Revista de acesso livre no site www.dema.ufcg.edu.br/revista



Revista Eletrônica de Materiais e Processos, v.6.1 (2011) 48-58 ISSN 1809-8797



Transporte de calor em regime permanente em um reator cilíndrico circular de leito fixo: um estudo experimental

L. G. Oliveira¹, W. C. P. B. de Lima², A. G. B. de Lima^{2*}

¹Unidade Acadêmica de Engenharia Química – Universidade Federal de Campina Grande

Campus I, Rua Aprígio Veloso, 882, Bodocongó, CEP 58429-900, Campina Grande – Paraíb.

²Unidade Acadêmica de Engenharia Mecânica – Universidade Federal de Campina Grande

Campus I, Rua Aprígio Veloso, 882, Bodocongó, CEP 58429-900, Campina Grande - Paraíba

(Recebido em 03/03/2010; revisado em 11/04/2011; aceito em 16/04/2011)

(Todas as informações contidas neste artigo são de responsabilidade dos autores)

Resumo:

O objetivo deste trabalho é apresentar medidas pontuais (axiais e radiais) de temperatura num reator de leito fixo de 5,7 cm de diâmetro interno, compactado com partículas cilíndricas de óxido de zinco (catalisador industrial) com 3,0 mm de diâmetro médio. O reator é percolado axialmente (de baixo para cima) por uma corrente de ar quente com número de Reynolds entre 105 e 185. A temperatura do ar na entrada do reator é mantida constante e uniforme em 70°C e a parede do leito mantida a 22,5°C por água de refrigeração, que circulava por uma camisa cilíndrica que envolvia o reator. As medidas de temperatura foram realizadas em quatro posições radiais (0,0; 0,855; 1,710; 2,565 cm) ao longo do raio do tubo e em dez posições axiais do leito compactado (1,0; 2,0; 3,0; 4,0; 5,0; 6,0; 7,0; 8,0; 9,0; 10,0 cm). Os dados de temperatura coletados foram tratados estatisticamente. Foi proposto um modelo matemático para descrever a temperatura do sistema fluido-partícula ao longo da posição radial que se ajusta muito bem aos dados experimentais. Verificou-se que ocorreram elevados gradientes de temperatura em ambas as direções axial e radial, até mesmo próximo ao centro do reator, e que estes gradientes de temperatura sofrem forte influência da velocidade mássica do fluido percolante.

Palavras-chave: Temperatura; leito fixo; termopares; posição radial; dados experimentais.

Abstract:

The objective of this work is to present local measures (axial and radial) of temperature in a fixed bed reactor of 5.7 cm internal diameter, compacted with cylindrical particles of zinc oxide (industrial catalyst) with 3.0 mm of average diameter. By the reactor (down to up) flows hot air with Reynolds number from 105 to 185. The air temperature in the entrance of the reactor is maintained constant and uniform at 70°C and the wall of the bed maintained to 22.5°C by water of refrigeration, that flow by a cylindrical concentric tube that involves the reactor. Thermocouples were accomplished within the bed in four radial positions (0.0; 0.855; 1.710; 2.565 cm) and ten axial positions (1.0; 2.0; 3.0; 4.0; 5.0; 6.0; 7.0; 8.0; 9.0; 10.0 cm) along the tube The temperature data collected were treated by statistical method. A mathematical model was proposed to describe the temperature of the fluid-particle system along the radial and axial position that agrees very well to the experimental data. It was verified that happened high temperature gradients in both axial and radial directions, even close to the center of the reactor, and that these temperature gradients has strong influence of the mass velocity of the fluid.

Keywords: Temperature; fixed bed; thermocouples; radial position; experimental data.

1. Introdução

Estudos sobre escoamento e transporte de calor em meios porosos vêm sendo realizados desde o século passado, visando caracterizar o comportamento térmico e fluidodinâmico do escoamento. A fluidodinâmica do escoamento, e o comportamento do transporte de calor num leito compactado são influenciados principalmente pela técnica empregada no empacotamento das partículas na

*Email: gilson@dem.ufcg.edu.br (A. G. B. de Lima)

coluna de recheio e pela forma de medida dos dados experimentais [1]. Esse tipo de estudo tem atraído a atenção da comunidade científica (matemáticos, físicos, engenheiros, etc.) por várias décadas. Esse interesse advém de estarem os meios porosos presentes tanto na natureza (solos e plantas, por exemplo) como na maioria das operações unitárias empregadas na indústria, como filtração, destilação, adsorção em colunas recheadas, secagem e reações catalíticas em leitos fixos e fluidizados [2].

O estudo da transferência de calor em leito fixo pode ser realizado tanto em regime transiente quanto em regime permanente, porém em cada caso, o requisito considerado de importância capital, que deve sempre ser obedecido, é a obtenção da forma mais fidedigna possível dos perfis de temperatura no interior do leito. Embora, a rigor, as técnicas utilizadas para a obtenção dos perfis de temperatura independam do regime em questão, no caso do regime transiente as coisas se complicam um pouco mais, pois existe a necessidade de uma aquisição freqüente e contínua dos perfis de temperatura ao longo do tempo, que podem ser influenciadas pela inércia térmica do tipo de sensor usado no sistema de aquisição de dados.

A técnica de medida e o tipo de dispositivo de coleta de dados de transferência de calor em leito fixo têm recebido a atenção de muitos pesquisadores. Dentre as técnicas mais largamente utilizadas destacam-se: (a) - fixação de um conjunto de termopares acima leito [3-8], sendo o suporte geralmente confeccionado na forma de cruz; (b) - inserção radial de termopares no leito [9,10]; (c) - uso de termopares anelares dispostos no interior do leito [11,12] ou ainda posicionado acima do leito [13].

Diversos pesquisadores [4-7,10,14] observaram que existem flutuações significativas, mas aparentemente aleatórias, de temperatura em leitos fixos. Tais flutuações são devido às não-uniformidades locais de empacotamento, inerentes ao próprio leito, e parecem ser mais pronunciadas quanto menor for a relação diâmetro do leito por diâmetro da partícula. No entanto, no projeto de reatores catalíticos gássólido e trocadores de calor de leito compactado, os modelos normalmente utilizados, assumem que o perfil de temperatura é do tipo pistonado na entrada do reator e a distribuição de velocidade é uniforme ao longo ao diâmetro do leito [15-17]. Dessa forma, torna-se absolutamente indispensável filtrar essas flutuações de temperatura, através de um tratamento estatístico dos dados, caso contrário, os parâmetros térmicos (condutividade térmica efetiva e coeficiente de transferência de calor parede-leito) estimados não terão significância estatística nenhuma, uma vez que possuirão elevados intervalos de incerteza.

De acordo com Schouten e Westerterp, Fedoseev e Shanin, Wijngaarden e Westerterp, Borkink et al. Legawiec e Ziolkowski e Prasad e Das (2002) [7,16,18-21], o caráter estatístico de um leito compactado deve ser incorporado na modelagem do reator, uma vez que realizar uma aproximação do comportamento do leito inteiro usando parâmetros efetivos fixos não parece ser uma forma correta para descrever o sistema adequadamