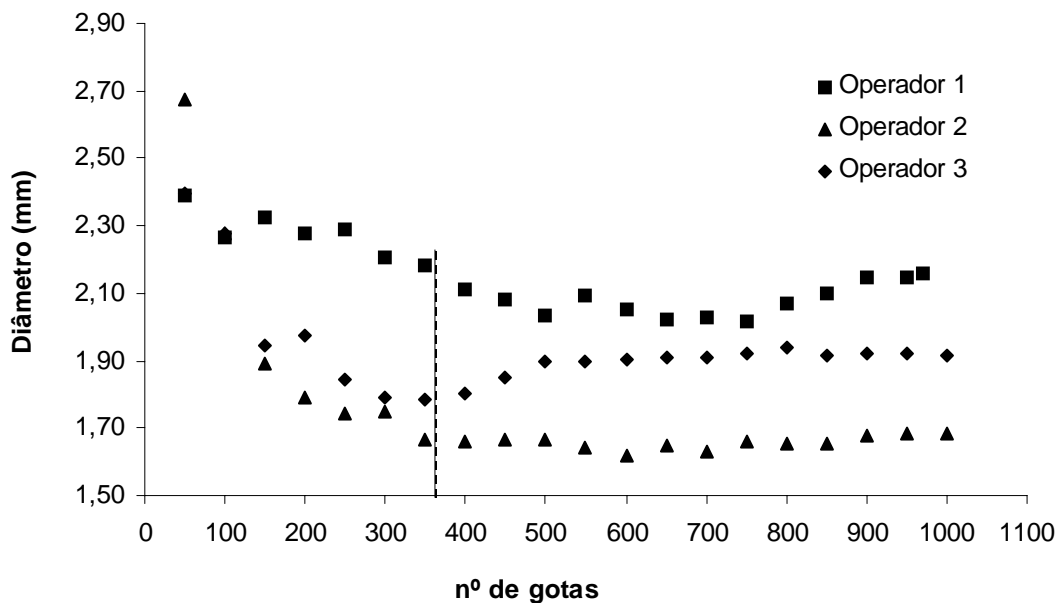


Figura 5.1: Verifica\u00e7\u00e3o do n\u00famero de gotas m\u00ednimo para a an\u00e1lise das fotografias ($Q_c = Q_d = 1.240 \text{ mL/min}$, 60 rpm, est\u00e1gio 3).

5.2 Diâmetro Médio de Sauter

O diâmetro médio de Sauter (d_{32}), definido pela Eq. (3.2) e normalmente empregado na representação da população média de gotas em equipamentos utilizados em operações de separação, como em colunas de extração líquido-líquido, misturadores-decantadores, etc., foi determinado experimentalmente a partir de dados obtidos empregando-se o método fotográfico. Os valores de diâmetros médios encontrados após observância das imagens no software Quantikov (tratamento de imagens) e posterior análise desses resultados mostraram uma dependência de seus tamanhos em função das variáveis operacionais investigadas, a saber: vazão de fase orgânica (dispersa), vazão de fase aquosa (contínua), velocidade de agitação e posição ao longo da coluna (estágio). Verificou-se uma inter-relação significativa dos diâmetros médios medidos com estas variáveis, para a faixa operacional estudada. Os comportamentos experimentais exibidos pelo sistema são analisados, a seguir, para cada variável investigada.

Na Figura 5.6, é mostrado o comportamento experimental típico para o diâmetro médio de Sauter obtido neste estudo em função das variáveis operacionais velocidade de agitação e número de estágio, nas condições investigadas, fixando-se as vazões de aquoso e orgânico no nível superior $Q_c = Q_d = 2.000 \text{ mL/min}$. Verifica-se que o aumento da agitação acarreta em diminuição do tamanho médio da gota. A explicação para este efeito está relacionada diretamente ao aumento na turbulência do meio, que provoca o choque das gotas nos internos da coluna favorecendo as taxas de quebra das mesmas. Efeito idêntico foi observado com relação ao estágio da coluna, ou seja, as gotas diminuem de tamanho à medida que ascendem na coluna, uma vez que, da mesma forma que no aumento da velocidade de agitação, aumenta a frequência de choques entre estas e os internos do equipamento. Ambos os efeitos corroboram o comportamento experimental obtido para o *hold-up*, avaliado anteriormente. Além disso, quando observados individualmente, estes efeitos também conferem com a expectativa experimental, tendo sido observados inclusive para os demais níveis de vazões das fases líquidas estudados nesta pesquisa.

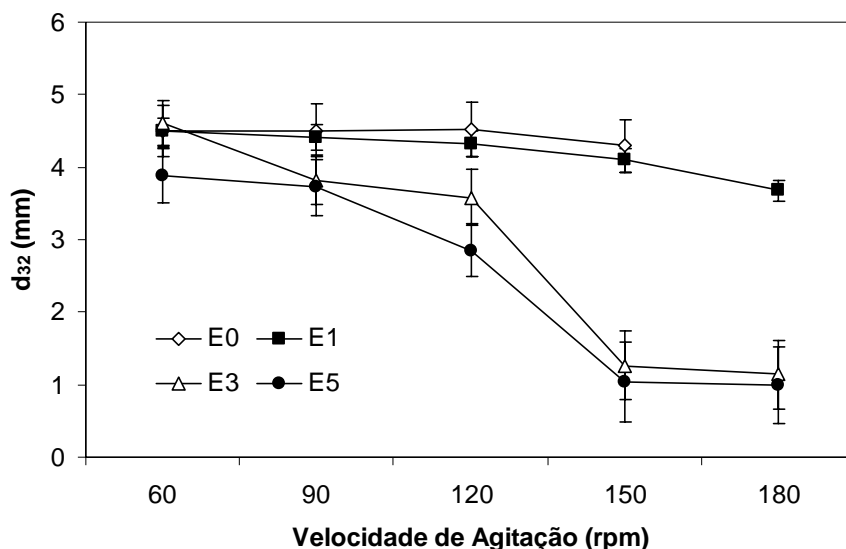


Figura 5.2: Efeito da velocidade de agitação e do número do estágio, fixando-se as vazões de aquoso e orgânico $Q_c = Q_d = 2.000 \text{ mL/min}$.

Verifica-se, ainda com base na Figura 5.2, que a diminuição nos tamanhos das gotas depende de um efeito combinado entre as variáveis velocidade de agitação e número do estágio. Tem-se que o efeito da velocidade é pouco significativo nos estágios 0 e 1, uma vez que não existe impelidor no estágio 0 e, no estágio 1, as gotas ainda não apresentam um diâmetro plenamente estabelecido, já que este é o primeiro estágio agitado da coluna. Assim, nestes dois estágios, o diâmetro da gota é praticamente constante, independentemente da intensidade da agitação, embora haja uma leve tendência de diminuição no tamanho destas com o aumento na agitação. Ao contrário, nos estágios 3 e 5, verifica-se uma diminuição acentuada no seu tamanho médio decorrente da quebra das mesmas, principalmente quando a agitação passa de 120 para 150 rpm. Verificou-se, ainda nos estágios 3 e 5, que as gotas se estabilizam com relação ao tamanho em velocidades acima de 150 rpm, o que pode indicar que as mesmas alcançaram um tamanho tal que caracteriza um estado de equilíbrio hidrodinâmico no equipamento. Efeito praticamente idêntico ao mostrado na Figura 5.2 também foi encontrado ao se trabalhar no nível inferior de vazão da fase dispersa, ou seja, para $Q_d = 1.240 \text{ mL/min}$, mantendo-se a vazão de fase contínua no nível superior $Q_c = 2.000 \text{ mL/min}$ (vide Figura 5.3). A expectativa era que menores gotas fossem obtidas ao se diminuir a vazão da fase dispersa, mantendo-se constantes as demais variáveis. Porém, nas condições estudadas, tem-se que a diminuição na vazão de fase dispersa nos níveis estudados (ou seja, de $Q_d = 2.000 \text{ mL/min}$ para $Q_d = 1.240 \text{ mL/min}$) não resultou em diminuição significativa no tamanho das gotas. Com isso, o efeito pouco

significativo exibido pela vazão da fase dispersa encontra-se incorporado a flutuações nas medidas

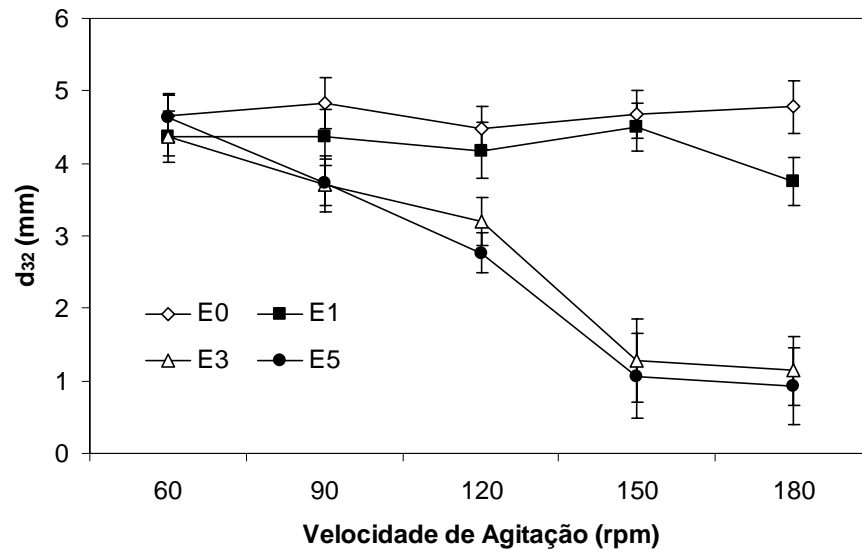


Figura 5.3: Efeito da velocidade de agitação e do número do estágio, fixando-se as vazões de aquoso e orgânico $Q_c = 2.000 \text{ mL/min}$ e $Q_d = 1.240 \text{ mL/min}$.

Na Figura 5.4, mostra-se o comportamento experimental do diâmetro médio de gota em função da agitação e do número de estágio, desta vez no nível inferior de vazão da fase contínua ($Q_c = 1.240 \text{ mL/min}$), mantendo-se a vazão de fase dispersa no nível superior ($Q_d = 2.000 \text{ mL/min}$). O mesmo comportamento foi encontrado, ou seja, gotas menores estão associadas ao aumento de agitação e aos estágios mais superiores da coluna. Entretanto, comparando-se as Figuras 5.6 e 5.8, observa-se que as gotas diminuem seu tamanho mais suavemente com o aumento na velocidade de agitação, principalmente nos estágios 3 e 5, quando se diminui a vazão da fase contínua. Como comentado na análise do *hold-up* total, o aumento na vazão da fase contínua está associada com o aumento na resistência de ascensão das gotas. Com isso, estas permanecem mais tempo no interior de cada estágio, o que eleva a probabilidade de quebra decorrente dos choques nos internos do equipamento, uma vez que os ensaios foram realizados utilizando-se uma seção de coluna. Logo, gotas menores são obtidas e, conseqüentemente maiores valores de *hold-up*, o que caracteriza o comportamento típico verificado nos estágios localizados na base de colunas de extração (Tsouris *et al.*, 1990). Assim, em se tratando de uma seção de coluna e para a faixa de vazões estudadas, tem-se que o aumento na vazão da fase contínua acarreta na diminuição do tamanho da gota, o que levaria à elevação do *hold-up*. Portanto, a ligeira diminuição no *hold-up* total verificado na Figura 5.15 com o aumento na vazão da fase contínua não deve ser compreendida como um efeito mas sim como decorrente

de flutuações nas medidas experimentais. O mesmo comportamento exibido na Figura 5.4 foi obtido quando se operou a coluna com ambas as vazões no nível inferior ($Q_c = Q_d = 1.240$ mL/min).

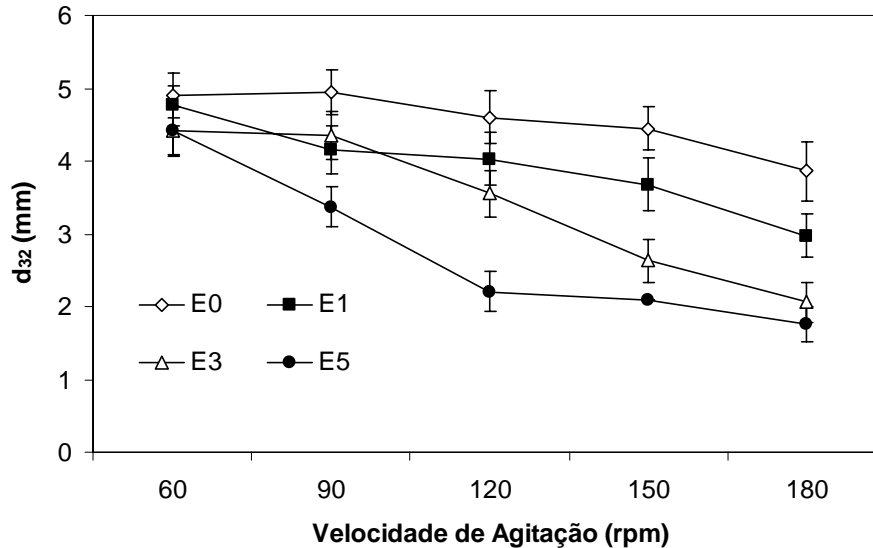


Figura 5.4: Efeito da velocidade de agitação e do número do estágio, fixando-se as vazões de aquoso e orgânico $Q_c = 1.240$ mL/min e $Q_d = 2.000$ mL/min.

Verifica-se com base nas Figuras 5.2 a 5.4, que o valor do diâmetro da gota é praticamente constante a 60 rpm ($Re_R = 7.225$), independentemente das demais condições investigadas (número de estágio e vazões), o que não mais ocorre nas velocidades acima de 90 rpm ($Re_R \geq 10.838$). Segundo Bailes *et al.* (1986), em condições nas quais o $Re_R = 10.000$, o diâmetro médio das gotas é controlado somente pela tensão interfacial do sistema e por forças de flutuabilidade, podendo ser estimado adequadamente pela Eq. (3.2), como confirmado experimentalmente por Chang-Kakoti *et al.* (1985) e Moreira *et al.* (2005) em estudos com colunas de discos rotativos (RDC), e por Logsdail e Slater (1983) para coluna pulsada de pratos perfurados. Assim, nas condições operacionais estudadas e mantendo-se fixa a velocidade de agitação em 60 rpm, o valor médio do diâmetro de gotas na Kühni pode ser obtido utilizando-se a seguinte expressão:

$$d_{32} = (1,534 \pm 0,001) \left(\frac{\gamma}{\Delta\rho g} \right)^{1/2} \quad (5.2)$$

com erro relativo médio de 7,1 % (16 pontos experimentais).

A seguir, é realizada uma comparação entre as correlações recomendadas na literatura para a estimação do diâmetro médio das gotas na coluna Kühni, a saber: Fischer (1973) e Kumar e Hartland (1996).

Os dados experimentais do diâmetro médio de Sauter para as gotas encontradas no presente estudo foram inicialmente comparados àqueles estimados pela correlação proposta por Fischer (1973) para a coluna Kühni conforme a Eq. (3.6). Nesta estimativa, excluiu-se o conjunto de dados obtidos no estágio 0, uma vez que este estágio não possui agitação. Em função das propriedades físicas do sistema líquido-líquido empregado no presente estudo (água - Exxsol D80), utilizou-se somente a correlação válida para $\gamma > 0,012$ N/m (vide Tabela 4.3). A correlação prevê uma redução no diâmetro médio de Sauter com a velocidade de agitação e o número do estágio, conforme obtido experimentalmente. Entretanto, ao se comparar quantitativamente os valores estimados pela correlação proposta por Fischer (1973) com os valores experimentais encontrados, verifica-se um desvio relativo médio da ordem de 66 %, sendo os valores calculados inferiores àqueles obtidos experimentalmente (vide Figura 5.5).

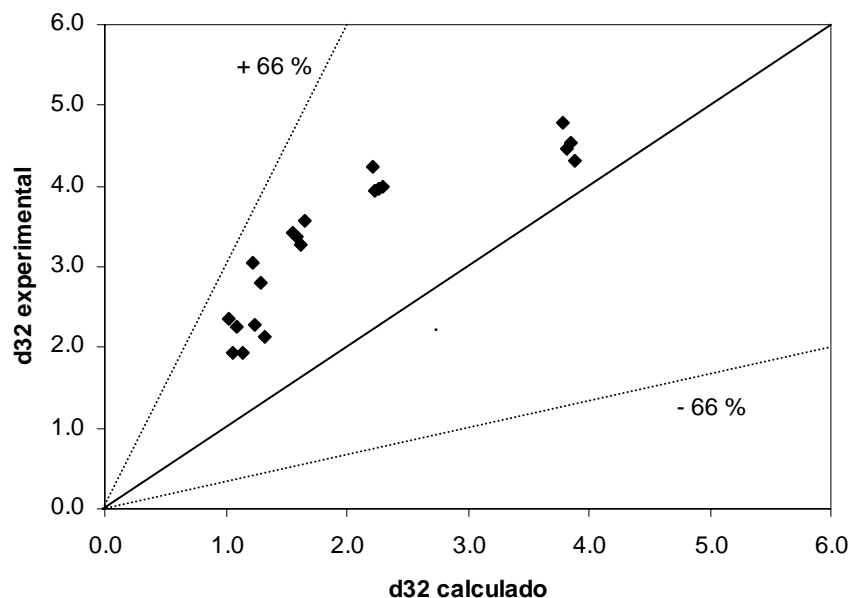


Figura 5.5: Comparação entre o diâmetro médio de Sauter experimental e o predito pela correlação de Fischer (1973).

A expressão empírica proposta por Kumar e Hartland (1996), foi, em seguida, empregada na comparação com os resultados experimentais. A Eq. (3.7) considera as propriedades físicas do

sistema e alguns parâmetros geométricos, entretanto não quantifica o efeito de variação da vazão das fases dispersa e contínua sobre o diâmetro médio de Sauter, parâmetros esses estudados no presente trabalho. Da mesma forma que a correlação de Fischer (1973), a correlação proposta por Kumar e Hartland (1996) também prevê uma redução no diâmetro médio de Sauter com o aumento na velocidade de agitação e do estágio da coluna. Entretanto, quantitativamente, os valores experimentais encontrados apresentaram um desvio relativo da ordem de 75 %, como mostrado na Figura 5.6, sendo os diâmetros estimados inferiores aos experimentais, da mesma forma que obtido pela correlação de Fisher (1973).

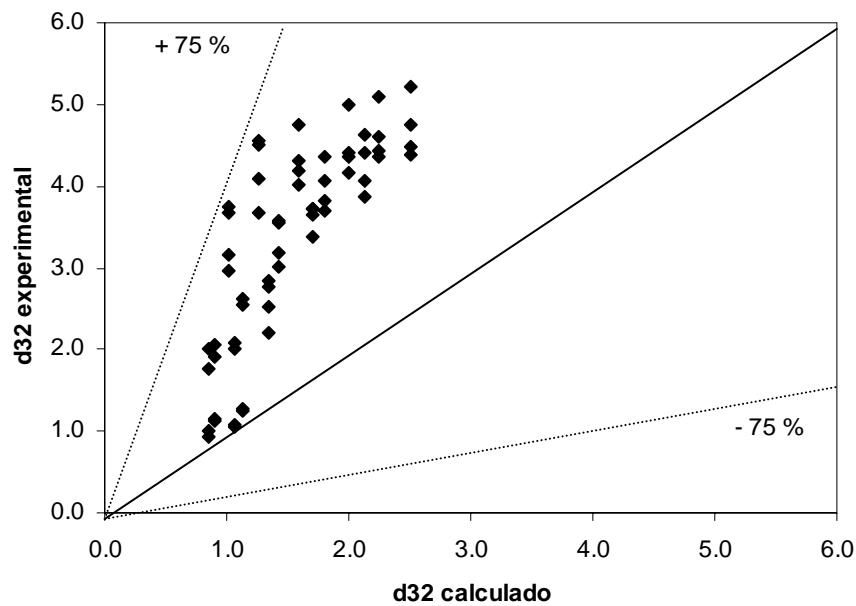


Figura 5.6: Comparação entre o diâmetro médio de Sauter experimental e o predito pela correlação de Kumar e Hartland (1996).

Como nenhuma das correlações recomendadas na literatura reproduziu adequadamente os resultados experimentais encontrados neste estudo, a seguinte expressão empírica foi ajustada aos dados experimentais. A expressão permite verificar o efeito combinado das variáveis estudadas (velocidade de agitação, posição axial na coluna e vazões das fases dispersa e contínua), nas condições operacionais investigadas:

$$d_{32} = a_0 + a_1 Q_d + a_2 Q_c + a_3 E + a_4 N_R + a_5 Q_d Q_c + a_6 Q_d E + a_7 Q_d N_R + a_8 Q_c E + a_9 Q_c N_R + a_{10} E N_R + a_{11} Q_d Q_c E + a_{12} Q_d Q N_R + a_{13} Q_d E N_R + a_{14} Q_c E N_R + a_{15} Q_d Q_c E N_R \quad (5.3)$$

em que a_i ($i = 1, 2, \dots, 15$) são constantes determinadas a partir do ajuste dos dados experimentais e função de propriedades físicas e parâmetros operacionais investigados no estudo. Para o ajuste, utilizaram-se as ferramentas de otimização não-linear do software Statistica (método quasi-Newton, critério de convergência de 10^{-4} , utilizando-se o somatório do quadrado do erro absoluto entre os valores estimados e experimentais como função objetivo a ser minimizada). A seguinte correlação foi encontrada, incluindo intervalo de 95 % de confiança nos parâmetros ajustados, isentos de correlação entre si (p -valor $< 0,05$), com fator de ajuste (R^2) igual a 0,92:

$$d_{32} = (5,43 \pm 0,35) - (1,38 \pm 0,22)N_R + (0,57 \pm 0,15)Q_c N_R - (0,10 \pm 0,02)Q_c E N_R \quad (5.4)$$

em que d_{32} é dado em mm, Q_c em L/min, N_R em rps e E é o número do estágio. Para níveis de significância de 95 %, verifica-se que o aumento da velocidade de agitação e do efeito combinado das variáveis vazão de fase contínua, velocidade de agitação e número do estágio da coluna reduzem o diâmetro médio de Sauter. Não foi encontrado nenhum efeito significativo da vazão da fase dispersa. Uma comparação entre os valores experimentais de diâmetro médio de Sauter e aqueles estimados pela correlação dada pela Eq. (5.4) é apresentada na Figura 5.7, onde se verifica um desvio relativo médio de 8,2 % na predição do diâmetro médio de Sauter.

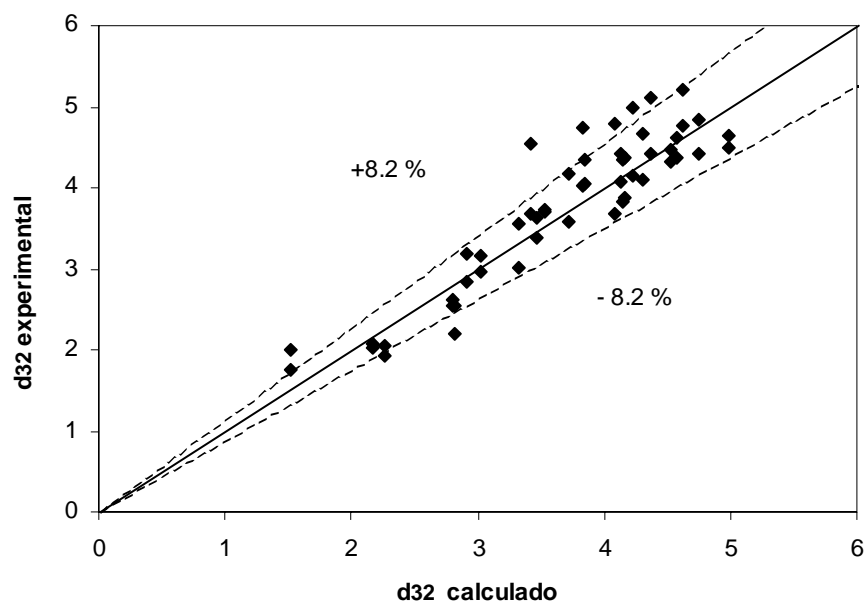


Figura 5.7: Comparação entre o diâmetro médio de Sauter experimental com o predito pela Eq (5.4) para a coluna Kühni, nas condições experimentais estudadas.

Segundo Moreira *et al.* (2005), em uma coluna de discos rotativos (RDC), o diâmetro médio de Sauter das gotas localizadas no estágio 0 curiosamente aumenta com a elevação da velocidade de agitação dos discos. De acordo com a Figura 5.8, este efeito não se verifica na Kühni, provavelmente em função da geometria dos pratos perfurados que impede a formação do vórtex no estágio 0, motivo este tido como responsável pelo aumento no diâmetro das gotas no estágio 0 da RDC. Na Kühni, verifica-se uma diminuição aproximadamente linear no diâmetro Sauter das gotas com o aumento na velocidade de agitação, para a faixa operacional estudada. Esta diminuição, contudo, é pouco significativa estatisticamente, estando os valores experimentais praticamente dentro da faixa de 95 % de confiança. Por esta razão, tem-se que o diâmetro médio das gotas no estágio 0 pode ser dado via média aritmética simples dos dados (13 pontos experimentais), com desvio médio de 8,7 % na predição do diâmetro médio de Sauter:

$$d_{32} = (4,6 \pm 0,4)$$

em que d_{32} é dado em mm. Outra opção para a estimativa do tamanho das gotas no estágio 0 é utilizar a Eq. (5.2), que fornece predição equivalente, ou seja, $d_{32} = 4,5$ mm.

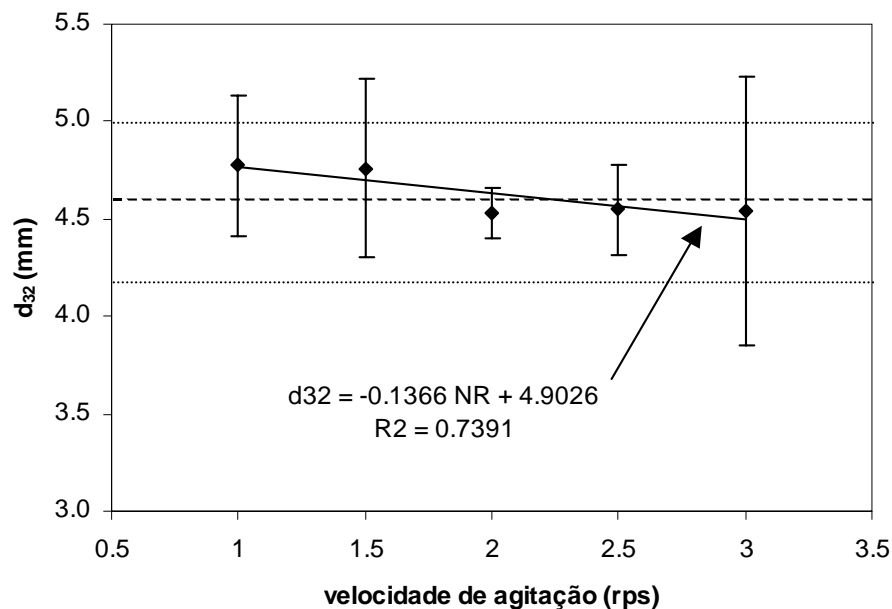


Figura 5.8: Comportamento do diâmetro médio de Sauter medido no estágio zero em função da velocidade de agitação.

5.3 Distribuição de Tamanho de Gotas

Uma vez determinados os diâmetros médios de Sauter das gotas na seção de coluna Kühni, os diâmetros medidos experimentalmente foram avaliados, então, com relação à sua distribuição de tamanhos em função das variáveis operacionais investigadas.

Considerando quatro posições distintas ao longo da coluna (Estágios 0, 1, 3 e 5), a distribuição experimental de diâmetro de gota para cinco velocidades de agitação é mostrada na Figura 5.9. De um modo geral, mantendo-se a mesma vazão de fase dispersa e contínua e a altura no estágio, nota-se que a distribuição de diâmetro tende a tornar-se mais estreita (gotas com tamanhos mais homogêneos) e a deslocar-se para a esquerda (menores gotas) à medida que a velocidade de agitação se eleva. O aumento da velocidade de agitação tende a reduzir o diâmetro das gotas, pois a elevação da energia cisalhante imposta com a rotação do prato aumenta a frequência de quebra das mesmas. No estágio zero, compreendido entre o distribuidor e o primeiro estágio, praticamente não se observa alteração na distribuição de diâmetro das gotas uma vez que este estágio não apresenta agitação, o que corrobora o resultado encontrado anteriormente. Entretanto, o pequeno deslocamento da curva observado para a velocidade de agitação de 180 rpm pode ter sido causado pelo efeito da turbulência ocorrida no estágio imediatamente superior ao estágio zero.

O efeito da altura na coluna sobre a distribuição experimental de diâmetros de gotas pode ser observado na Figura 5.10, sendo esta mostrada em quatro pontos diferentes ao longo da coluna (Estágio 0, 1, 3 e 5), para as faixas de velocidades estudadas (60, 90, 120, 150 e 180 rpm). A Figura 5.10 evidencia claramente a forte variação do tamanho de gotas ao longo da coluna, o que indica a dificuldade de se definir um número representativo de diâmetro médio para toda a coluna. Em velocidades mais baixas até 120 rpm, a variação da distribuição de diâmetro de gotas praticamente não se altera significativamente entre o estágio 1 e 3. Isto ocorre pois, nos estágios inferiores da coluna, ainda não foi estabelecido um comportamento bem definido das gotas. A mesma tendência foi observada para os demais níveis de vazões investigados (vide Anexo 5).

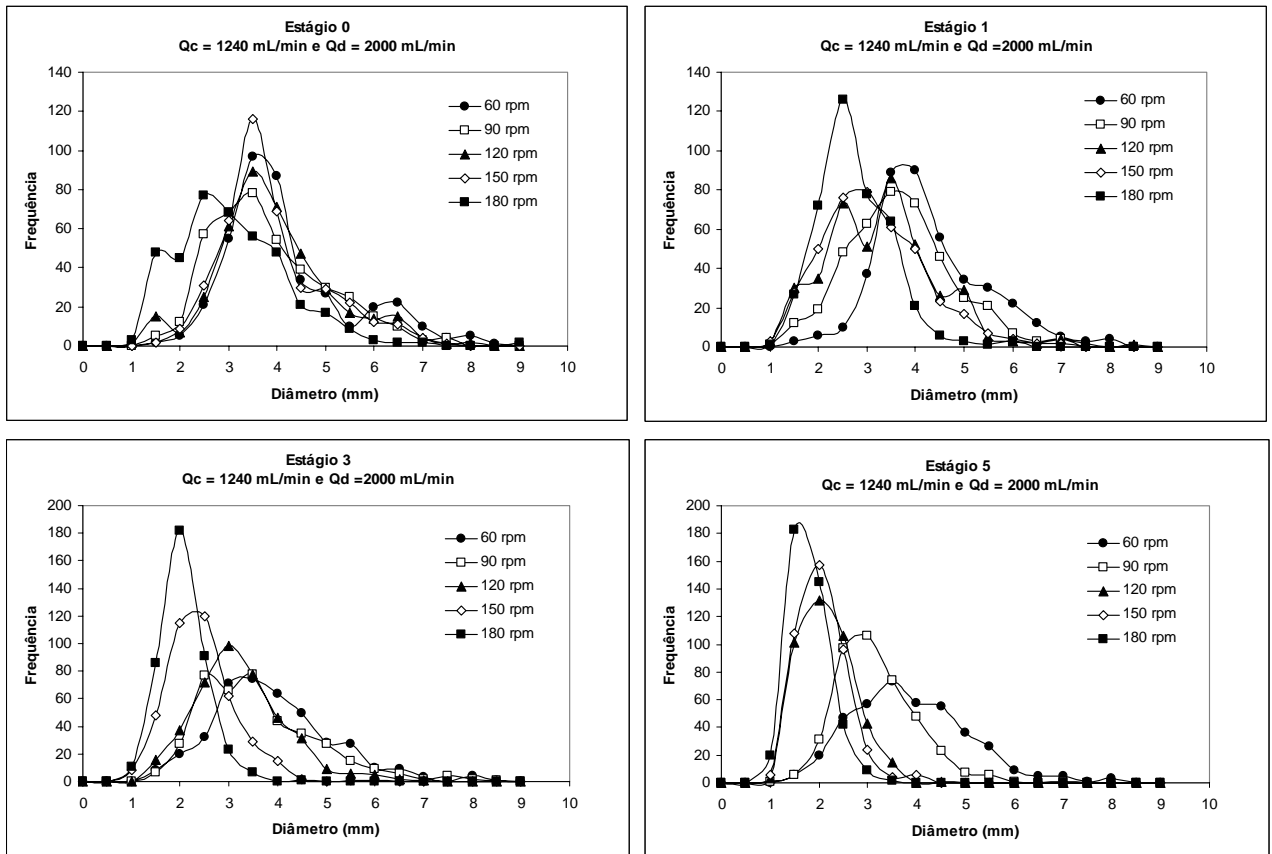


Figura 5.9: Efeito da velocidade de agitação na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni.

Na Figura 5.11, é mostrado o efeito das vazões de fase dispersa e contínua sobre a distribuição de diâmetro de gotas. Os pares de vazões de fase contínua e dispersa empregados neste trabalho são avaliados nos estágios 3 e 5, considerando-se as velocidades de agitação de 90, 120, 150 e 180 rpm. Verifica-se que, em condições elevadas de agitação (150 e 180 rpm), a vazão de fase contínua exerce forte influência sobre o diâmetro das gotas, ao contrário da fase dispersa. Uma elevada vazão de fase contínua provoca uma maior permanência das gotas no interior da coluna, pois impede a ascensão das mesmas. A elevação do tempo de residência das gotas dentro da coluna promove um aumento na frequência de choques o que, conseqüentemente, leva a redução do tamanho das gotas. Da mesma forma que observado nas análises anteriores, não foi observada alteração significativa no diâmetro da gota no estágio 1.

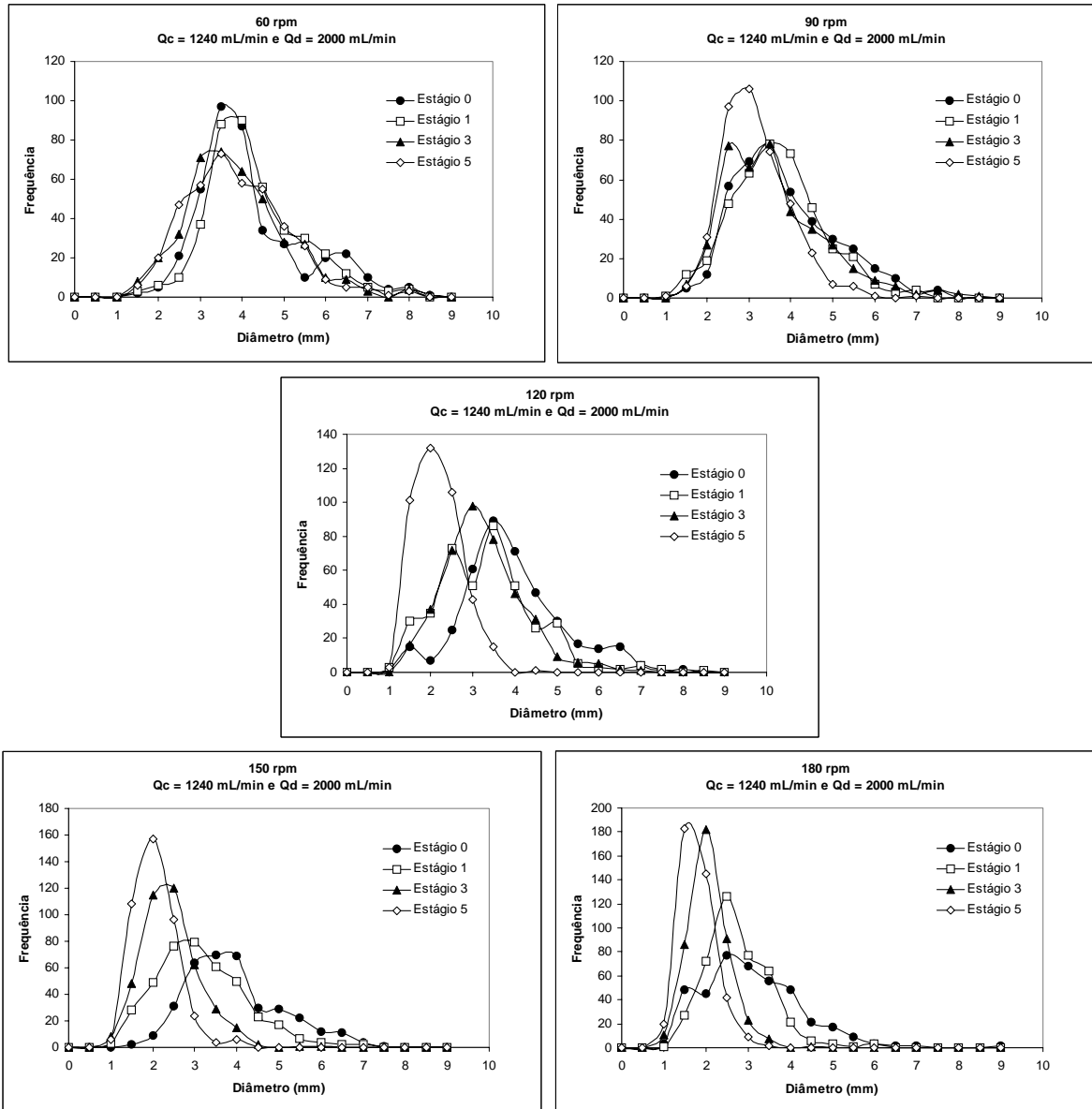


Figura 5.10: Efeito da altura na coluna na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni.

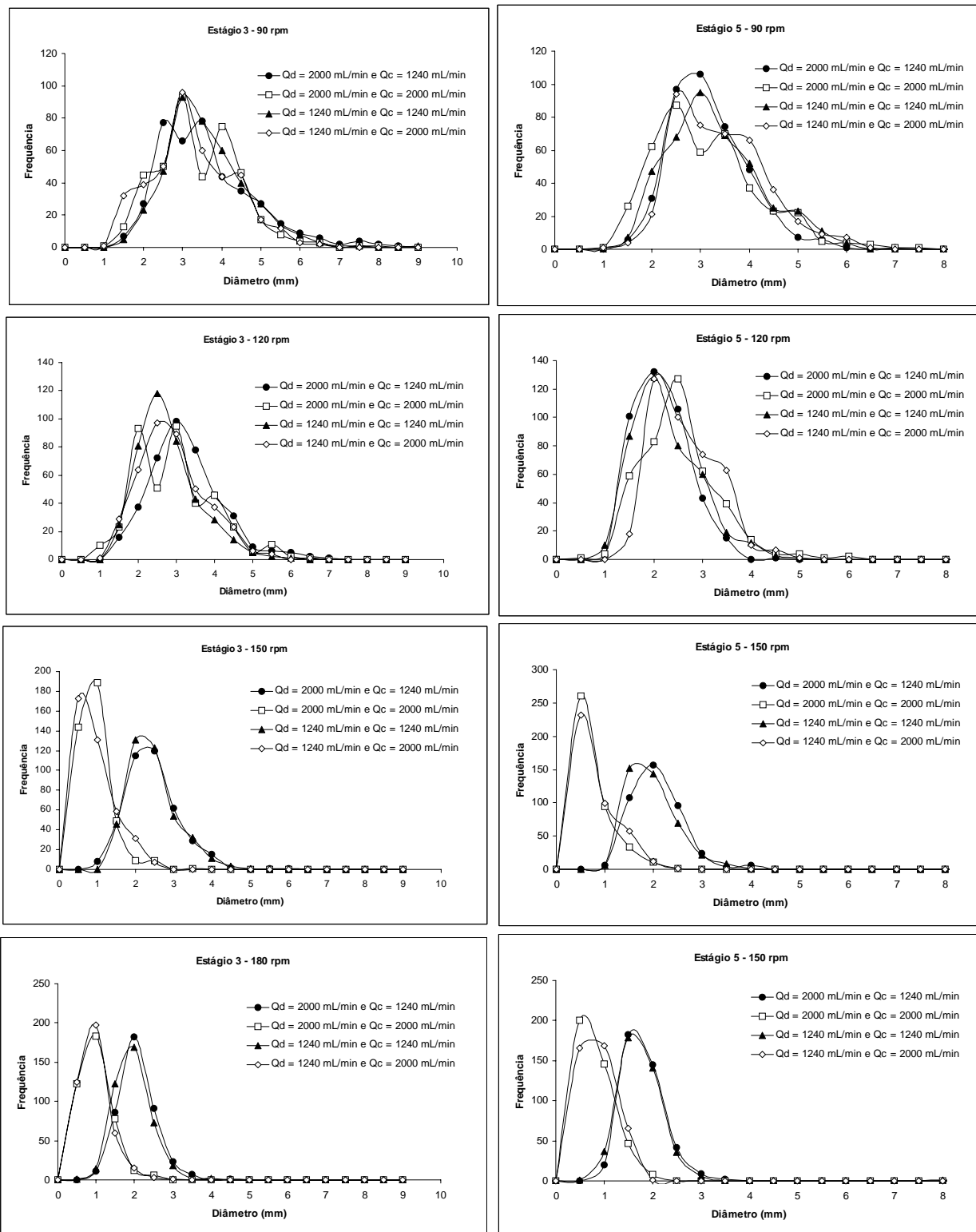


Figura 5.11: Efeito das vazões de fase contínua e dispersa na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni.

Uma vez realizada a análise qualitativa dos efeitos considerados sobre a distribuição de diâmetro de gotas, foi escolhida, a seguir, uma função de distribuição teórica que representasse quantitativamente os efeitos observados experimentalmente. Em trabalho realizado recentemente por Moreira *et al.* (2003), as funções de distribuição normal e log-normal foram avaliadas. Foi verificado pela análise de ajuste (R^2) que a função log-normal se mostrou mais adequada na representação dos dados de distribuição dos diâmetros de gotas para a coluna RDC, pois não apresentou correlação entre os parâmetros de ajuste μ (média) e σ (desvio padrão). Por este motivo, a função escolhida para representar as distribuições de gotas neste trabalho foi a log-normal, mostrada a seguir:

$$p_{lg}(d) = \frac{1}{\sqrt{2\pi d} \sigma} e^{-\left[\frac{\ln d - \mu}{\sqrt{2}\sigma}\right]^2} \quad (5.5)$$

em que d é o diâmetro da gota medido experimentalmente, m a média logarítmica e s o desvio padrão. O valor destes dois últimos parâmetros é obtido mediante ajuste com os dados experimentais. Para a função densidade, a correspondente função frequência cumulativa é dada pela seguinte expressão:

$$F_i = \int_0^{d_{\max}} p(x) dx \quad (5.6)$$

O valor de d_{\max} representa o limite superior das gotas medidas (ou seja, a maior gota), tendo sido este valor usado no ajuste dos dados experimentais à função inversa cumulativa da distribuição log-normal utilizando-se o software Statistica. Um exemplo do ajuste utilizando-se este software é mostrado na Figura 5.12 (Anexo 6). Os parâmetros μ e σ foram determinados pela avaliação da distribuição de diâmetro das gotas encontrados experimentalmente (vide Anexo 3). Uma vez determinados os valores de μ e σ para cada condição operacional investigada neste trabalho, uma correlação empírica foi ajustada aos valores obtidos de maneira que estes pudessem ser determinados a partir das variáveis operacionais estudadas. As seguintes expressões foram escolhidas, pois estas permitem verificar o efeito combinado da velocidade de agitação, da vazão de fase dispersa e de fase contínua e estágios, sobre os parâmetros estudados:

$$\mu = \sigma = a_0 + a_1 Q_d + a_2 Q_c + a_3 E + a_4 N_R + a_5 Q_d Q_c + a_6 Q_d E + a_7 Q_d N_R + a_8 Q_c E + a_9 Q_c N_R + a_{10} E N_R + a_{11} Q_c Q_d E + a_{12} Q_c Q_d N_R + a_{13} Q_d E N_R + a_{14} Q_c E N_R + a_{15} Q_c Q_d N_R E \quad (5.7)$$

em que a_i ($i = 1, 2, \dots, 15$) são constantes determinadas a partir do ajuste dos dados experimentais. A ferramenta de otimização não-linear do software Statistica (método quasi-Newton) foi empregada no ajuste dos dados. A seguinte correlação foi encontrada para os parâmetros de ajuste μ e σ , incluindo intervalo de 95 % de confiança nos parâmetros ajustados, isentos de correlação entre si (p-valor < 0,05), com fator de correlação (R^2) igual a 0,96 e 0,67, respectivamente:

$$\mu = (2,08 \pm 0,45) - (0,34 \pm 0,27) Q_c - (0,08 \pm 0,07) E - (0,52 \pm 0,17) N_R + (0,05 \pm 0,04) Q_c E + (0,21 \pm 0,11) Q_c N_R - (0,03 \pm 0,01) Q_c E N_R \quad (5.8)$$

$$\sigma = (0,62 \pm 0,19) - (0,15 \pm 0,10) Q_d - (0,16 \pm 0,12) Q_c - (0,04 \pm 0,02) N_R + (0,09 \pm 0,06) Q_d Q_c + (0,02 \pm 0,01) Q_c N_R \quad (5.9)$$

em que Q_d e Q_c são dados em L/min e N_R em rps.

De acordo com a Eq. (5.8), o aumento da vazão de fase contínua, altura do estágio, velocidade de agitação e o efeito combinado destas três variáveis levam à redução do parâmetro μ , sendo mais significativo o efeito provocado pela agitação. O aumento da vazão de fase contínua combinada com a altura do estágio ou com a velocidade de agitação provoca uma elevação deste parâmetro. É importante notar que a vazão de fase dispersa não exerce efeito sobre o valor do parâmetro μ , fato este confirmado pela análise do efeito das vazões sobre a distribuição de diâmetro de gota realizado anteriormente. Uma comparação entre os valores experimentais do parâmetro μ e aqueles estimados pela correlação dada pela Eq. (5.8) é apresentada na Figura 5.13, na qual se verifica um desvio relativo médio de 6,4 % na predição deste parâmetro.

Pela Eq. (5.9), o aumento das vazões de ambas as fases e da velocidade de agitação provoca uma redução no valor do desvio médio encontrado. O efeito combinado da vazão de fase contínua com a vazão de fase dispersa ou com a velocidade de agitação promove, contudo, uma elevação do valor do parâmetro σ . Além disso, a altura do estágio não tem efeito algum

sobre este parâmetro. A comparação entre os valores experimentais do parâmetro σ e aqueles estimados pela correlação dada pela Eq. (5.9) é apresentada na Figura 5.10, na qual se verifica um desvio relativo médio de 9,1 % na predição do parâmetro.

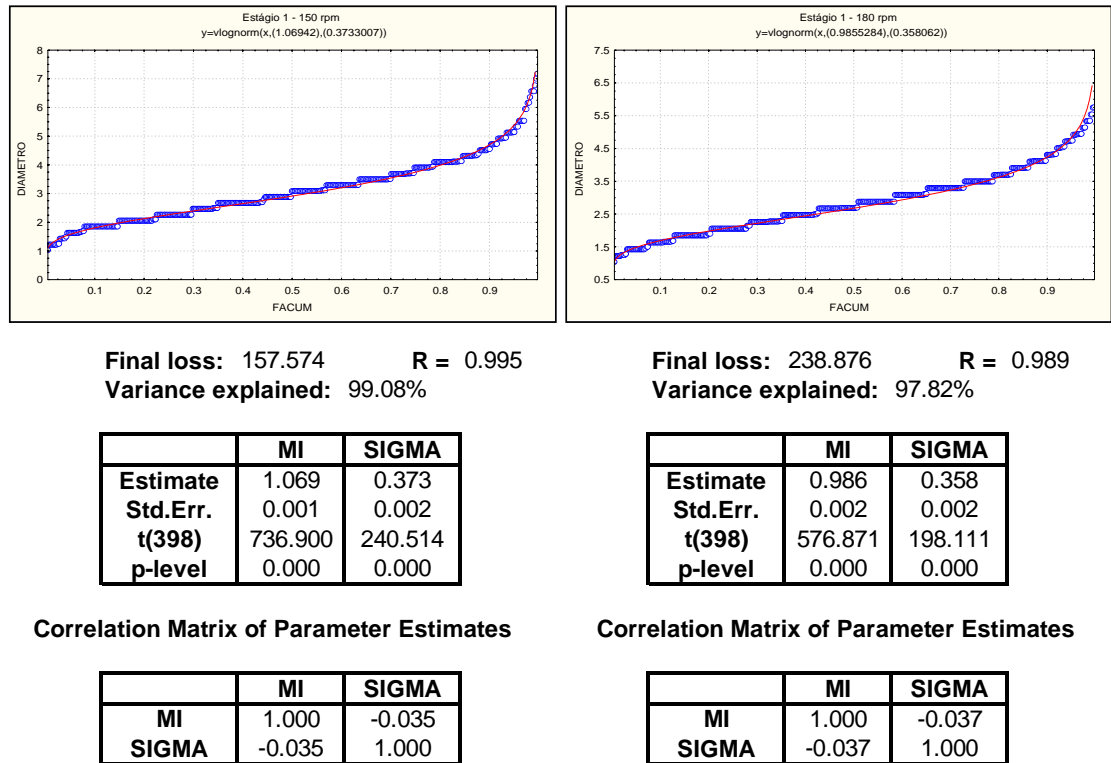


Figura 5.12: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.

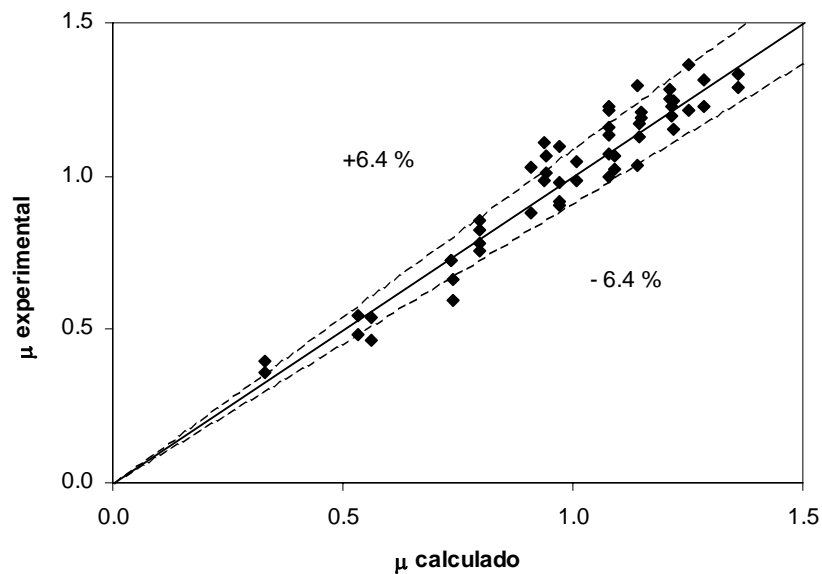


Figura 5.13: Comparação entre o parâmetro μ experimental com o predito pela Eq. (5.8) para a coluna Kühni, nas dimensões e condições experimentais estudadas.

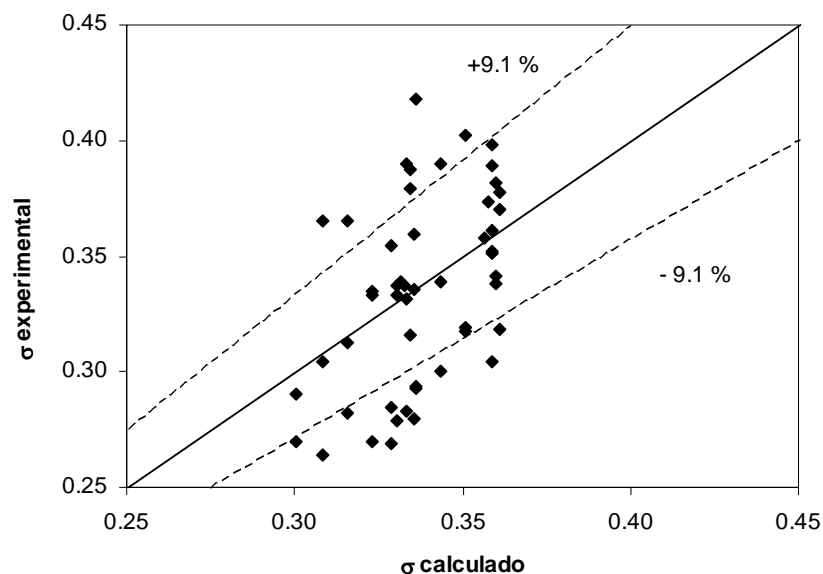


Figura 5.14: Comparação entre o desvio médio experimental com o predito pela Eq. (5.9) para a coluna Kühni, nas dimensões e condições experimentais estudadas.

A importância na obtenção das Eq. (5.8) e (5.9) reside na melhoria da descrição do comportamento da dispersão líquido-líquido na coluna Kühni. A modelagem e simulação da operação em colunas de extração, quando realizadas considerando-se um diâmetro médio de gota como representativo de toda a coluna, levam a aproximações pouco realistas da operação do equipamento, como foi observado pelos resultados experimentais encontrados neste trabalho. Assim, é importante considerar a existência de distribuições de tamanhos de gotas em procedimentos teóricos como nos modelos de *forward-mixing* e de balanço populacional. Os resultados obtidos no presente trabalho devem contribuir no sentido de melhorar a descrição teórica do equipamento e também de aumentar o conhecimento da hidrodinâmica das fases líquidas durante a operação normal do equipamento. As correlações propostas podem ser empregadas. As correlações propostas para a distribuição do diâmetro de gotas são estáticas, ou seja, não consideram a dinâmica de quebra e coalescência, portanto, são adequadas para uso na descrição *forward-mixing* da Kühni. Além disso, o conhecimento do diâmetro médio Sauter e da distribuição de tamanho das gotas em função das variáveis operacionais estudadas, incorporando principalmente suas variações ao longo da coluna, permitem uma melhor descrição da área interfacial de transferência de massa, logo os resultados encontrados nesta dissertação servem de subsídio para outros estudos avançados.

5.4 Análise do *hold-up* total

O *hold-up* total foi medido experimentalmente, em triplicata, para cada conjunto de valores de vazão/velocidade, na faixa operacional mostrada na Tabela 4.2. De uma maneira geral, a análise dos resultados de *hold-up* mostrou uma dependência mais significativa deste com a vazão de fase dispersa e com a velocidade de agitação, conforme apresentada na Figura 5.15.

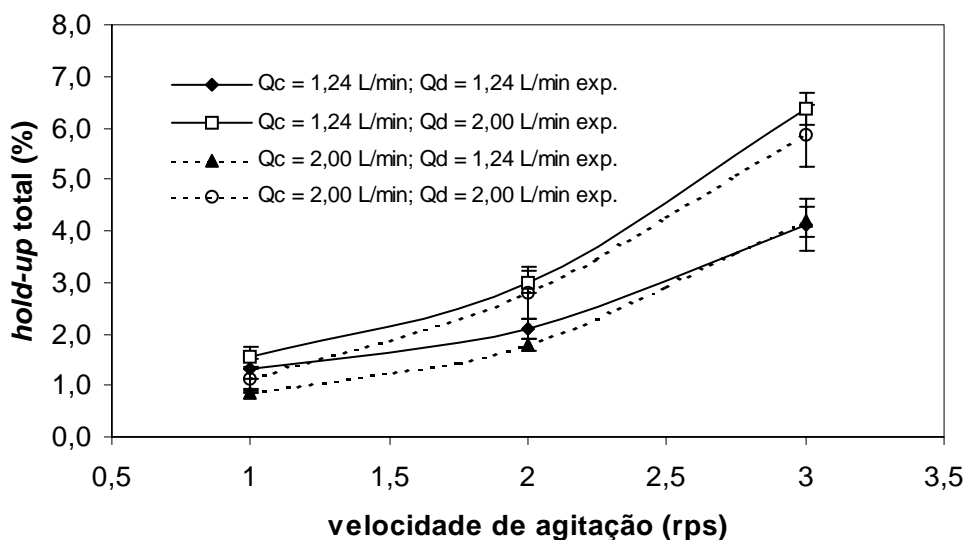


Figura 5.15: Comportamento do *hold-up* total em função da velocidade de agitação e vazões de fases dispersa e contínua.

Observando-se o comportamento qualitativo exibido pelas curvas experimentais, nota-se que o aumento na vazão de fase dispersa resulta em um aumento no *hold-up* total. Isto se deve a maior quantidade de fase orgânica introduzida no interior da coluna. O mesmo efeito de aumento no *hold-up* é verificado, também, com a elevação da velocidade de agitação. Neste caso, o efeito resulta da diminuição no tamanho das gotas devido aos choques sucessivos destas com os acessórios do equipamento, decorrentes do aumento na turbulência do meio. Tal redução no tamanho das gotas acarreta no aumento do tempo de residência das gotas em cada estágio, o que provoca, assim, a elevação do *hold-up* total na coluna. Com relação ao aumento na vazão de fase contínua, observou-se experimentalmente um ligeiro abaixamento nos valores de *hold-up* total (curvas tracejadas localizadas imediatamente abaixo das curvas contínuas). Maiores vazões de fase contínua estão comumente associadas com o aumento na resistência de ascensão das gotas, fazendo com que estas permaneçam mais tempo nos estágios da coluna. Com isso, é possível que dois comportamentos distintos ocorram, a depender do tamanho das

gotas: (1) menores gotas sejam obtidas em função da maior probabilidade de choque entre estas e os internos da coluna, o que pode resultar, com isso, no aumento do *hold-up* total, e, ao contrário, (2) maiores gotas sejam obtidas em função da coalescência ocorrida entre as gotas (quando prevalecem interações do tipo gota-gota), com o intuito de ascenderem contrariamente à resistência imposta pela fase contínua, resultando, neste caso, na diminuição do *hold-up* total. O primeiro comportamento é típico nos estágios inferiores da coluna, quando predominam as taxas de quebra das gotas, enquanto que o segundo comportamento, governado basicamente por taxas de coalescência entre as gotas, ocorre tipicamente no topo da coluna, onde se dá a alimentação da fase contínua. Em se tratando de uma seção de coluna, com apenas 5 estágios, a expectativa é que o primeiro comportamento fosse predominante, o que não se verificou experimentalmente. Contudo, como este efeito mostrou-se pouco significativo estatisticamente, situando-se praticamente dentro do intervalo de confiança de 95 % da medida experimental. Uma análise em conjunto com dados experimentais de medidas do diâmetro das gotas se faz necessária para a alucidação do efeito da vazão de fase contínua no *hold-up* total da coluna.

A análise dos valores médios para o *hold-up* total, conjuntamente com o intervalo de 95 % de confiança mostrado pelas barras verticais da Figura 5.15, revela as variações observadas em função da flutuação dos erros de medida experimental. Tem-se, para as condições operacionais estudadas, que não há alteração estatisticamente significativa no valor do *hold-up* total para velocidades de agitação iguais ou inferiores a 2 rps (120 rpm), independentemente das vazões de ambas as fases líquidas investigadas, apesar da tendência de aumento no *hold-up* total com o aumento na velocidade de agitação. O efeito da vazão de fase contínua também se mostrou estatisticamente insignificante nas condições estudadas. Somente em sistemas mais turbulentos (acima de 2 rps) é que se verifica um efeito combinado significativo, do ponto de vista estatístico, entre as variáveis velocidade de agitação e vazão de fase dispersa sobre o *hold-up* total, nos níveis investigados.

Kumar e Hartland (1995) propuseram uma correlação semi-empírica para o cálculo do *hold-up* total que leva em consideração as propriedades físicas do sistema, as vazões de ambas as fases líquidas e a geometria dos estágios. Esta correlação foi avaliada na tentativa de predizer os dados experimentais encontrados no presente trabalho. A correlação, dada pela Eq. (3.8), é válida para a coluna Kühni com a faixa de diâmetros de coluna $D_c = 72-225$ mm, e condições operacionais $N_R = 0-300$ rpm, $d_{32} = 0,35-8,49$ mm, $Re_R = 0-36000$, sendo, pois, aplicável às condições investigadas no presente estudo. A correlação prevê um aumento do *hold-up* com a

elevação da velocidade de agitação, conforme obtido experimentalmente. Entretanto, ao se comparar quantitativamente os valores estimados pela correlação de Kumar e Hartland (1995) com os valores experimentais, verifica-se um desvio relativamente elevado, da ordem de 67 %, sendo todos os valores calculados pela correlação superiores àqueles obtidos experimentalmente (vide Figura 5.16).

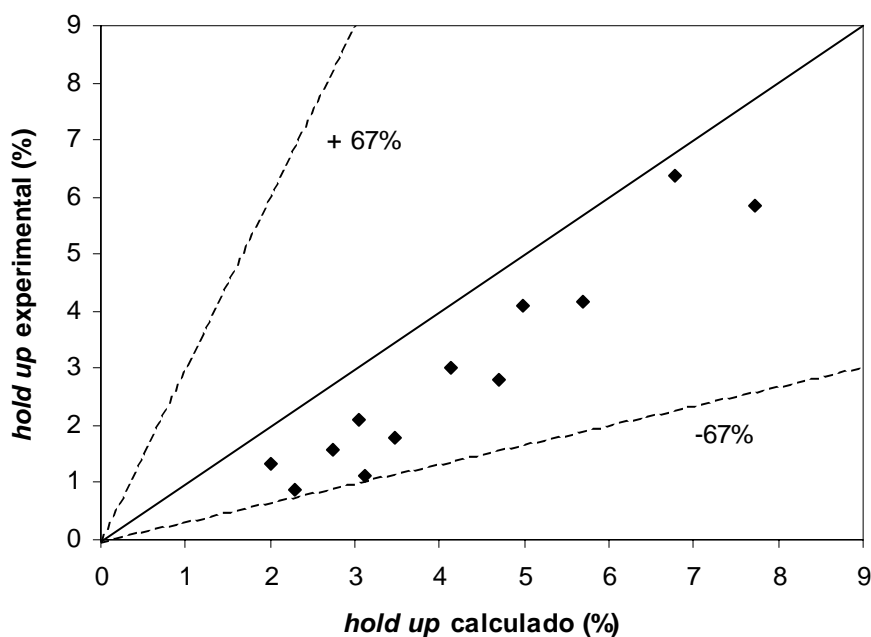


Figura 5.16: Comparação entre o *hold-up* total experimental e o predito pela correlação de Kumar e Hartland (1995).

Com base nessa análise, faz-se necessário o uso de uma correlação mais específica para a faixa operacional estudada, caso se deseje, por exemplo, a simulação da operação da coluna empregada no presente estudo. Salienta-se que a correlação de Kumar e Hartland (1995) é geral, tendo sido obtida via o ajuste de dados experimentais de diversos sistemas químicos e ampla faixa de condições operacionais, considerando, inclusive, a direção da transferência de massa. Neste último caso, em particular, tem-se que a direção da transferência de massa interfere no tamanho, e, por conseguinte, no *hold-up* da coluna. Mesmo assim, esperava-se um desvio menor, de no máximo 21,3 %, conforme a estimativa de erro apresentada pelos autores da correlação. Como a correlação de Kumar e Hartland (1995) estimou valores relativamente elevados e, tendo em vista que os ensaios foram feitos em triplicata, com flutuação experimental absoluta de no máximo 0,5 %, uma nova correlação empírica foi proposta neste estudo e ajustada aos dados experimentais então obtidos. A seguinte expressão foi empregada

por permitir evidenciar a existência de efeitos individual e combinado entre a velocidade de agitação e as vazões das fases dispersa e contínua, nas condições operacionais estudadas:

$$\phi_T = a_0 + a_1 Q_d + a_2 Q_c + a_3 N_R + a_4 Q_d Q_c + a_5 Q_d N_R + a_6 Q_c N_R + a_7 Q_d Q_c N_R \quad (5.10)$$

em que a_i ($i = 1, 2, \dots, 7$) são constantes determinadas a partir do ajuste dos dados experimentais e função de propriedades físicas e parâmetros operacionais, nas faixas investigadas no estudo. Para o ajuste, utilizaram-se as ferramentas de otimização não-linear do software Statistica (método quasi-Newton, critério de convergência de 10^{-4} , utilizando-se o somatório do quadrado do erro absoluto entre os valores estimados e experimentais como função objetivo a ser minimizada). A seguinte correlação foi encontrada, incluindo intervalo de 95 % de confiança nos parâmetros ajustados, isentos de correlação entre si (p-valor < 0,05), com fator de correlação (R^2) igual a 0,95:

$$\phi_T = Q_d [(0,0118 \pm 0,0016) N_R - (0,0035 \pm 0,0021) Q_c] \quad (5.11)$$

em que Q_d e Q_c são dados em L/min e N_R em rps. Para nível de significância de 95 %, há evidência de que a interação da vazão de fase dispersa com a velocidade de agitação, e daquela com a vazão de fase contínua, afetam significativamente o *hold-up* total. Entretanto, os valores encontrados indicam um efeito predominante da vazão da fase dispersa e da velocidade de agitação, conjuntamente, como já havia sido observado na análise dos resultados experimentais mostrados na Figura 5.15. De acordo com a Eq. (5.11), um aumento nos valores destas variáveis acarreta em aumento do *hold-up* total. Ao contrário, o aumento da vazão da fase contínua provoca a diminuição no *hold-up* total. Este efeito, porém, depende da vazão da fase dispersa, sendo mais significativo, portanto, em maiores vazões de fase dispersa, o que também confere com o comportamento experimental mostrado na Figura 5.15. Além disso, a quantificação deste efeito encontra-se mais propensa ao erro uma vez que o desvio padrão da estimativa é bastante elevado, da ordem de 60 % (0,0021/0,0035). A comparação entre os valores experimentais de *hold-up* total e aqueles estimados pela correlação dada pela Eq. (5.11) é mostrada na Figura 5.4, na qual se verifica um desvio relativo médio de 15 % na predição do *hold-up* total, sendo este, portanto, inferior ao obtido pela correlação de Kumar e Hartland (1995).

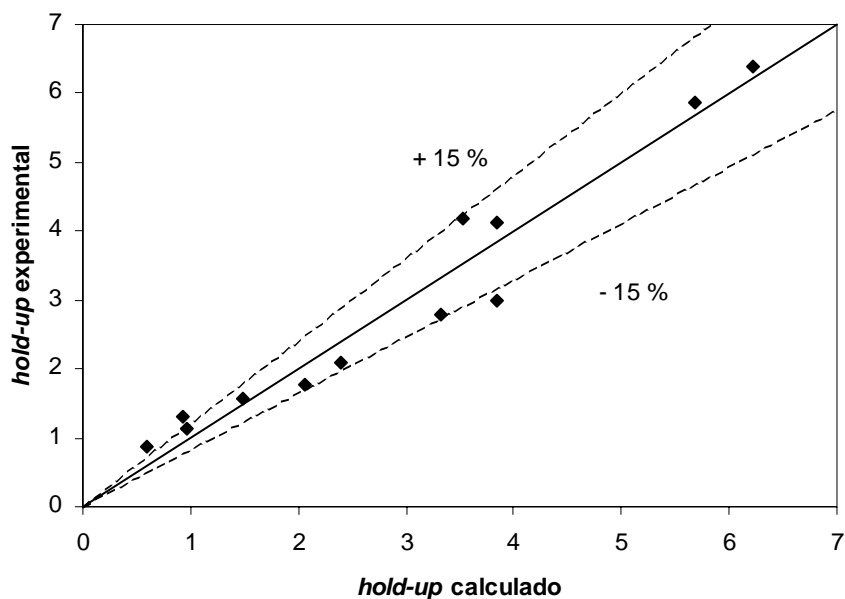


Figura 5.17: Comparação entre o *hold-up* total experimental e o predito pela Eq. (5.3).

A correlação representada pela Eq. (5.11) é válida somente para a coluna Kühni, nas dimensões e condições operacionais estudadas.

5.5 Análise do *hold-up* local

No estudo do *hold-up* local, a vazão de fase contínua foi mantida constante (2,00 L/min), uma vez que se verificou pouca influência deste parâmetro na análise dos dados experimentais de *hold-up* total. O *hold-up* local foi, então, medido nos estágios 2 e 4, com relação às variáveis operacionais velocidade de agitação e vazão de fase dispersa. Não foram realizadas réplicas em função de dificuldades operacionais descritas a seguir. As condições operacionais investigadas são mostradas na Tabela 5.1.

Tabela 5.1: Condições operacionais investigadas no estudo do *hold-up* local.

<i>Estágio</i>	Q_d (L/min)	N_R (rps)
2	1,24	2 e 3
4	1,24	3
2	2,00	1, 2 e 3
4	2,00	1, 2 e 3

É importante salientar que os dados experimentais de *hold-up* local obtidos neste trabalho devem ser avaliados somente do ponto de vista qualitativo, em função de dificuldades operacionais verificadas durante a realização dos ensaios, ainda não totalmente solucionadas. Inicialmente, tentou-se coletar as amostras utilizando-se seringas veterinárias. A metodologia mostrou-se totalmente inviável devido ao comprimento insuficiente das agulhas com relação aos bocais de recolhimento de amostras na coluna e, principalmente, pelo diâmetro pequeno das agulhas disponíveis no mercado. Dado o insucesso no uso desta metodologia, procedeu-se pelo recolhimento direto das amostras em provetas graduadas via abertura instantânea dos bocais de amostragem, nos estágios selecionados, como realizado por Kumar (1985). Tal procedimento, invasivo, se mostrou pouco reproduzível pois depende da agilidade do operador. Além disso, salienta-se que a unidade piloto não foi projetada para realizar a coleta de amostras desta maneira, assim, os dados apresentados a seguir possuem caráter puramente qualitativo.

Os resultados experimentais obtidos no presente estudo são mostrados na Figura 5.18. Os valores experimentais para o *hold-up* local apresentam-se quantitativamente distintos daqueles mostrados na Figura 5.15 para o caso do *hold-up* total, principalmente no nível de agitação mais elevado (180 rpm). As tendências de comportamento, no entanto, são similares.

De acordo com os dados mostrados na Figura 5.18, tem-se que o *hold-up* local, da mesma forma que o *hold-up* total, aumenta com o aumento da velocidade de agitação. Verifica-se, contudo, um aumento significativamente mais expressivo em níveis de agitação mais elevados, ou seja, quando a velocidade de agitação excede 2 rps (120 rpm). O aumento da agitação provoca uma redução no tamanho médio das gotas em cada estágio, que resulta no aumento no tempo de residência as gotas e, conseqüentemente, do *hold-up* local. Com relação ao efeito dos estágios, tem-se que este somente pode ser analisado para a vazão de fase dispersa de 2,00 L/min, dada a insuficiência de dados experimentais no nível inferior desta variável. O comportamento observado corrobora a expectativa, ou seja, em condição de agitação constante e alterando-se o ponto de coleta das amostras (estágios 2 e 4), percebeu-se um perfil crescente de *hold-up* ao longo da coluna (de baixo para cima). Isto porque as gotas, ao ascenderem na coluna, em função da agitação e dos choques sucessivos nas paredes e nos pratos (Chang-Kakoti *et al.*, 1985), sofrem uma redução no seu tamanho. Por fim, com relação ao efeito da vazão de fase dispersa, tem-se que um aumento nesta variável eleva o valor de *hold-up* local, pelo mesmo motivo exposto na análise feita para o *hold-up* total. O efeito, contudo, só pôde ser

percebido nos ensaios realizados a 3 rps (180 rpm), também em função da insuficiência de dados experimentais necessários para uma análise mais conclusiva.

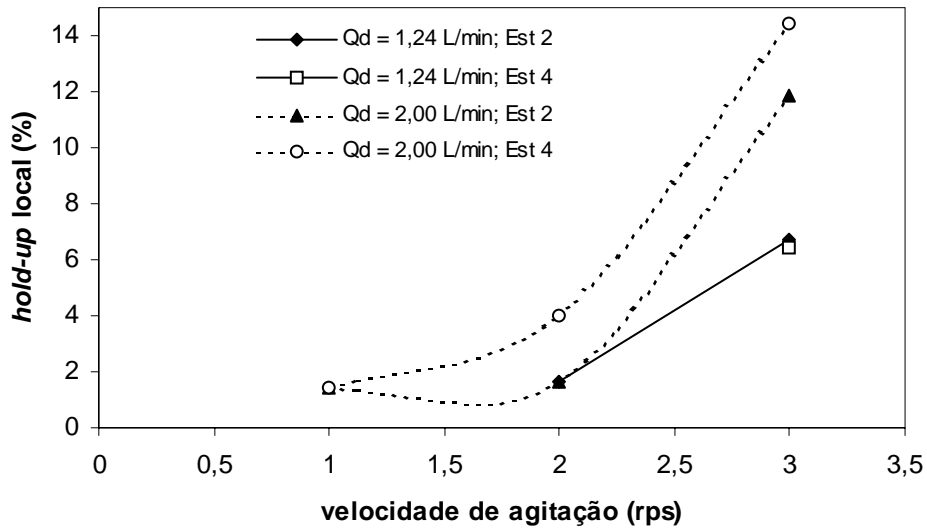


Figura 5.18: Comportamento do *hold-up* local em função da velocidade de agitação.

De qualquer maneira, apesar do número limitado de resultados experimentais para uma análise conclusiva, verificou-se a obtenção de comportamentos experimentais qualitativamente condizentes com a expectativa para as três variáveis estudadas. Neste sentido, uma melhor adequação da metodologia é sugerida para trabalhos futuros, com a realização de ensaios em réplicas e recolhimento das amostras em um único estágio de cada vez, o que poderá permitir a avaliação quantitativa do efeito do *hold-up* local na coluna Kühni.

6 CONCLUSÕES

O comportamento da hidrodinâmica em uma seção de coluna Kühni (150 mm de diâmetro e 5 estágios) foi determinado em função da capacidade operacional da coluna, nas condições mostradas na Tabela 4.2. As seguintes conclusões podem ser traçadas com base nos resultados obtidos no presente trabalho de pesquisa, válidos para o intervalo de condições operacionais investigado:

- Para o *hold-up* total, observou-se uma dependência com a vazão de fase dispersa e velocidade de agitação, o que corrobora com a informação encontrada na literatura. O ligeiro abaixamento do *hold-up* total observado com o aumento de vazão de fase contínua foi decorrente de flutuações nas medidas experimentais. Nas condições operacionais investigadas, não há alteração estatisticamente significativa no valor de *hold-up* para velocidades de agitação iguais ou inferiores a 2 rps (120 rpm), independentemente das vazões de ambas as fases. A correlação empírica proposta por Kumar e Hartland (1995) prevê um aumento no *hold-up* com a elevação da agitação, fato este comprovado experimentalmente. Entretanto, verificou-se um desvio relativamente elevado para os dados experimentais obtidos na seção da coluna, logo uma correlação empírica que melhor descrevesse o sistema em questão foi proposta neste estudo e ajustada aos dados experimentais. O *hold-up* local apresentou a mesma tendência no comportamento observado para o *hold-up* total, principalmente, em níveis de agitação mais elevados.
- Com relação ao diâmetro médio de Sauter, verificou-se a existência de efeitos combinados da velocidade de agitação e número do estágio, para a faixa de condições experimentais investigadas. De um modo geral, o aumento na velocidade de agitação e na posição axial da coluna durante a ascensão das gotas promovem uma redução no tamanho médio das gotas devido ao aumento da frequência de choques entre estas e os internos do equipamento. O efeito da velocidade de agitação é pouco significativo nos estágios inferiores da coluna. Os valores calculados pelas correlações empíricas propostas por Fischer (1973) e Kumar e Hartland (1996) para estimar o diâmetro médio de Sauter foram comparadas aos dados experimentais. Ambas as correlações prevêem os efeitos citados anteriormente, porém, quantitativamente, os valores encontrados

apresentaram um desvio médio significativamente elevado. Por este motivo, uma nova correlação empírica que melhor descrevesse o sistema foi proposta neste estudo e ajustada aos dados experimentais. Nesta correlação, não foi encontrado efeito estatisticamente significativo da vazão de fase dispersa.

- A função log-normal empregada para se obter o ajuste dos dados experimentais mostrou-se adequada na representação da distribuição de diâmetro de gotas. Verificou-se neste estudo que, à medida que a velocidade de agitação aumenta, a distribuição de diâmetro de gota torna-se mais estreita e desloca-se para a esquerda. Não foi observada alteração considerável na distribuição das gotas no estágio 0, nas condições investigadas. Em baixas velocidades de agitação (< 120 rpm), a distribuição de tamanho de gotas não foi alterada de modo significativo nos estágios 1 e 3. Por fim, verificou-se em condições de elevadas velocidades de agitação, que a vazão de fase contínua exerce forte influência sobre o tamanho da gota, ao contrário da fase dispersa. Correlações para os parâmetros de ajuste da função log-normal (μ e σ) foram propostas neste trabalho para quantificar a influência das variáveis operacionais estudadas. No caso do parâmetro μ , o efeito provocado pela agitação mostrou-se bastante significativo, enquanto que a vazão de fase dispersa não exerceu influência sobre este parâmetro. Das variáveis operacionais estudadas, apenas a altura do estágio não apresentou efeito significativo sobre o parâmetro σ .

7 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

O presente trabalho teve como objetivo principal estudar o comportamento hidrodinâmico em uma seção de coluna de extração líquido-líquido do tipo Kühni, em escala piloto. Em outras palavras, visou compreender melhor o efeito das variáveis operacionais estudadas sobre o *hold-up* (local e total), o diâmetro médio das gotas e a distribuição de diâmetro das gotas frente a variações em condições operacionais reais de vazão e agitação. Desta forma, sugerem-se futuros trabalhos para a continuidade dos estudos:

- definir uma metodologia que melhor quantifique o efeito do *hold-up* local na coluna Kühni, com a realização de ensaios em réplicas, o que permitirá uma avaliação quantitativa do efeito sobre o mesmo.
- avaliar o comportamento hidrodinâmico na coluna Kühni para outros sistemas líquidos (fase orgânica e aquosa) e compará-los entre si.
- aplicar os conhecimentos obtidos no presente trabalho em experimentos com transferência de massa, permitindo, assim, determinar o ponto ótimo de operação da coluna para diversos sistemas líquidos. Neste caso, é relevante quantificar, também, o efeito da transferência de massa na hidrodinâmica da coluna.
- avaliar o modelo *forward-mixing* para simular da operação transiente de uma coluna Kühni, em circuito fechado, aplicando o sistema padrão adotado pela Federação Européia de Engenharia Química, o sistema ZnSO₄/D2EHPA. Devido à quantidade de informação disponível sobre este sistema é possível comparar os dados experimentais oriundos de fontes diversas sobre o equipamento e faixas operacionais variadas. O modelo *forward-mixing* considera a existência de distribuições de tamanhos de gotas, o que permite o uso das correlações propostas neste trabalho. A correlação para a distribuição do diâmetro de gotas é estática, ou seja, não considera a dinâmica de quebra e coalescência, portanto adequada para uso na descrição *forward-mixing* da Kühni.

8 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- Angeli, P., Hewitt, G. F., 2000. *Drop Size Distributions in Horizontal Oil-Water Dispersed Flows*. Chem. Eng. Sci., v.55, p.3133-3143.
- Aravamudan, K., Baird, M.H.I., 1999. *Effects of Mass Transfer on the Hydrodynamic Behavior of a Karr Reciprocating Plate Column*. Ind. Eng. Chem. Res., v. 38, p. 1596-1604.
- Bailes, P.J., Gledhill, J., Godfrey, J.C., Slater, M.J., 1986. *Hydrodynamic Behavior of Packed, Rotating Disc and Kühni Liquid/Liquid Extraction Columns*. Chem. Eng. Res. Des, v. 64, p. 43-55.
- Bühlmann, U., 1993. *Aromatics Extraction with the Kühni Column, an Application Requiring an Extreme Design Flexibility*. In: Proceedings of International Solvent Extraction Conference (ISEC'93), v. 2, p. 17-24, London, UK.
- Chang-Kakoti, D.K.; Fei, W.-Y.; Godfrey, J.C.; Slater, M.J., 1985. *Drop Sizes and Distributions in RDC's Used for Liquid-Liquid Extraction*. J. Sep. Process. Technol., v. 6, p. 40-48.
- Chartres, R.H., Korshinsky, W.J., 1975. *Modelling of Liquid-liquid Extraction Columns: Predicting the Influence of Drop Size Distributions*. Trans. IChemE, v. 53, p. 247-254.
- Coulson, J.M., Richardson, J.F., 1978. *Chemical Engineering*. 3 ed., Chapter 13, Pergamon Press, USA.
- Cusack, R., Fremeaux, P., 1991. *A Fresh Look at Liquid-Liquid Extraction. Part 2: Inside the extractor*. Chem. Eng., p. 132-138.
- Dongaonkar, K.R., Pratt, H.R.C., Stevens, G., 1991. *Mass Transfer and Axial Dispersion in a Kühni Extraction Column*. AIChE J., v. 37, p. 694-704.
- Fisher, A., 1973. *Hydrodynamik und Stoffaustausch in einer Flüssig-Flüssig-Rührextraktionskolonne*, PhD. Thesis, n. 5016, ETH Zurich, Switzerland.
- Gal-Or, B., Hoelscher, H.E., 1966. *A Mathematical Treatment of the Effect of Particle Size Distribution on Mass Transfer in Dispersions*. AIChE. Journal, v. 12, p. 499-508.
- Garnica, A.I.C., Duarte, M.M.L., Souza, C.P., 2002. *Axial Mixing in a Reciprocating Plate Column*. ISEC 2002, p. 1352-1356 Johannesburg.
- Gayler, R., Pratt, H.R.C., 1951. *Hold-up and Pressure Drop in Packed columns*. Trans. Inst. Chem. Eng, v. 29, p. 110-125.
- Godfrey, J.C., Slater, M.J., 1991. *Slip Velocity Relationships for Liquid-Liquid Extraction Columns*. Trans. IChemE, v. 69, part A, p. 130-141.

- Godfrey, J.C., Houlton, D., Ramlochan, K.R.M., Slater, M.J., 2001. *Single Phase Axial Mixing in Rotating Disc Contactors*. Trans. IChemE, v. 79, part A, p. 156-162.
- Gomes, L.N., Guimarães, M.L., Lopes, J.C., Madureira, C.N., Stichlmair, J., Cruz-Pinto, J.J., 2004. *Reproducibility of the Hydrodynamic Performance and Measurements in a Liquid-Liquid Kühni Extraction Column – Relevance to Theoretical Model Evaluation*. *Industrial Engineering Chemical Research*, v. 43, n. 4, p. 1061-1070.
- Gourdon, C., Casamatta, G., Muratet, G., 1994. *Population Balance Based Modelling of Solvent Extraction Columns*. In: Godfrey, J.C., Slater, M.J. (eds), *Liquid-Liquid Extraction Equipment*, 1 ed., chapter 7, John Wiley & Sons, UK, p. 137-226.
- Grob-Hardt, E., Henschke, M., Klinger, S., Pfennig, A., 2002. *Design of Pulsed Extraction Columns Based on Laboratory-Scale Experiments*. ISEC 2002, p.1358-1363. Johannesburg.
- Haunold, C., Cabassud, M., Gourdon, C., Casamatta, G., 1990. *Drop Behaviour in a Kühni Column for a Low Interfacial Tension System*. *Can. J. Chem. Eng.*, v. 68, p. 407-414.
- Hinze, O., 1955. *Fundamentals of the Hydrodynamic Mechanism of Splitting in Dispersion Process*. *AIChE J.*, v.1, p. 289-295.
- Kentish, S., 1996. *Forward Mixing in a Countercurrent Solvent Extraction Contactor*. PhD Thesis, University of Melbourne, Australia, p. 208.
- Kentish, S.E., Stevens, G. W., Pratt, H.R.C., 1997. *Measurement of Drop Rise Velocities within a Kühni Extraction Column*. *Ind. Eng. Chem. Res.*, v. 36, p. 4928-4933.
- Kirou, V.I., Tavlarides, L.L., Bonnet, J.C., Tsouris, C., 1988. *Flooding, Holdup and Drop Size Measurements in a Multistage Column*. *AIChE J.*, v. 34, p. 283-292.
- Kumar, A., 1985. *Hydrodynamics and Mass Transfer in Kühni Extractor*. PhD. Thesis, n. 7806, Swiss Federal Institute of Technology, Zurich, Switzerland, p. 216.
- Kumar, A., Hartland, S., 1994. *Empirical Prediction of Operating Variables*. In.: Godfrey, J.C.; Slater, M.J. (Eds.), *Liquid-liquid extraction equipment*. John Wiley & Sons, London, UK, p. 625-736.
- Kumar, A., Hartland, S., 1995. *A Unified Correlation for the Prediction of Dispersed-Phase Hold-up in Liquid-Liquid Extraction Columns*. *Ind. Eng. Chem. Res.*, v. 34, p. 3925-3940.
- Kumar, A., Hartland, S., 1996. *Unified Correlations for the Prediction of Drop Size in Liquid-Liquid Extraction Columns*. *Ind. Eng. Chem. Res.*, v. 35, p. 2682-2695.
- Kumar, A., Hartland, S., 1999. *Correlations for Prediction of Mass Transfer Coefficients in Single Drop Systems and Liquid-Liquid Extraction Columns*. *Trans IChemE*, v. 77, parte A, p. 372-384.

- Kumar, A., Steiner, L., Hartland, S., 1986. *Capacity and Hydrodynamics of an Agitated Extraction Column*. Ind. Eng. Chem. Res., v. 25, p. 728-733.
- Logsdail, D.H., Slater, M.J., 1983. *Pulsed Perforated-Plate Columns*. In: Lo, T., Baird, M., Hanson, C. (eds.), Handbook of Solvent Extraction, 1 ed., Wiley & Sons, U.S.A., p. 355-372.
- Mansur, M.B., 2001. *Operação Não-Estacionária da Extração de Sistemas Reativos em Coluna Agitada Kühni*. D.Sc. Tese, Rio de Janeiro, Brasil.
- Mansur, M.B., Slater, M.J., Biscaia Jr, E.C., 2003. *Reactive Extraction of Zinc Sulphate with D2EHPA in a Short Kühni Column used in Batch Mode*. Ind. Eng. Chem. Res., v. 72, p. 4068-4076.
- Mizek, T., 1994. *General Hydrodynamic Design Basis for Column*. In: Godfrey, J.C., Slater, M.J. (eds), Liquid-Liquid Extraction Equipment, 1 ed., Chapter 7, John Wiley & Sons, UK, p. 95-113.
- Mögli, A., Bühlmann, U., 1983. *The Kühni Extraction Column*. In: Lo, T., Baird, M., Hanson, C. (eds.), Handbook of Solvent Extraction, 1 ed., Chapter 13.5, p. 441-447, Wiley & Sons, U.S.A., p. 441-448.
- Mohanty, S., Vogelpohl, A., 1997. *A Simplified Hydrodynamic Model for a Pulsed Sieve-Plate Extraction Column*. Chem. Eng. Process., v. 36, p. 385-395.
- Mohanty, S., 2000. *Modelling of Liquid-Liquid Extraction Column: A Review*. Chemical Engineering, v. 16, p. 199-248.
- Moreira, E., Pimenta, L.M., Carneiro, L.L., Faria, R.C.L., Mansur, M.B., Ribeiro, JR., C.P., 2005, *Hydrodynamic Behaviour of a Rotating Disc Contactor Under Low Agitation Conditions*. Chem. Eng. Commun., v. 192, n. 7-9, p. 1017-1035
- Morís, M.A., Díez, F.V., Coca, J., 1997. *Hydrodynamics of a Rotating Disc Contactor*. Sep. Purific. Tech., v. 11, p. 79-92.
- Mugele, R.A., Evans, H.D., 1951. *Drop Size Distributions in Sprays*. Ind. Eng. Chem., v. 43, p. 1317.
- Pacek, A.W., Nienow, A.W., 1995. *Measurements of Drop Size Distribution in Concentrated Liquid-Liquid Dispersions: Video and Capillary Techniques*. Trans. IChemE A, v. 73, p. 512.
- Pratt, H.R.C., 1983. *Computation of Stagewise and Differential Contactors: Plug-flow*. Em: Lo, T.C., Baird, M.H.I., Hanson, C., Handbook of Solvent Extraction, 1ed., ch.5, John Wiley & Sons, USA, p. 151-198.

- Ribeiro, L.M., Regueiras, P.F.R., Guimaraes, M.M.L., Madureira, C.N.M., Cruz-Pinto, J.J.C., 1995. *The Dynamic Behaviour of Liquid-Liquid Agitated Dispersions – I. The Hydrodynamics*. Comp. Chem. Eng., v. 19, p. 333-343.
- Ribeiro, M.M.M, Guimarães, M.M.L, Madureira, C.M.N., Cruz Pinto, J.J.C., 2004. *Non-invasive System and Procedures for the Characterization of Liquid-Liquid Dispersions*. Chem. Eng. Journal, v. 97, p. 173-182.
- Ritcey, G.M., Ashbrook, A.W., 1984. *Solvent Extraction: Principles and Applications to Process Metallurgy*. Process Metallurgy 1, Part 1. Elsevier.
- Rod, V., 1966. *Calculating Mass Transfer with longitudinal Mixing*. Br. Chem. Eng., v. 11, p. 483-487.
- Slater, M.J., 1985. *Liquid-liquid Extraction Column Design*. Can. J. Chem. Eng., v. 63, p. 1004-1012.
- Slater, M.J., 1994. *Rate Coefficients in Liquid-liquid Extraction Systems*. In: Godfrey, J.C., Slater, M.J. (eds), *Liquid-Liquid Extraction Equipment*, 1 ed., chapter 4, John Wiley & Sons, UK, p. 45-94.
- Steiner, L., 1994. *Computation Procedures for Column Simulation and Design*. In: Godfrey, J.C., Slater, M.J. (eds), *Liquid-Liquid Extraction Equipment*, 1 ed., chapter 6, John Wiley & Sons, UK, p. 115-136.
- Tsouris, C., Ferreira, R., Tavlarides, L.L., 1990. *Characterization of Hydrodynamic Parameters in a Multistage Column Contactor*. Can. J. Chem. Eng., v. 68, p. 913-923.
- Tsouris, C., Tavlarides, L.L., 1993. *Mass Transfer Effects on Droplet Phenomena and Extraction Column Hydrodynamics Revisited*. Chem. Eng. Science, v. 48, p. 1503-1515.
- Vogelpohl, A., Korch, J., 2002. *A Distributor for Liquid-Liquid Extraction Columns*. ISEC 2002, p. 1364-1369. Johannesburg.
- Weiss, J., Steiner, L., Hartland, S., 1995. *Determination of Actual Drop Velocities in Agitated Extraction Columns*. Chem. Eng. Sci., v. 50, p. 255-261.
- Yamaguchi, M., Yamashita, H., Noda, H., 2002. *Hydrodynamics and Mass Transfer of a Rotating Disc Column*. ISEC 2002, p. 1334-1338. Johannesburg.
- Zamponi, G., Stichmair, J., Gerstauer, A., Gilles, E.D., 1996. *The transient Behaviour of a Liquid-Liquid Agitated Extraction Column – Experiment and Simulation*. In: Proceedings of the International Solvent Extraction Conference (ISEC'96), v. 2, p. 1049-1054, Melbourne, Australia.

A ANEXOS

ANEXO 1

Tabela A.1: Determinação do número mínimo de gotas a serem contadas.

Operador 1

nº amostras	Diâmetro Médio	Desvio Médio
	mm	%
50	4.80	2.39
100	4.74	2.27
150	4.69	2.33
200	4.63	2.28
250	4.60	2.29
300	4.54	2.21
350	4.48	2.18
400	4.48	2.11
450	4.42	2.08
500	4.40	2.03
550	4.39	2.09
600	4.42	2.05
650	4.39	2.02
700	4.35	2.03
750	4.31	2.02
800	4.31	2.07
850	4.32	2.10
900	4.30	2.15
950	4.25	2.15
971	4.22	2.16

Operador 2

nº amostras	Diâmetro Médio	Desvio Médio
	mm	%
50	4.69	2.67
100	4.44	2.27
150	4.28	1.89
200	4.20	1.79
250	4.14	1.74
300	4.17	1.75
350	4.14	1.66
400	4.16	1.66
450	4.14	1.66
500	4.13	1.67
550	4.10	1.64
600	4.06	1.62
650	4.06	1.65
700	4.05	1.63
750	4.06	1.66
800	4.05	1.65
850	4.05	1.65
900	4.07	1.68
950	4.08	1.68
1000	4.10	1.68

Operador 3

nº amostras	Diâmetro Médio	Desvio Médio
	mm	%
50	3.98	2.40
100	3.86	2.28
150	3.80	1.95
200	3.71	1.97
250	3.64	1.84
300	3.61	1.79
350	3.65	1.78
400	3.67	1.80
450	3.71	1.85
500	3.72	1.90
550	3.72	1.90
600	3.72	1.91
650	3.74	1.91
700	3.74	1.91
750	3.77	1.92
800	3.81	1.94
850	3.81	1.92
900	3.81	1.92
950	3.81	1.92
1000	3.82	1.91

ANEXO 2

Tabela A.2: Dados utilizados na predição do fator de forma.

	Posição 1		Posição 2		Posição 3		Posição 4		Média
	Diâmetro (mm)								
vertical	5.91	6.02	6.02	5.92	6.73	6.02	5.10	5.51	5.90
horizontal	6.43	6.43	6.22	6.33	7.25	6.94	-	-	6.60

ANEXO 3

Tabela A.3: Resultados gerais obtido a partir da análise dos dados experimentais para vazão de fase contínua igual a 2.000 mL/min.

Q_c (mL/min)	Q_d (mL/min)	Estágio	N_R (rpm)	Distribuição log-normal			
				μ	σ	R^2	d_{32}
2000	2000	E0	60	1.233	0.345	0.973	5.807
			90	1.171	0.363	0.969	4.502
			120	1.162	0.376	0.978	4.503
			150	1.123	0.366	0.987	4.522
			180	1.133	0.366	0.985	4.295
		E1	60	1.229	0.370	0.927	4.490
			90	1.225	0.341	0.962	4.410
			120	1.173	0.352	0.976	4.317
			150	1.069	0.373	0.995	4.092
			180	0.986	0.358	0.989	3.675
		E3	60	1.284	0.318	0.974	4.606
			90	1.067	0.338	0.977	3.825
			120	0.905	0.389	0.987	3.578
			150	-	-	-	-
			180	-	-	-	-
		E5	60	1.035	0.377	0.981	3.876
			90	0.978	0.382	0.992	3.717
			120	0.759	0.361	0.990	2.849
			150	-	-	-	-
			180	-	-	-	-
	1240	E0	60	1.332	0.303	0.979	4.646
			90	1.277	0.358	0.979	4.830
			120	1.290	0.297	0.985	4.479
			150	1.265	0.339	0.996	4.676
			180	1.265	0.364	0.996	4.781
		E1	60	1.317	0.280	0.955	4.375
			90	1.198	0.379	0.969	4.357
			120	1.127	0.390	0.981	4.176
			150	1.216	0.337	0.996	4.502
			180	1.046	0.339	0.995	3.751
		E3	60	1.253	0.359	0.980	4.370
			90	1.022	0.387	0.977	3.707
120			0.917	0.332	0.993	3.190	
150			-	-	-	-	
180			-	-	-	-	
E5		60	1.296	0.335	0.989	4.629	
		90	1.096	0.316	0.991	3.734	
		120	0.827	0.283	0.994	2.766	
		150	-	-	-	-	
		180	-	-	-	-	

Tabela A.4: Resultados gerais obtido a partir da análise dos dados experimentais para vazão de fase contínua igual a 1.240 mL/min.

Q_c (mL/min)	Q_d (mL/min)	Estágio	N_R (rpm)	Distribuição log-normal			d_{32}
				μ	σ	R	
1240	1240	E0	60	1.702	0.317	0.991	-
			90	1.623	0.315	0.994	-
			120	1.574	0.316	0.991	-
			150	1.601	0.289	0.992	-
			180	-	-	-	-
		E1	60	1.290	0.398	0.998	5.216
			90	1.244	0.402	0.996	4.997
			120	1.229	0.390	0.996	4.743
			150	1.109	0.417	0.996	4.550
			180	0.778	0.354	0.986	3.171
		E3	60	1.362	0.352	0.994	5.106
			90	1.159	0.319	0.998	4.060
			120	0.881	0.301	0.998	3.021
			150	0.728	0.293	0.998	2.543
			180	0.463	0.284	0.993	1.921
		E5	60	1.189	0.305	0.995	4.066
			90	1.064	0.317	0.995	3.641
			120	0.665	0.339	0.996	2.533
			150	0.485	0.294	0.996	2.019
			180	0.359	0.269	0.992	2.001
	2000	E0	60	1.310	0.312	0.985	4.903
			90	1.251	0.311	0.993	4.944
			120	1.214	0.363	0.966	4.599
			150	1.241	0.291	0.992	4.447
			180	0.943	0.412	0.986	3.858
		E1	60	1.333	0.279	0.988	4.759
			90	1.153	0.333	0.964	4.158
			120	1.001	0.365	0.954	4.028
			150	0.985	0.365	0.985	3.675
			180	0.856	0.290	0.994	2.975
		E3	60	1.214	0.333	0.985	4.422
			90	1.137	0.335	0.994	4.353
			120	1.026	0.312	0.993	3.552
			150	0.726	0.304	0.989	2.628
			180	0.541	0.270	0.995	2.058
		E5	60	1.209	0.337	0.985	4.413
			90	1.011	0.269	0.988	3.372
			120	0.598	0.282	0.995	2.209
			150	0.546	0.001	0.994	2.081
			180	0.397	0.249	0.995	1.758

ANEXO 4

Tabela A.5: Valores de *hold-up* total obtido experimentalmente, pela correlação empírica proposta neste trabalho e por Kumar e Hartland (1995).

Qc mL/min	Qd mL/min	N_R RPM	hold up total experimental %	Desvio Médio 95% confiança	hold up total predito %	hold up total Kumar e Hartland, 1995 %
1240	1240	60	1.32%	0.002	0.93%	2.02%
1240	1240	120	2.10%	0.002	2.39%	3.04%
1240	1240	180	4.11%	0.005	3.85%	4.99%
1240	2000	60	1.57%	0.002	1.49%	2.74%
1240	2000	120	3.01%	0.002	3.85%	4.13%
1240	2000	180	6.38%	0.003	6.21%	6.78%
2000	1240	60	0.87%	0.0001	0.60%	2.30%
2000	1240	120	1.78%	0.001	2.06%	3.46%
2000	1240	180	4.18%	0.003	3.52%	5.69%
2000	2000	60	1.12%	0.002	0.96%	3.12%
2000	2000	120	2.79%	0.005	3.32%	4.70%
2000	2000	180	5.86%	0.006	5.68%	7.73%

Tabela A.6: Valores de *hold-up* local obtido experimentalmente.

Estágio	Qd mL/min	N_R RPM	hold up local	
2	1240	60	-	
		120	0.017	
		180	0.067	
4		60	-	
		120	0.064	
		180	0.065	
2		2000	60	0.014
			120	0.016
			180	0.119
4	60		0.014	
	120		0.040	
	180		0.145	

ANEXO 5

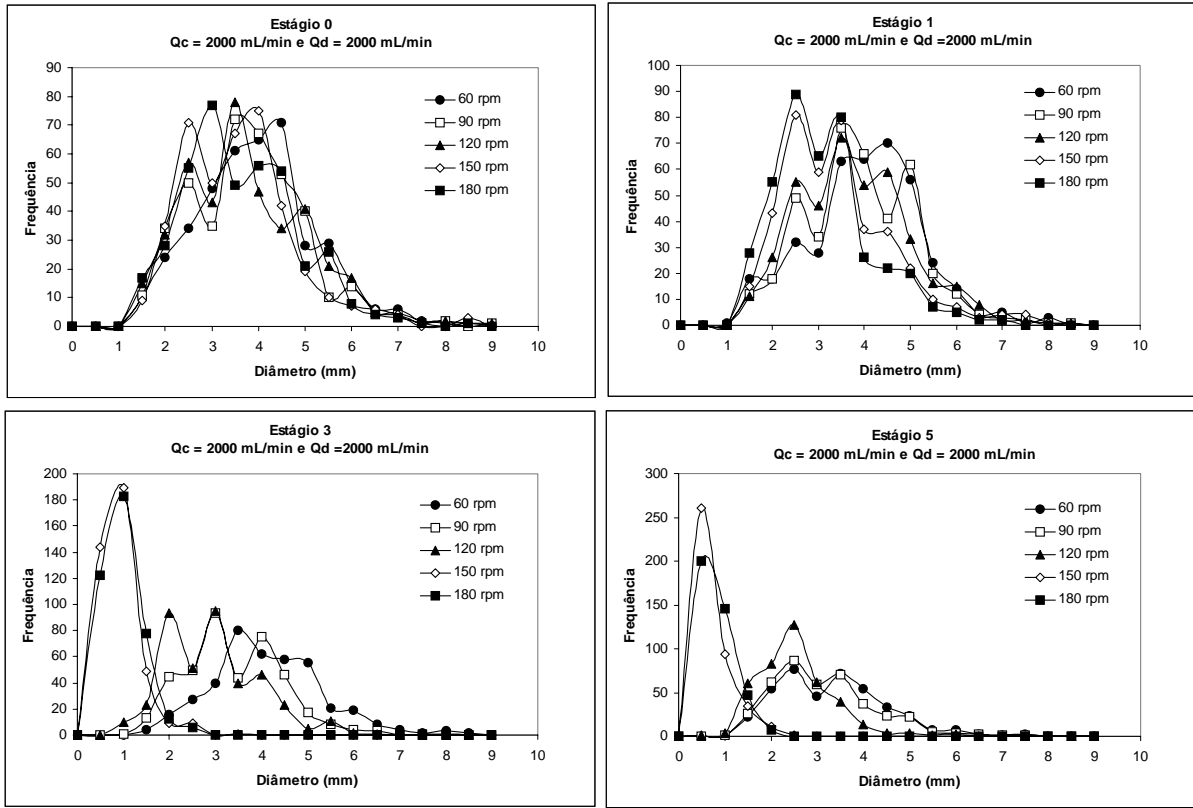


Figura A.1: Efeito da velocidade de agitação na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.

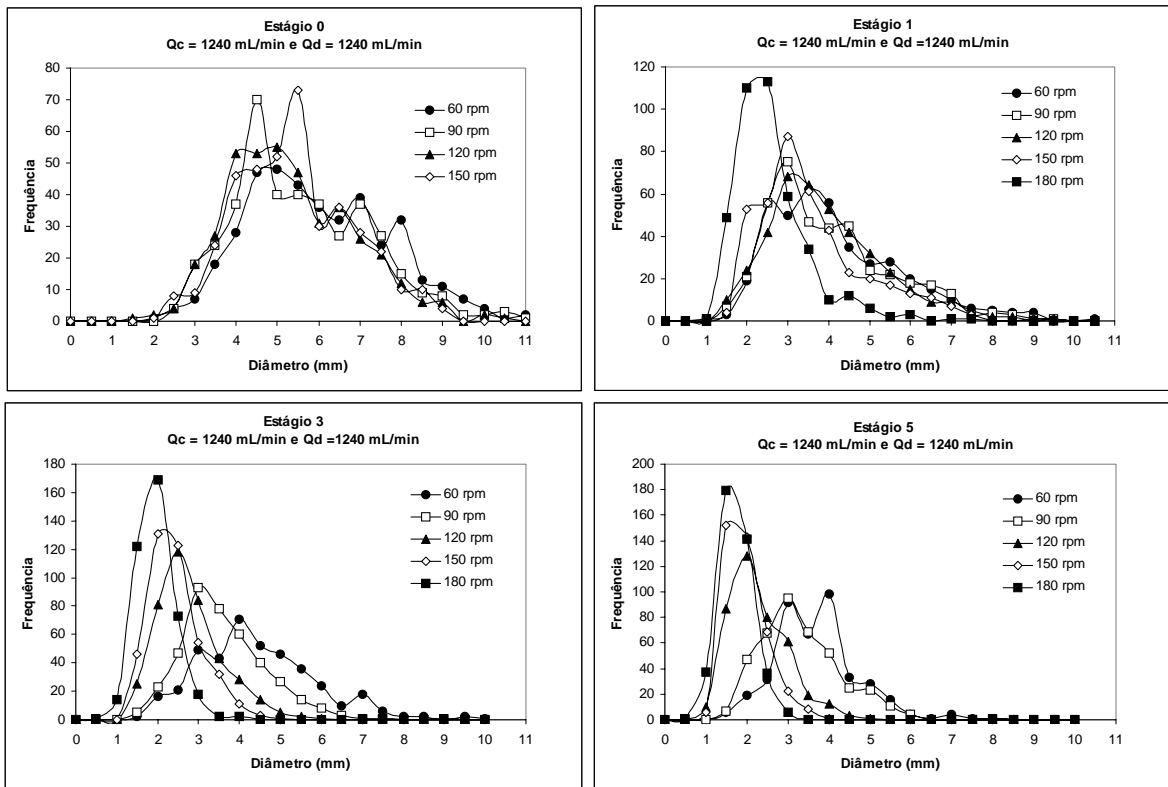


Figura A.2: Efeito da velocidade de agitação na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.

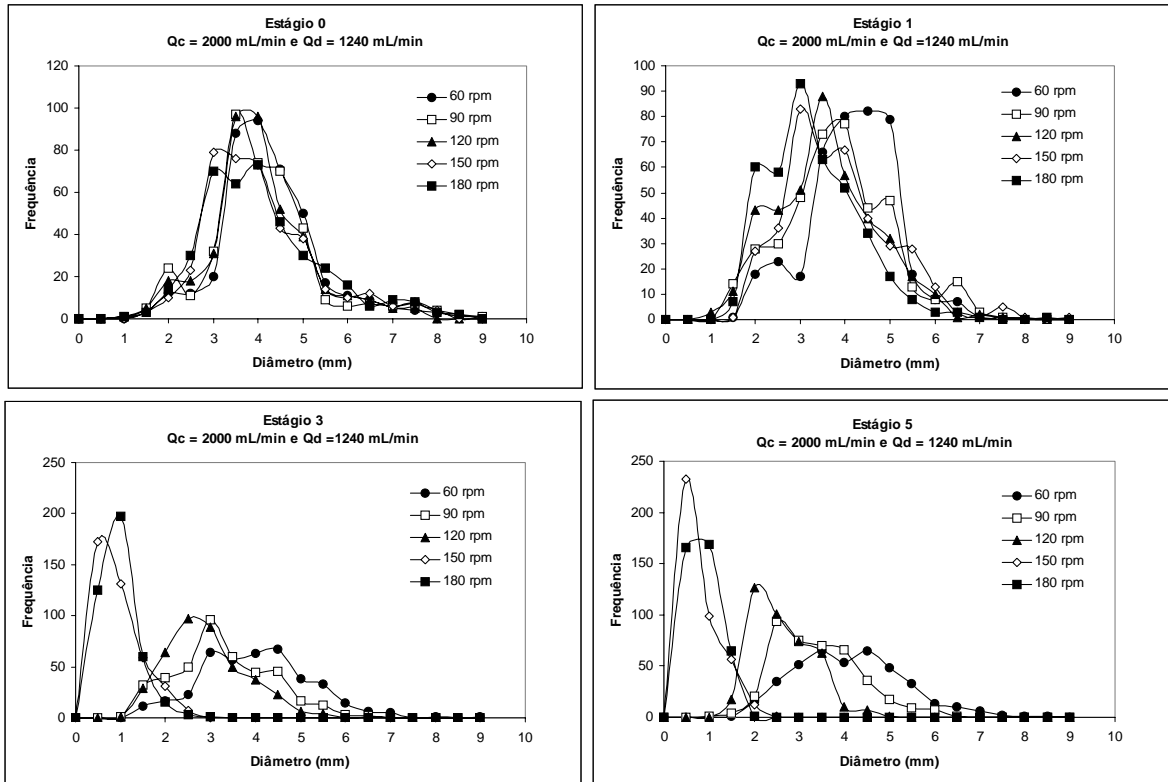


Figura A.3: Efeito da velocidade de agitação na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa igual a 1.240 mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.

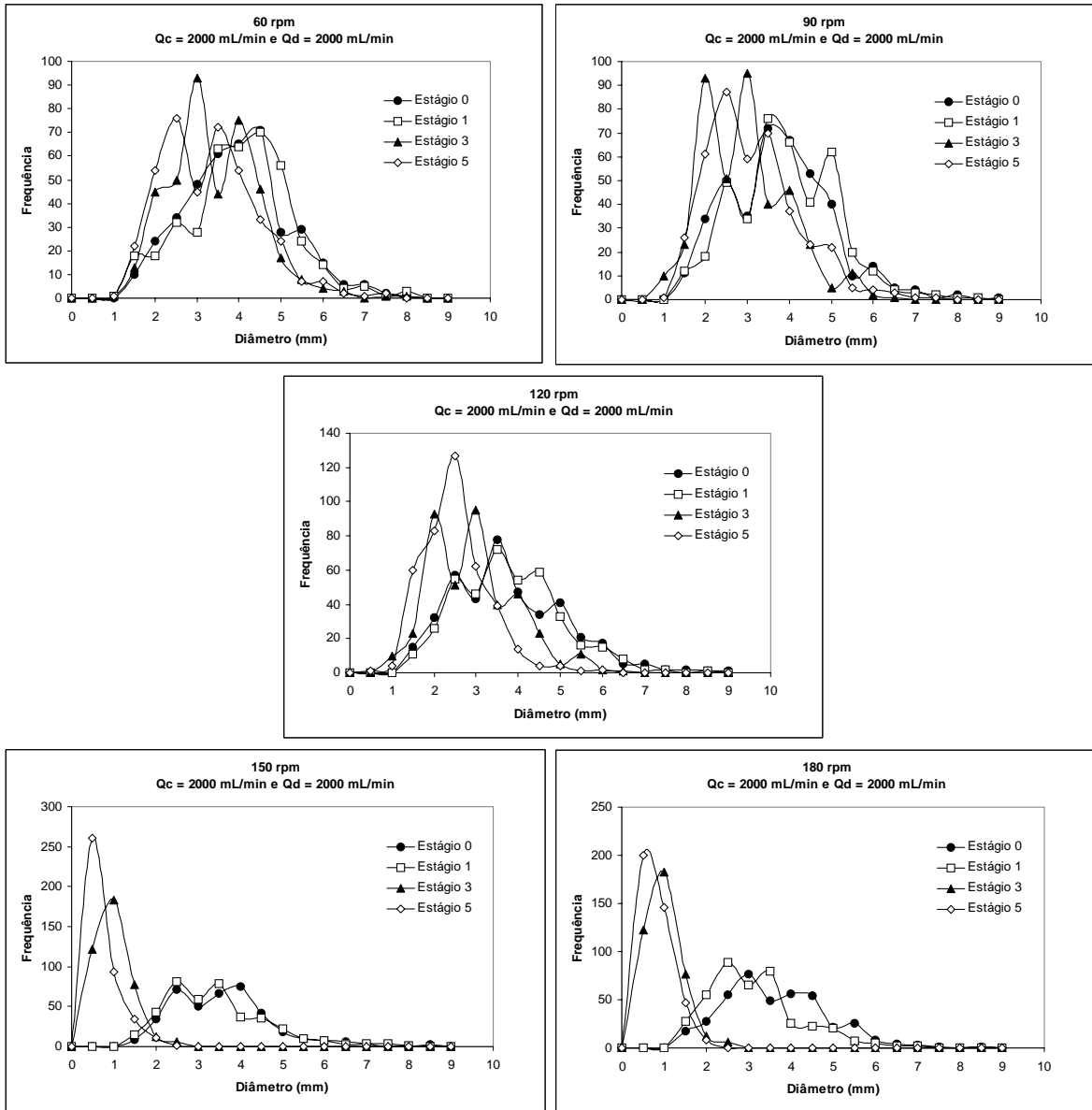


Figura A.4: Efeito da altura na coluna na distribuição de diâmetros experimentais das gotas em uma coluna Kühni para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.

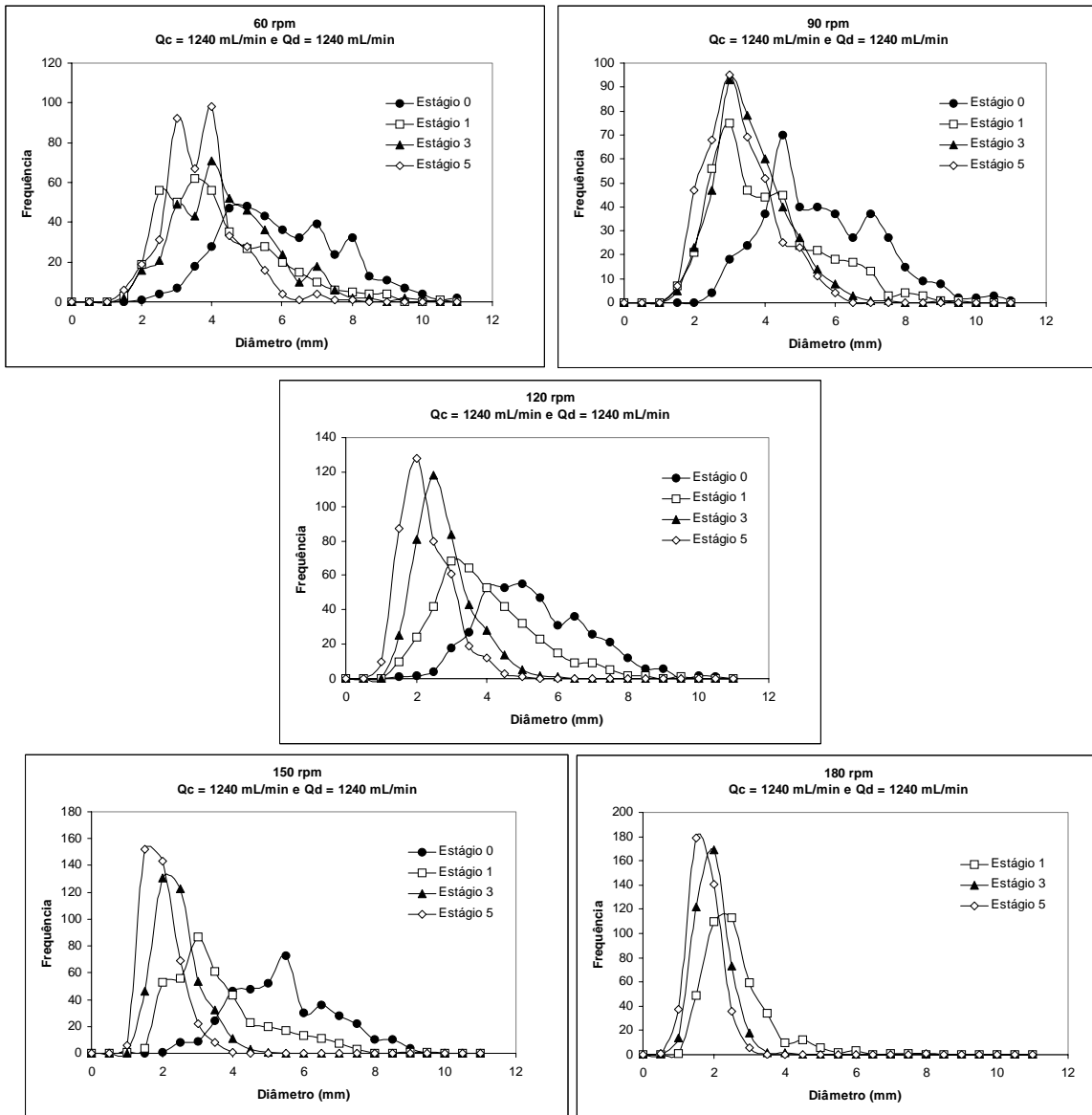


Figura A.5: Efeito da altura na coluna na distribui \csc o de di \acute{a} metros experimentais das gotas em uma coluna K \ddot{u} hni para as vaz \ddot{o} es de fase dispersa e cont \acute{i} nua igual a 1.240 mL/min.

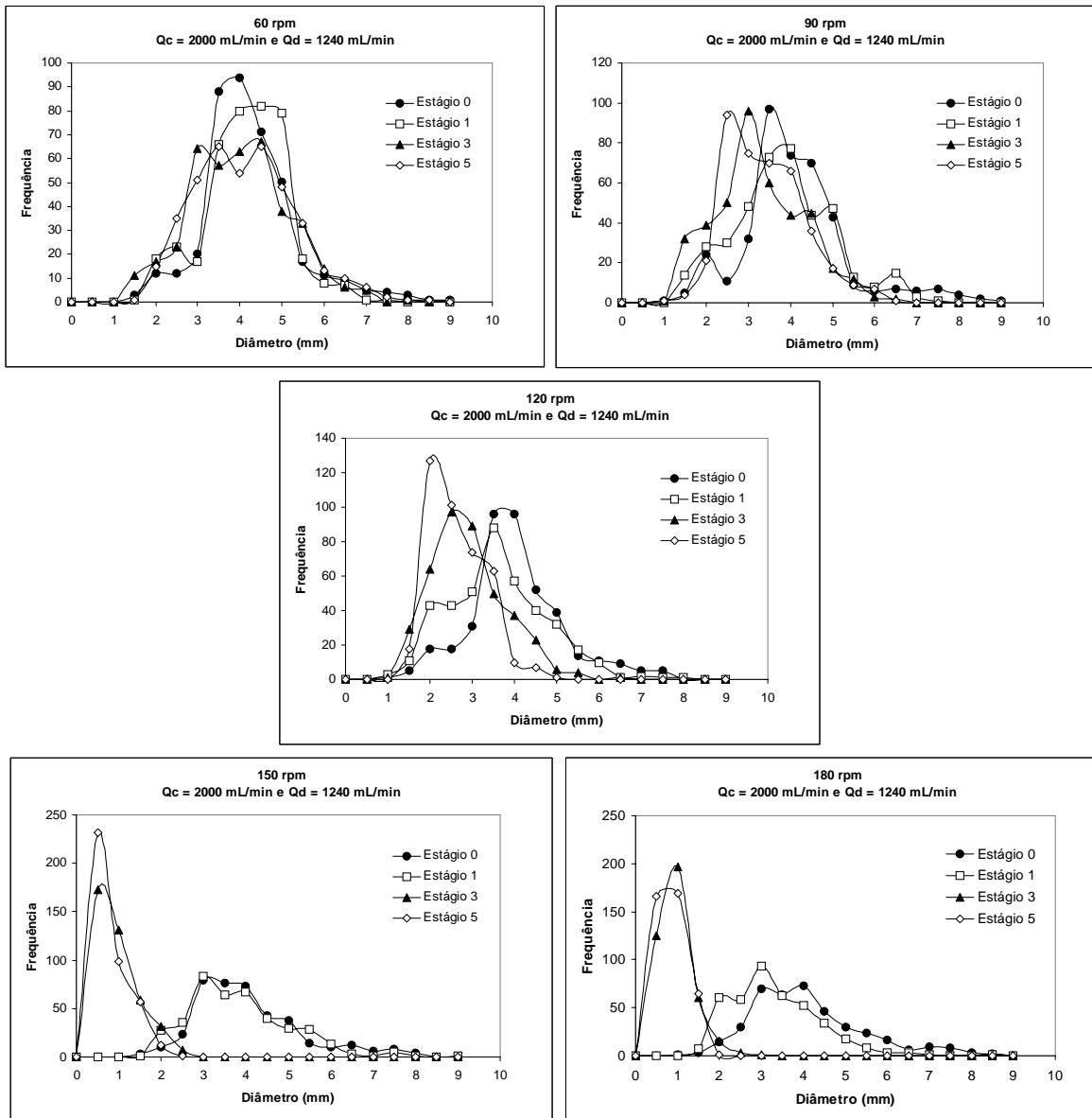
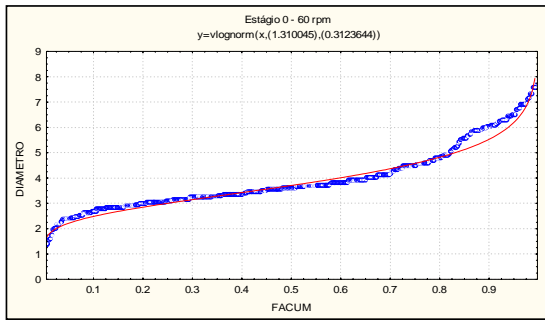


Figura A.6: Efeito da altura na coluna na distribui \c o de di \acute{a} metros experimentais das gotas em uma coluna K \ddot{u} hni para as vaz \ddot{o} es de fase dispersa igual a 1.240 mL/min e cont \acute{i} nua igual a 2.000 mL/min.

ANEXO 6

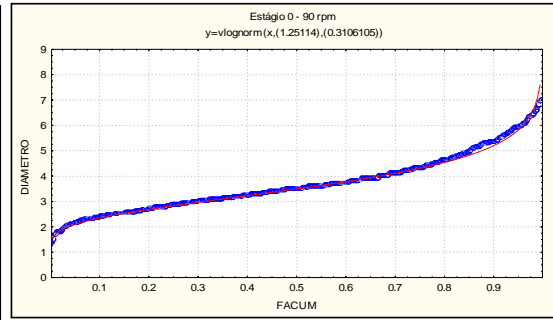


Final loss: 450,828 **R =** 0,985
Variance explained: 97,09%

	MI	SIGMA
Estimate	1,310	0,312
Std.Err.	0,002	0,003
t(398)	551,058	114,680
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,033
SIGMA	-0,033	1,000

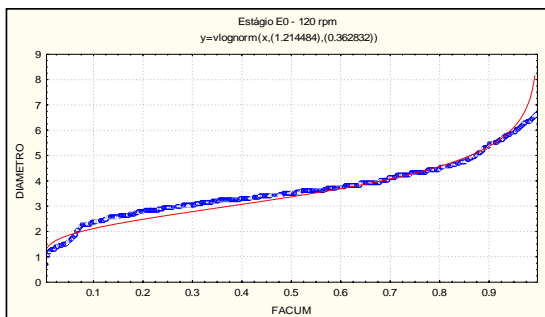


Final loss: 193,052 **R =** 0,993
Variance explained: 98,65%

	MI	SIGMA
Estimate	1,251	0,311
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	1440,399	359,286
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,005
SIGMA	-0,005	1,000

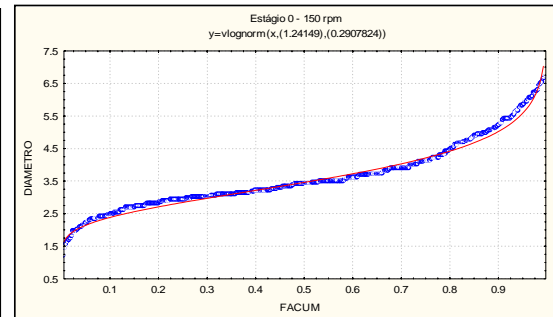


Final loss: 1560,110 **R =** 0,966
Variance explained: 93,38%

	MI	SIGMA
Estimate	1,214	0,363
Std.Err.	0,005	0,004
t(398)	266,207	82,882
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,044
SIGMA	-0,044	1,000



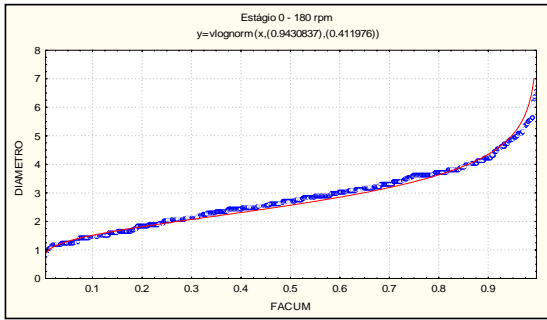
Final loss: 249,737 **R =** 0,992
Variance explained: 98,31%

	MI	SIGMA
Estimate	1,241	0,291
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	685,778	145,050
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,029
SIGMA	-0,029	1,000

Figura A.7: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.

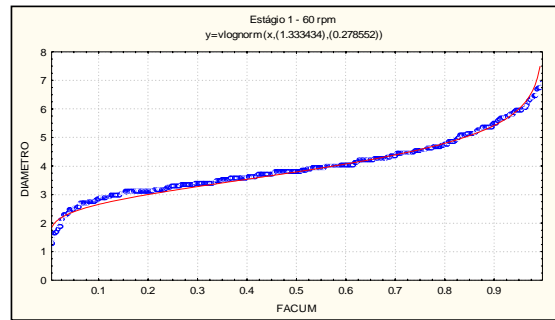


Final loss: 389,785 R = 0,986
 Variance explained: 97,17%

	MI	SIGMA
Estimate	0,943	0,412
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	408,544	176,537
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,037
SIGMA	-0,037	1,000

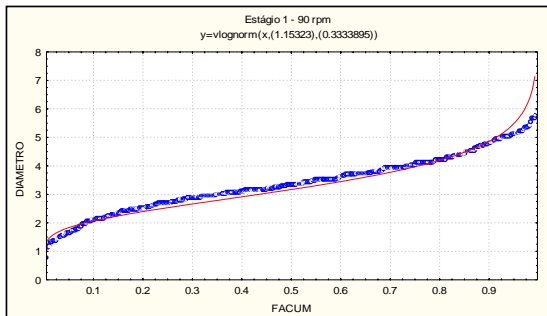


Final loss: 519,773 R = 0,988
 Variance explained: 97,71%

	MI	SIGMA
Estimate	1,333	0,279
Std.Err.	0,002	0,003
t(398)	539,563	107,178
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,032
SIGMA	-0,032	1,000

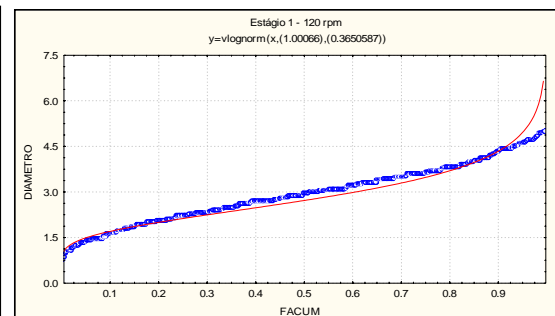


Final loss: 1036,330 R = 0,964
 Variance explained: 92,90%

	MI	SIGMA
Estimate	1,153	0,333
Std.Err.	0,004	0,004
t(398)	321,390	94,989
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,041
SIGMA	-0,041	1,000



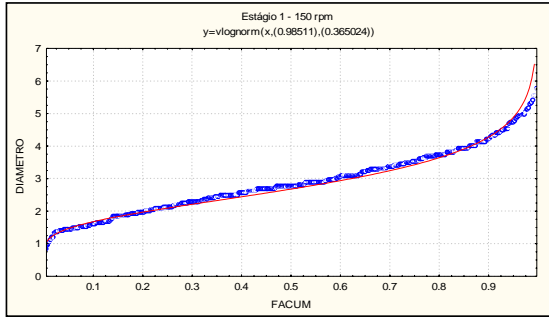
Final loss: 1176,871 R = 0,954
 Variance explained: 90,98%

	MI	SIGMA
Estimate	1,001	0,365
Std.Err.	0,004	0,003
t(398)	257,797	107,012
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,005
SIGMA	-0,005	1,000

Figura A.8: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.

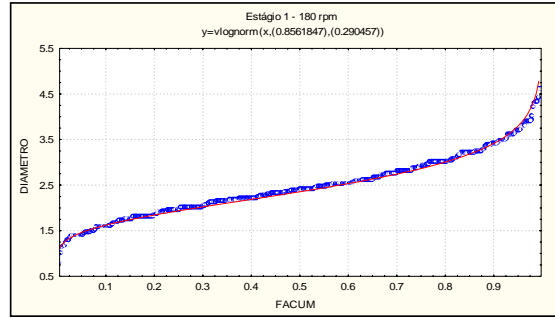


Final loss: 330,766 **R =** 0,985
Variance explained: 96,96%

	MI	SIGMA
Estimate	0,985	0,365
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	465,728	170,551
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,034
SIGMA	-0,034	1,000

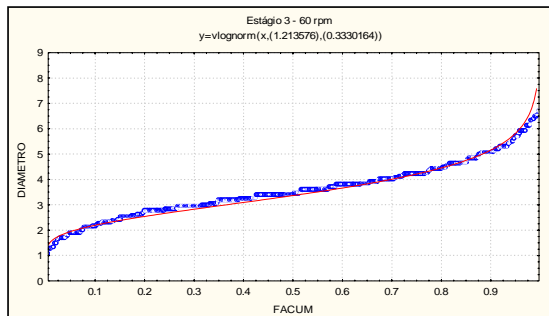


Final loss: 140,437 **R =** 0,994
Variance explained: 98,88%

	MI	SIGMA
Estimate	0,856	0,290
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	626,198	203,911
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,031
SIGMA	-0,031	1,000

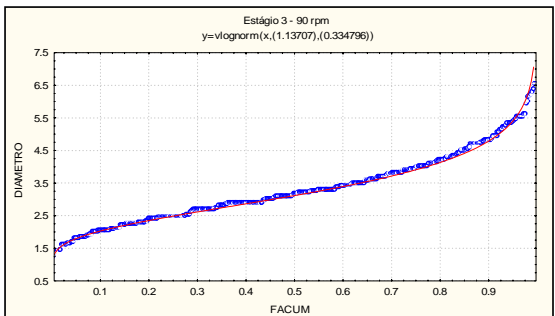


Final loss: 455,706 **R =** 0,985
Variance explained: 97,01%

	MI	SIGMA
Estimate	1,214	0,333
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	512,936	136,054
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,038
SIGMA	-0,038	1,000



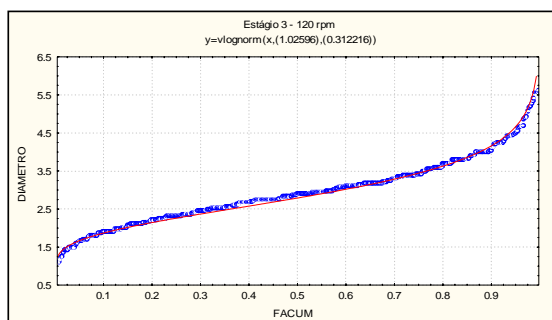
Final loss: 91,495 **R =** 0,994
Variance explained: 98,79%

	MI	SIGMA
Estimate	1,137	0,335
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	1061,948	296,224
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,025
SIGMA	-0,025	1,000

Figura A.9: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.

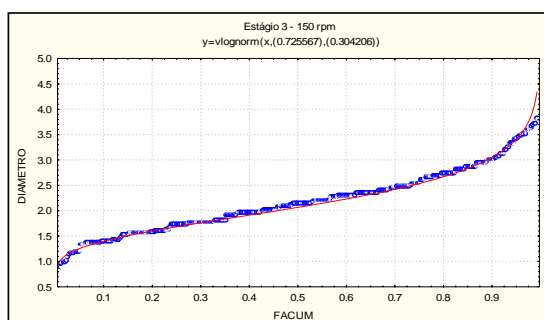


Final loss: 212,089 R = 0,993
 Variance explained: 98,62%

	MI	SIGMA
Estimate	1,026	0,312
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	677,815	196,473
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,035
SIGMA	-0,035	1,000

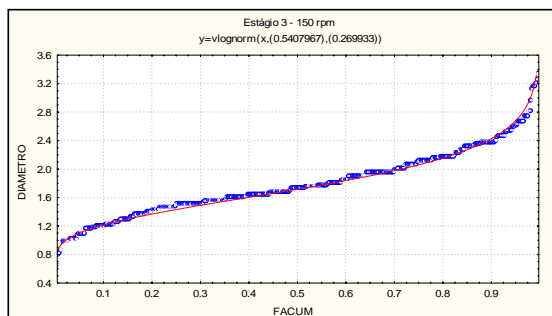


Final loss: 205,096 R = 0,989
 Variance explained: 97,83%

	MI	SIGMA
Estimate	0,726	0,304
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	442,380	181,889
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,031
SIGMA	-0,031	1,000

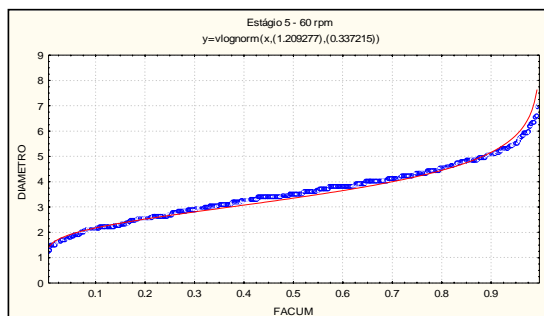


Final loss: 135,109 R = 0,995
 Variance explained: 99,05%

	MI	SIGMA
Estimate	0,541	0,270
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	398,937	196,202
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,025
SIGMA	-0,025	1,000



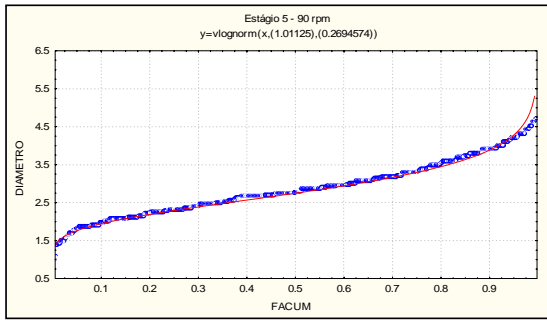
Final loss: 317,897 R = 0,985
 Variance explained: 97,09%

	MI	SIGMA
Estimate	1,209	0,337
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	604,705	165,558
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,029
SIGMA	-0,029	1,000

Figura A.10: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.

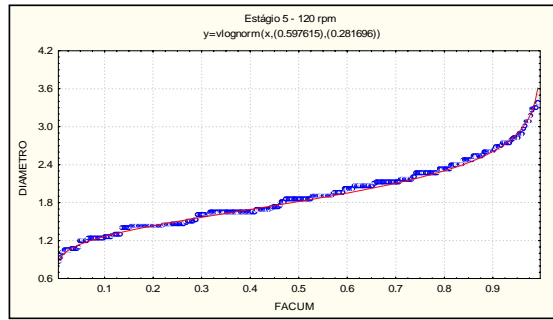


Final loss: 237,407 R = 0,988
 Variance explained: 97,61%

	MI	SIGMA
Estimate	1,011	0,269
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	576,069	147,867
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,028
SIGMA	-0,028	1,000

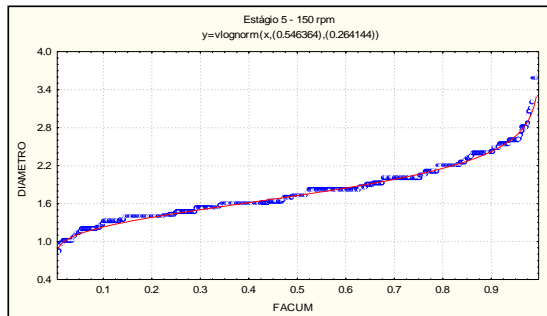


Final loss: 95,651 R = 0,995
 Variance explained: 98,96%

	MI	SIGMA
Estimate	0,598	0,282
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	532,589	239,315
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,030
SIGMA	-0,030	1,000

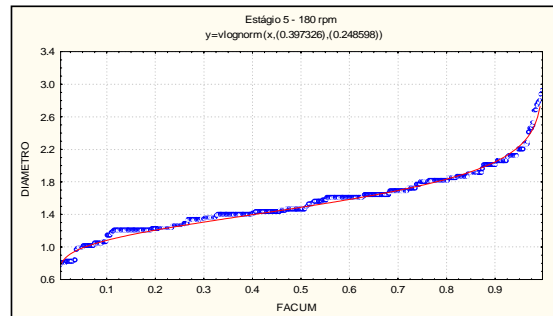


Final loss: 106,543 R = 0,994
 Variance explained: 98,90%

	MI	SIGMA
Estimate	0,546	0,264
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	446,233	202,348
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,026
SIGMA	-0,026	1,000



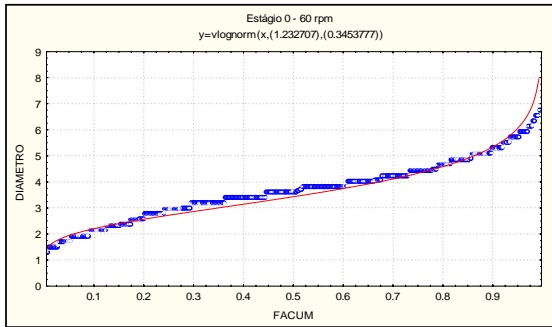
Final loss: 138,889 R = 0,995
 Variance explained: 98,96%

	MI	SIGMA
Estimate	0,397	0,249
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	279,386	171,595
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,019
SIGMA	-0,019	1,000

Figura A.11: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 2.000mL/min e contínua igual a 1.240 mL/min.

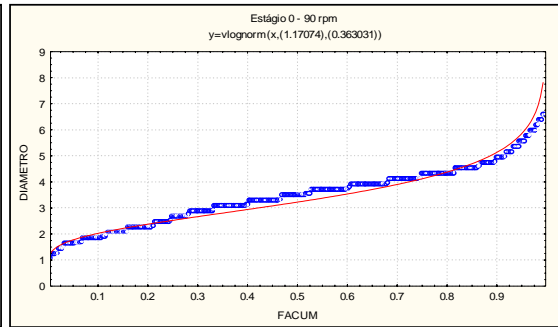


Final loss: 675,190 R = 0,973
 Variance explained: 94,75%

	MI	SIGMA
Estimate	1,233	0,345
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	407,641	115,820
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,029
SIGMA	-0,029	1,000

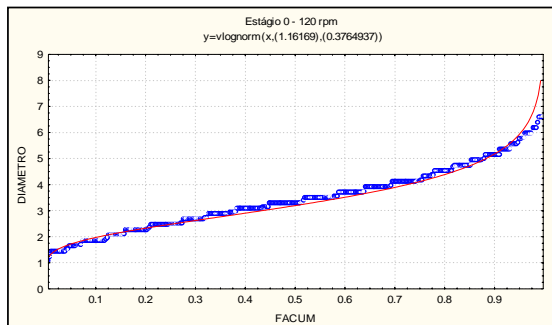


Final loss: 829,705 R = 0,969
 Variance explained: 93,92%

	MI	SIGMA
Estimate	1,171	0,363
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	362,795	112,753
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,037
SIGMA	-0,037	1,000

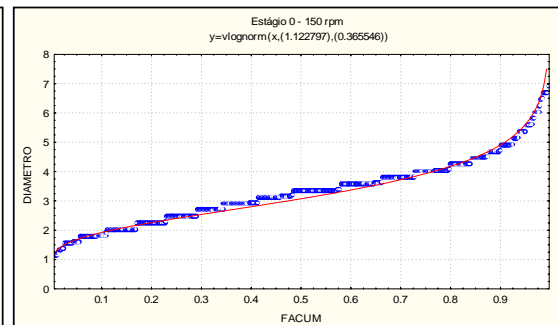


Final loss: 475,440 R = 0,978
 Variance explained: 95,65%

	MI	SIGMA
Estimate	1,162	0,376
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	464,178	147,770
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,035
SIGMA	-0,035	1,000



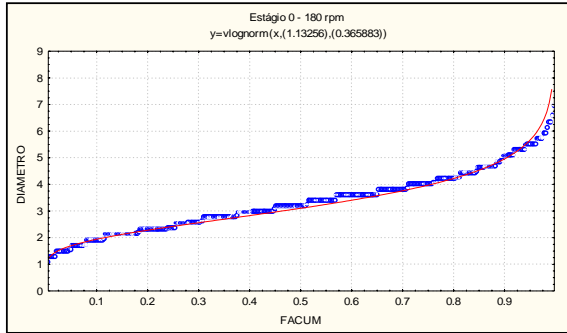
Final loss: 381,487 R = 0,987
 Variance explained: 97,50%

	MI	SIGMA
Estimate	1,123	0,366
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	519,412	161,916
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,039
SIGMA	-0,039	1,000

Figura A.12: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.

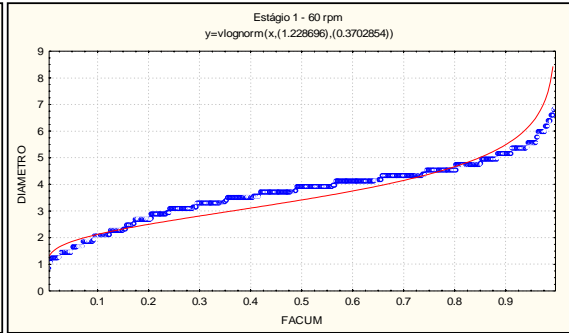


Final loss: 338,933 **R =** 0,985
Variance explained: 96,99%

	MI	SIGMA
Estimate	1,133	0,366
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	534,029	167,610
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,035
SIGMA	-0,035	1,000

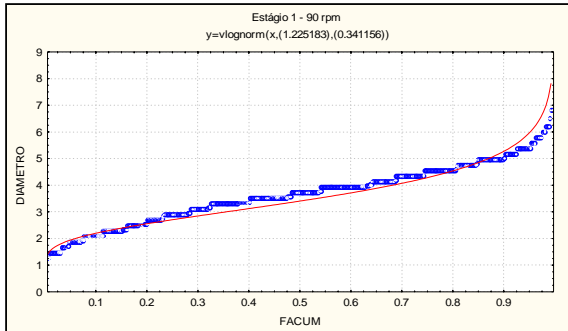


Final loss: 2247,017 **R =** 0,927
Variance explained: 85,93%

	MI	SIGMA
Estimate	1,229	0,370
Std.Err.	0,005	0,005
t(398)	226,425	74,426
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,041
SIGMA	-0,041	1,000

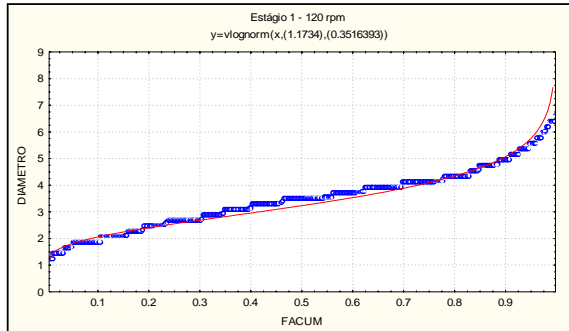


Final loss: 922,536 **R =** 0,962
Variance explained: 92,63%

	MI	SIGMA
Estimate	1,225	0,341
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	355,346	100,058
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,036
SIGMA	-0,036	1,000



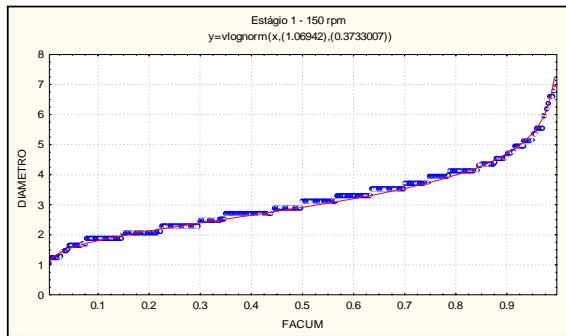
Final loss: 720,249 **R =** 0,976
Variance explained: 95,19%

	MI	SIGMA
Estimate	1,173	0,352
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	419,483	135,567
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,007
SIGMA	-0,007	1,000

Figura A.13: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.

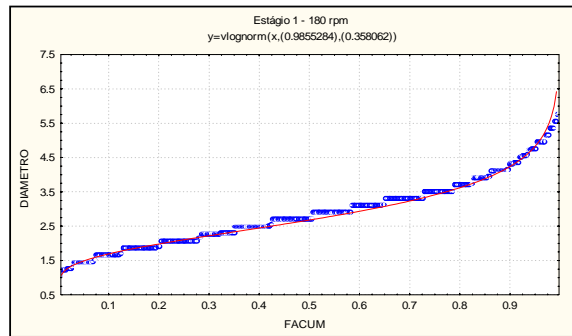


Final loss: 157,574 **R =** 0,995
Variance explained: 99,08%

	MI	SIGMA
Estimate	1,069	0,373
Std.Err.	0,001	0,002
t(398)	736,900	240,514
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,035
SIGMA	-0,035	1,000

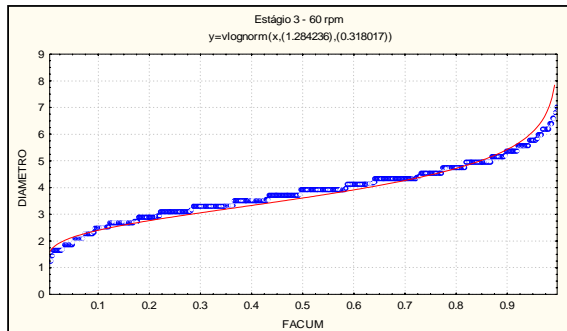


Final loss: 238,876 **R =** 0,989
Variance explained: 97,82%

	MI	SIGMA
Estimate	0,986	0,358
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	576,871	198,111
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,037
SIGMA	-0,037	1,000

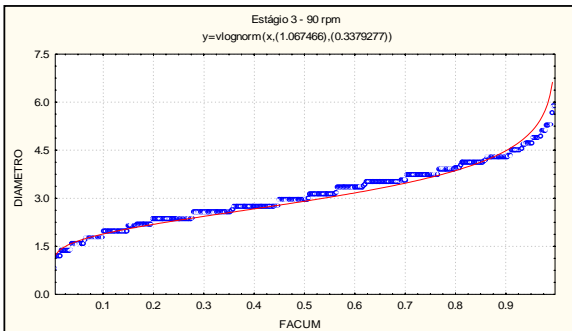


Final loss: 700,065 **R =** 0,974
Variance explained: 94,95%

	MI	SIGMA
Estimate	1,284	0,318
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	417,796	105,020
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,030
SIGMA	-0,030	1,000



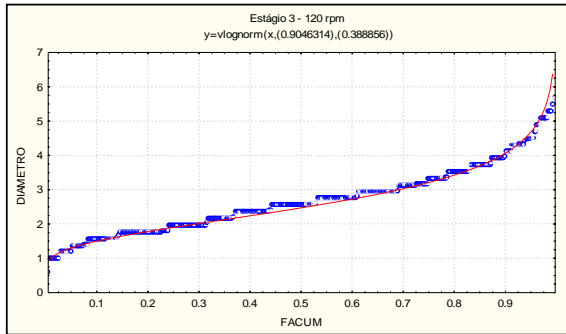
Final loss: 558,750 **R =** 0,977
Variance explained: 95,42%

	MI	SIGMA
Estimate	1,067	0,338
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	390,696	123,841
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,034
SIGMA	-0,034	1,000

Figura A.14: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.

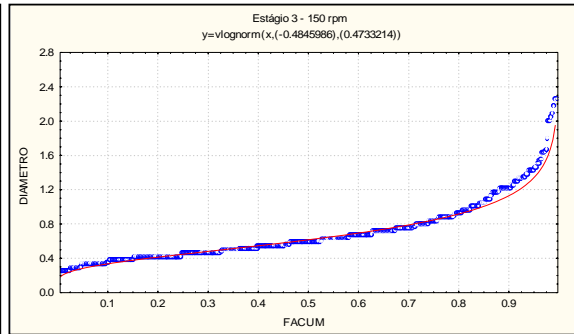


Final loss: 445,588 R = 0,987
 Variance explained: 97,33%

	MI	SIGMA
Estimate	0,905	0,389
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	366,284	158,357
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,031
SIGMA	-0,031	1,000

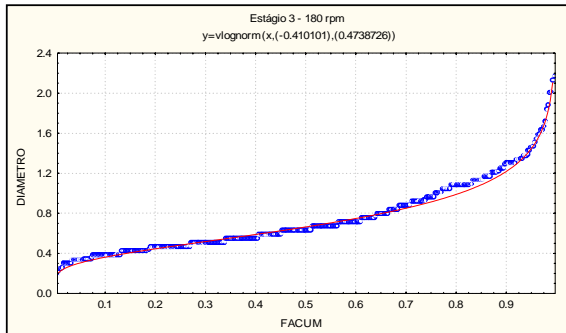


Final loss: 581,512 R = 0,987
 Variance explained: 97,38%

	MI	SIGMA
Estimate	-0,485	0,473
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	-156,423	138,548
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,029
SIGMA	-0,029	1,000

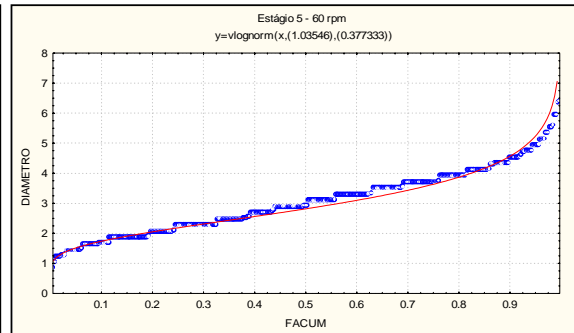


Final loss: 407,204 R = 0,994
 Variance explained: 98,83%

	MI	SIGMA
Estimate	-0,410	0,474
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	-157,350	178,358
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,042
SIGMA	-0,042	1,000



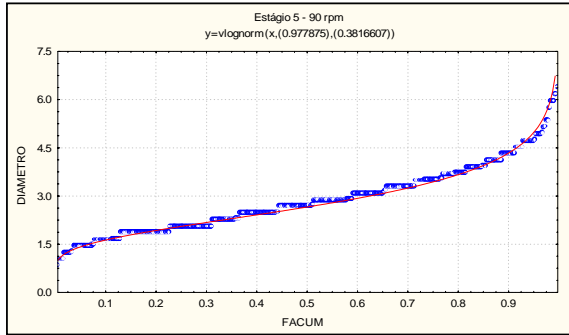
Final loss: 453,572 R = 0,981
 Variance explained: 96,28%

	MI	SIGMA
Estimate	1,035	0,377
Std.Err.	0,002	0,003
t(398)	418,387	150,393
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,034
SIGMA	-0,034	1,000

Figura A.15: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.

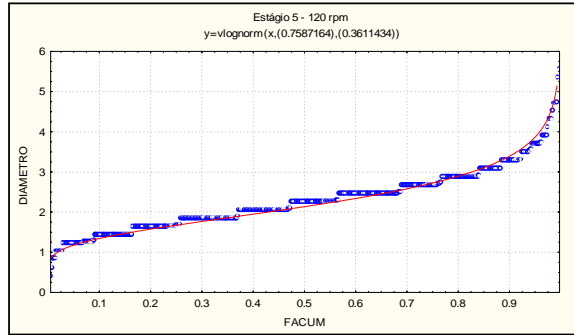


Final loss: 230,161 **R =** 0,992
Variance explained: 98,34%

	MI	SIGMA
Estimate	0,978	0,382
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	553,041	206,594
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,035
SIGMA	-0,035	1,000

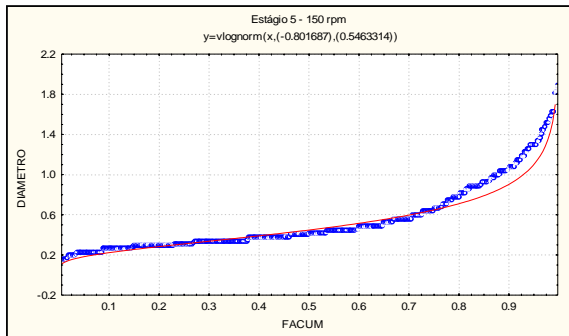


Final loss: 860,952 **R =** 0,990
Variance explained: 97,98%

	MI	SIGMA
Estimate	0,759	0,361
Std.Err.	0,004	0,003
t(398)	211,689	104,847
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,027
SIGMA	-0,027	1,000

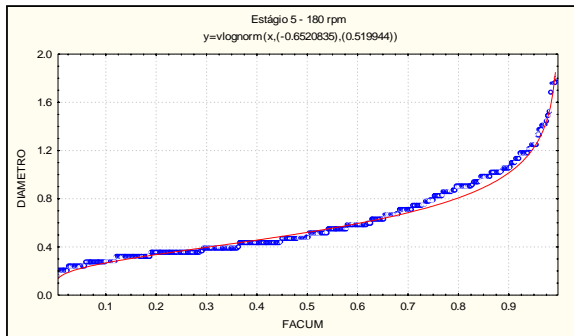


Final loss: 1756,898 **R =** 0,976
Variance explained: 95,28%

	MI	SIGMA
Estimate	-0,802	0,546
Std.Err.	0,006	0,006
t(398)	-144,577	88,508
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,045
SIGMA	-0,045	1,000



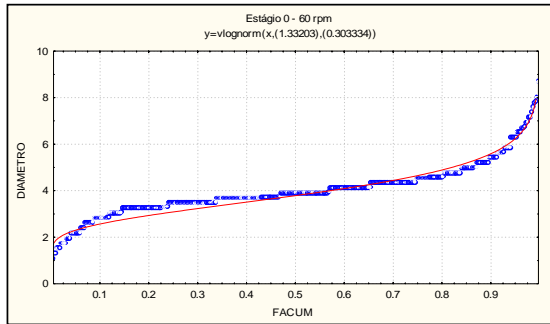
Final loss: 700,246 **R =** 0,991
Variance explained: 98,17%

	MI	SIGMA
Estimate	-0,652	0,520
Std.Err.	0,003	0,004
t(398)	-189,415	146,524
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,039
SIGMA	-0,039	1,000

Figura A.16: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 2.000 mL/min.

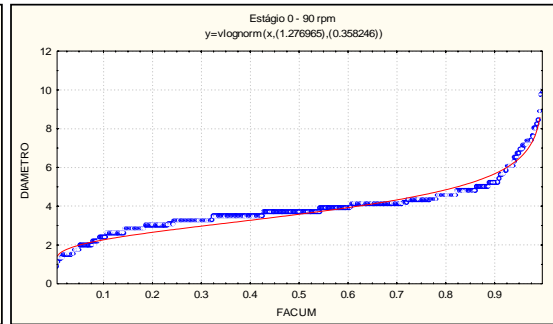


Final loss: 1086,428 **R =** 0,979
Variance explained: 95,91%

	MI	SIGMA
Estimate	1,332	0,303
Std.Err.	0,004	0,004
t(398)	338,794	77,701
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,028
SIGMA	-0,028	1,000

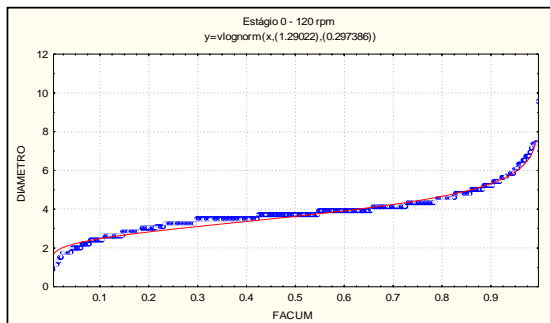


Final loss: 1263,421 **R =** 0,979
Variance explained: 95,89%

	MI	SIGMA
Estimate	1,277	0,358
Std.Err.	0,004	0,004
t(398)	296,755	85,091
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,025
SIGMA	-0,025	1,000

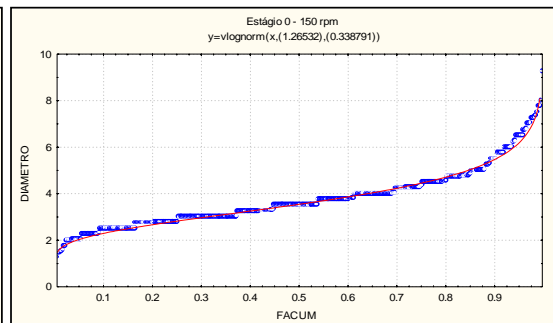


Final loss: 15,839 **R =** 0,985
Variance explained: 97,01%

	MI	SIGMA
Estimate	1,290	0,297
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	478,817	117,226
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,518
SIGMA	-0,518	1,000



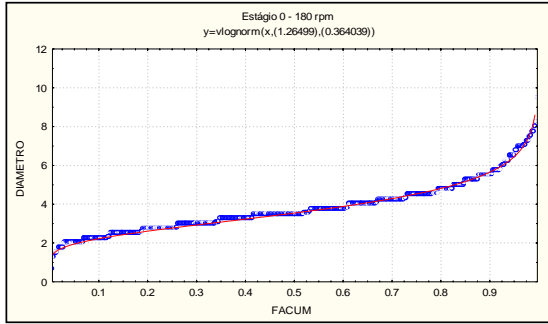
Final loss: 5,706 **R =** 0,996
Variance explained: 99,12%

	MI	SIGMA
Estimate	1,265	0,339
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	749,270	221,465
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,569
SIGMA	-0,569	1,000

Figura A.17: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.

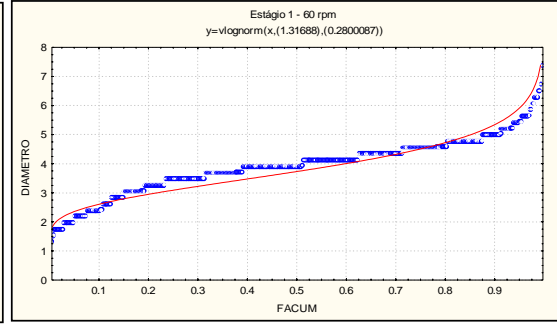


Final loss: 561,854 **R =** 0,996
Variance explained: 99,16%

	MI	SIGMA
Estimate	1,265	0,364
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	446,743	124,734
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,028
SIGMA	-0,028	1,000

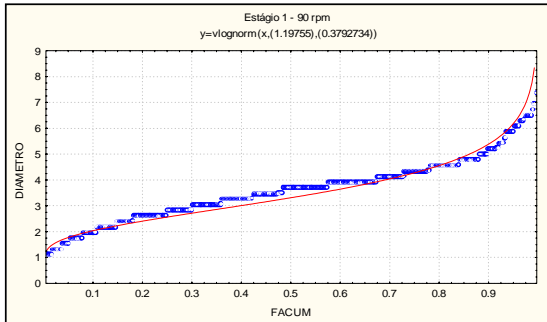


Final loss: 1078,826 **R =** 0,955
Variance explained: 91,30%

	MI	SIGMA
Estimate	1,317	0,280
Std.Err.	0,004	0,004
t(398)	345,008	75,411
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,028
SIGMA	-0,028	1,000

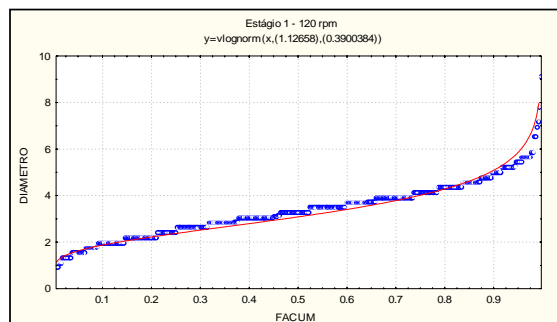


Final loss: 1102,754 **R =** 0,969
Variance explained: 93,92%

	MI	SIGMA
Estimate	1,198	0,379
Std.Err.	0,004	0,004
t(398)	311,009	101,976
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,037
SIGMA	-0,037	1,000



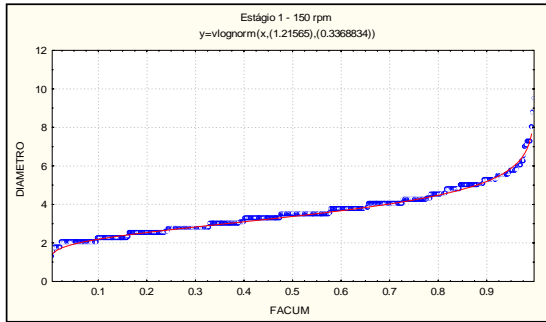
Final loss: 742,780 **R =** 0,981
Variance explained: 96,24%

	MI	SIGMA
Estimate	1,127	0,390
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	351,092	124,759
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,032
SIGMA	-0,032	1,000

Figura A.18: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.

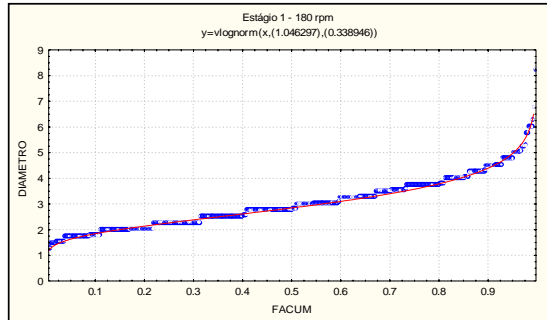


Final loss: 157,174 **R =** 0,996
Variance explained: 99,14%

	MI	SIGMA
Estimate	1,216	0,337
Std.Err.	0,001	0,002
t(398)	834,599	209,225
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,028
SIGMA	-0,028	1,000

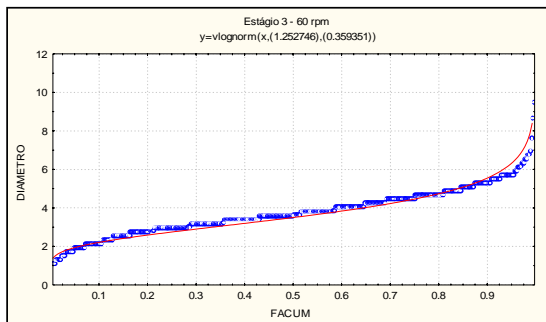


Final loss: 167,425 **R =** 0,995
Variance explained: 99,06%

	MI	SIGMA
Estimate	1,046	0,339
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	689,388	204,414
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,029
SIGMA	-0,029	1,000

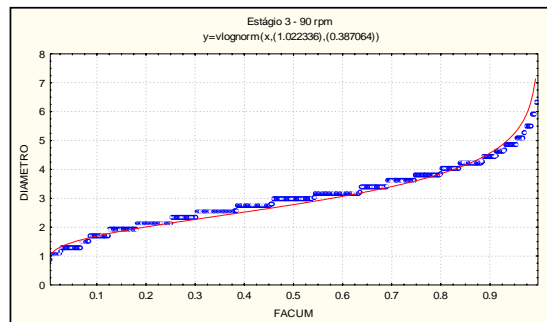


Final loss: 871,292 **R =** 0,980
Variance explained: 95,95%

	MI	SIGMA
Estimate	1,253	0,359
Std.Err.	0,004	0,003
t(398)	353,464	106,605
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,024
SIGMA	-0,024	1,000



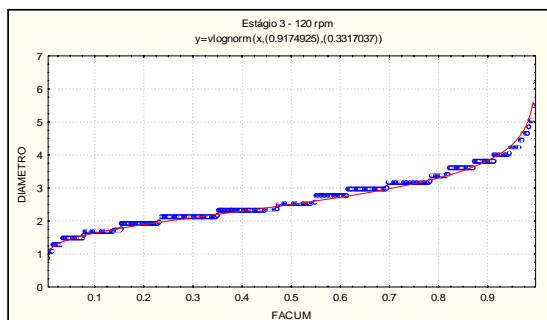
Final loss: 730,830 **R =** 0,977
Variance explained: 95,47%

	MI	SIGMA
Estimate	1,022	0,387
Std.Err.	0,003	0,003
t(398)	331,808	125,154
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,046
SIGMA	-0,046	1,000

Figura A.19: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.

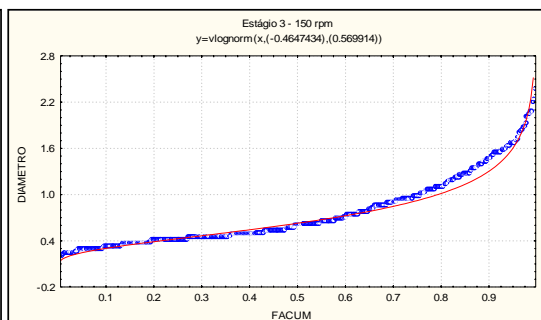


Final loss: 206,329 **R =** 0,993
Variance explained: 98,64%

	MI	SIGMA
Estimate	0,917	0,332
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	543,611	187,742
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,031
SIGMA	-0,031	1,000

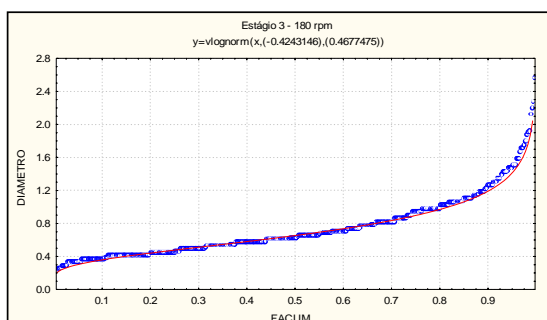


Final loss: 1110,833 **R =** 0,983
Variance explained: 96,67%

	MI	SIGMA
Estimate	-0,465	0,570
Std.Err.	0,004	0,005
t(398)	-108,033	126,513
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,038
SIGMA	-0,038	1,000

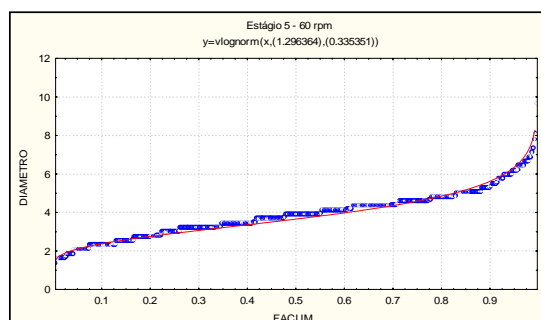


Final loss: 349,576 **R =** 0,995
Variance explained: 99,07%

	MI	SIGMA
Estimate	-0,424	0,468
Std.Err.	0,002	0,003
t(398)	-175,161	182,553
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,042
SIGMA	-0,042	1,000



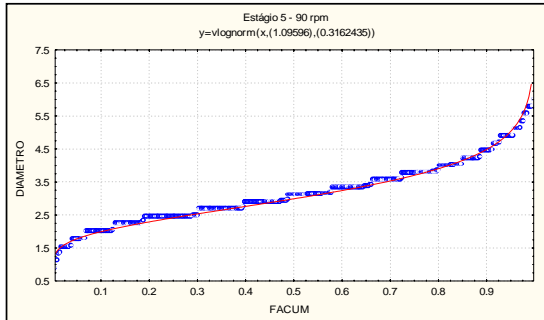
Final loss: 353,701 **R =** 0,989
Variance explained: 97,75%

	MI	SIGMA
Estimate	1,296	0,335
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	606,143	149,127
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,033
SIGMA	-0,033	1,000

Figura A.20: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.

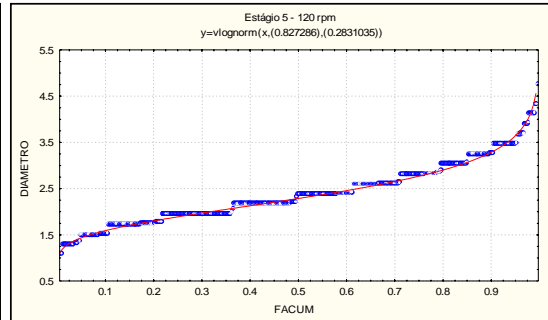


Final loss: 301,000 R = 0,991
 Variance explained: 98,23%

	MI	SIGMA
Estimate	1,096	0,316
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	549,462	151,320
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,034
SIGMA	-0,034	1,000

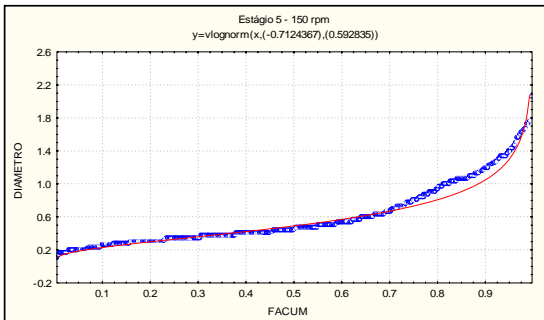


Final loss: 137,398 R = 0,994
 Variance explained: 98,81%

	MI	SIGMA
Estimate	0,827	0,283
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	599,324	191,773
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,028
SIGMA	-0,028	1,000

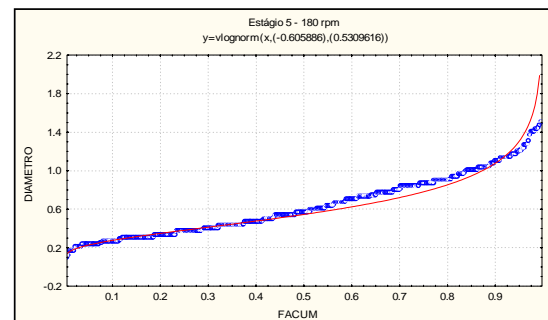


Final loss: 1246,904 R = 0,979
 Variance explained: 95,91%

	MI	SIGMA
Estimate	-0,712	0,593
Std.Err.	0,005	0,005
t(398)	-151,941	124,316
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,047
SIGMA	-0,047	1,000



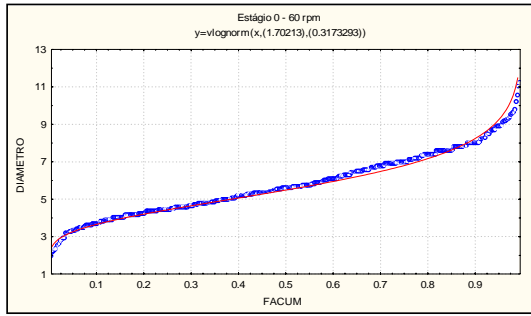
Final loss: 1191,495 R = 0,960
 Variance explained: 92,07%

	MI	SIGMA
Estimate	-0,606	0,531
Std.Err.	0,004	0,004
t(398)	-139,286	133,789
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,003
SIGMA	-0,003	1,000

Figura A.21: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa igual a 1.240mL/min e contínua igual a 2.000 mL/min.

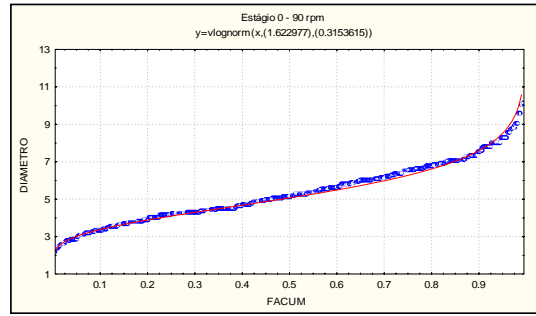


Final loss: 207,728 **R=**.99120
Variance explained: 98,25%

	MI	SIGMA
Estimate	1,702	0,317
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	1007,223	179,441
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,014
SIGMA	-0,014	1,000

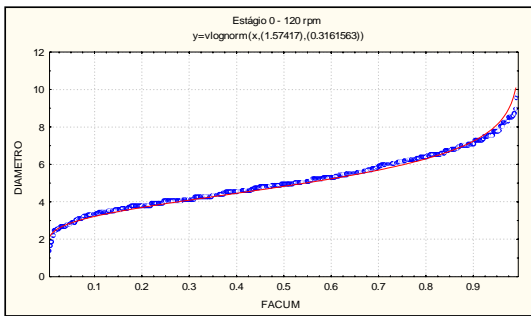


Final loss: 105,107 **R=**.99373
Variance explained: 98,75%

	MI	SIGMA
Estimate	1,623	0,315
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	1356,995	250,915
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,010
SIGMA	-0,010	1,000

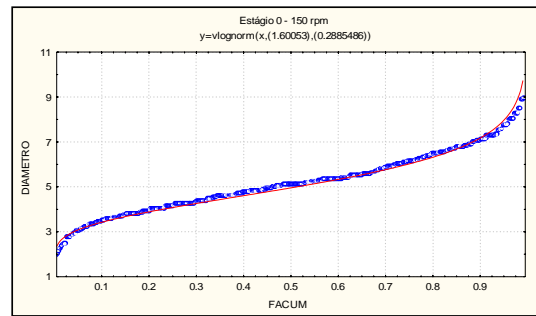


Final loss: 322,637 **R=**.99141
Variance explained: 98,29%

	MI	SIGMA
Estimate	1,574	0,316
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	755,774	147,253
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,016
SIGMA	-0,016	1,000



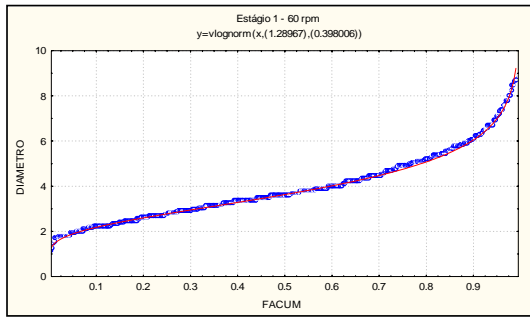
Final loss: 201,719 **R=**.99157
Variance explained: 98,32%

	MI	SIGMA
Estimate	1,601	0,289
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	969,624	170,807
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,010
SIGMA	-0,010	1,000

Figura A.22: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.

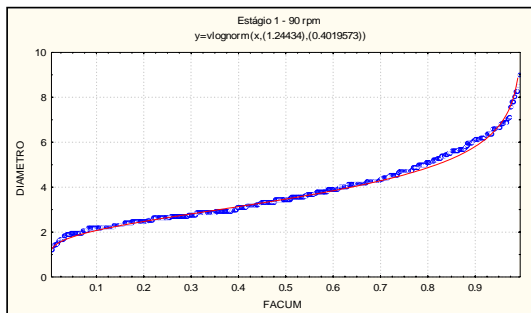


Final loss: 80,619 **R=.**99754
Variance explained: 99,51%

	MI	SIGMA
Estimate	1,290	0,398
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	1265,482	361,133
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,014
SIGMA	-0,014	1,000

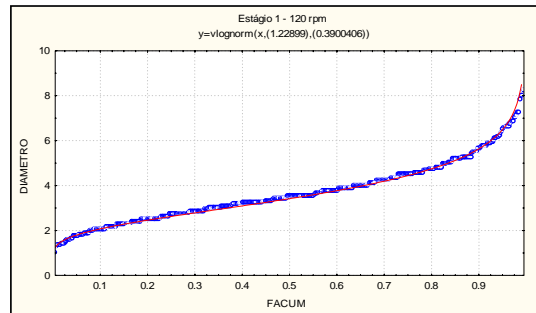


Final loss: 145,480 **R=.**99578
Variance explained: 99,16%

	MI	SIGMA
Estimate	1,244	0,402
Std.Err.	0,001	0,002
t(398)	853,009	256,170
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,011
SIGMA	-0,011	1,000



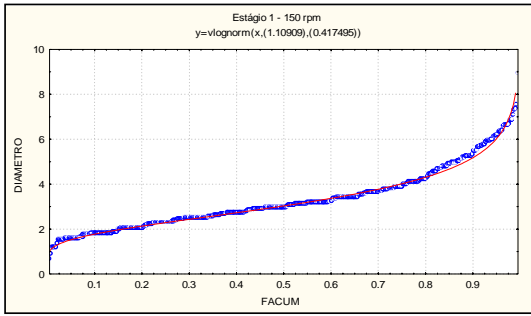
Final loss: 123,669 **R=.**99587
Variance explained: 99,18%

	MI	SIGMA
Estimate	1,229	0,390
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	934,001	287,265
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,011
SIGMA	-0,011	1,000

Figura A.23: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.

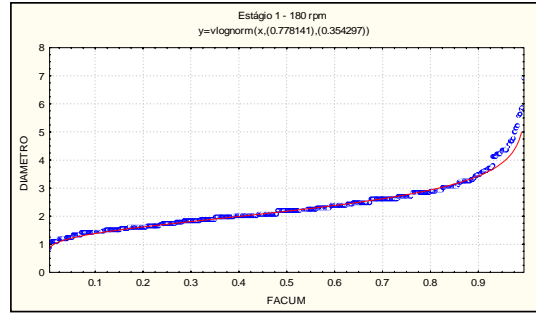


Final loss: 232,590 **R=**.99561
Variance explained: 99,12%

	MI	SIGMA
Estimate	1,109	0,417
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	637,211	221,573
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,019
SIGMA	-0,019	1,000

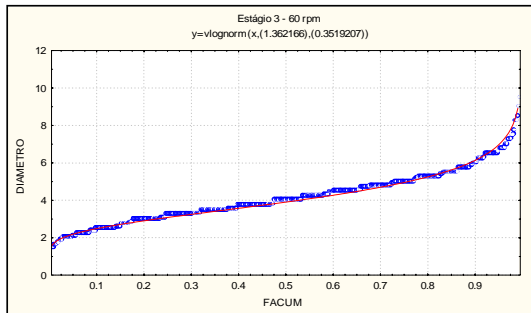


Final loss: 222,111 **R=**.98559
Variance explained: 97,14%

	MI	SIGMA
Estimate	0,778	0,354
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	444,045	180,744
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,009
SIGMA	-0,009	1,000

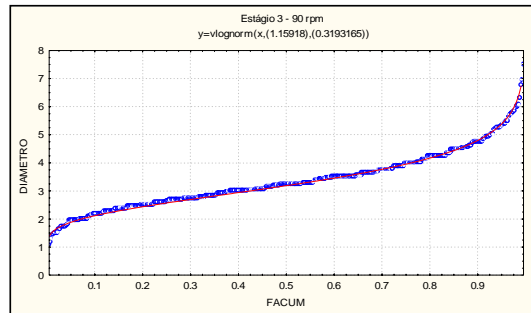


Final loss: 188,333 **R=**.99445
Variance explained: 98,89%

	MI	SIGMA
Estimate	1,362	0,352
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	882,838	225,214
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,007
SIGMA	-0,007	1,000



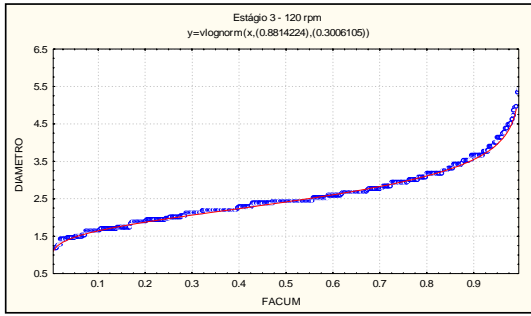
Final loss: 120,985 **R=**.99797
Variance explained: 99,60%

	MI	SIGMA
Estimate	1,159	0,319
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	955,383	246,506
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,017
SIGMA	-0,017	1,000

Figura A.24.: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.

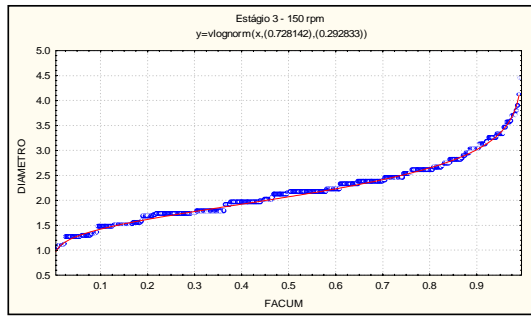


Final loss: 61,767 **R=.**99814
Variance explained: 99,63%

	MI	SIGMA
Estimate	0,881	0,301
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	1028,140	330,094
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,005
SIGMA	-0,005	1,000

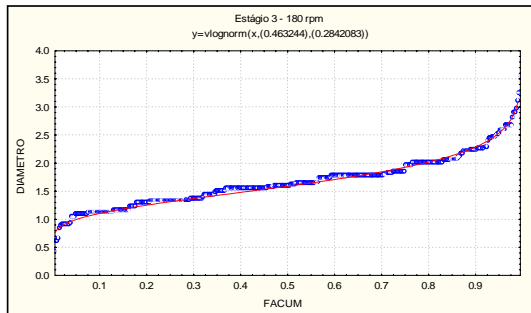


Final loss: 83,543 **R=.**99750
Variance explained: 99,50%

	MI	SIGMA
Estimate	0,728	0,293
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	669,231	257,406
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,004
SIGMA	-0,004	1,000

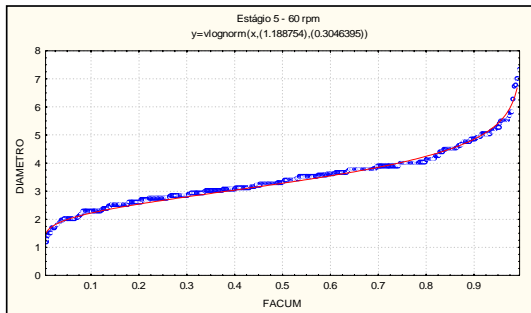


Final loss: 341,763 **R=.**99348
Variance explained: 98,70%

	MI	SIGMA
Estimate	0,463	0,284
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	206,366	123,492
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,018
SIGMA	-0,018	1,000



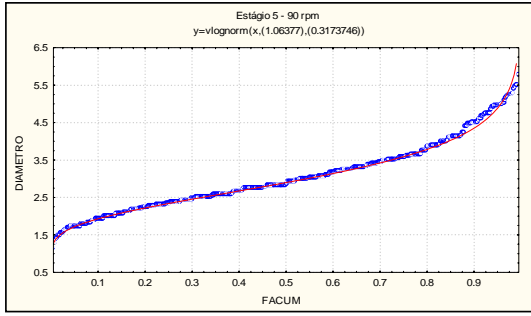
Final loss: 210,637 **R=.**99545
Variance explained: 99,09%

	MI	SIGMA
Estimate	1,189	0,305
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	692,075	168,014
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,017
SIGMA	-0,017	1,000

Figura A.25: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.

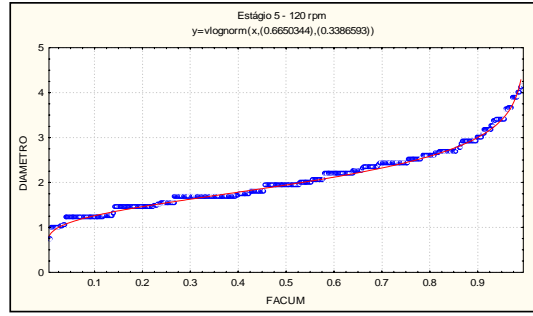


Final loss: 61,025 **R=**.99538
Variance explained: 99,08%

	MI	SIGMA
Estimate	1,064	0,317
Std.Err.	0,001	0,001
t(398)	1142,014	321,991
p-level	0,000	0,000

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,012
SIGMA	-0,012	1,000

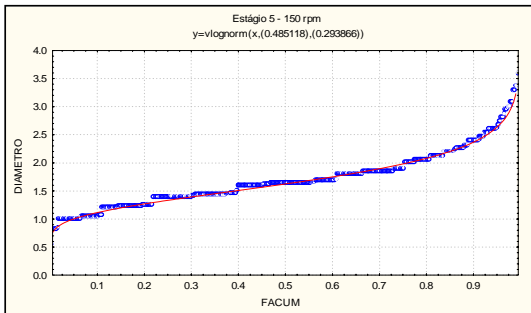


Final loss: 180,113 **R=**.99581
Variance explained: 99,16%

	MI	SIGMA
Estimate	0,665	0,339
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	414,073	201,131
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,011
SIGMA	-0,011	1,000

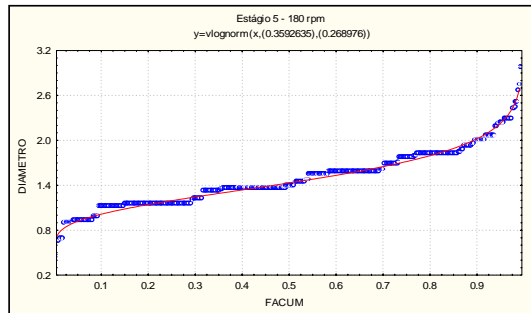


Final loss: 164,189 **R=**.99569
Variance explained: 99,14%

	MI	SIGMA
Estimate	0,485	0,294
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	317,919	181,118
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,010
SIGMA	-0,010	1,000



Final loss: 303,644 **R=**.99168
Variance explained: 98,34%

	MI	SIGMA
Estimate	0,359	0,269
Std.Err.	0,002	0,002
t(398)	178,603	128,241
p-level	0	0

Correlation Matrix of Parameter Estimates

	MI	SIGMA
MI	1,000	-0,015
SIGMA	-0,015	1,000

Figura A.26: Aproximação da distribuição de tamanho de gotas pela função log-normal para as vazões de fase dispersa e contínua igual a 1.240 mL/min.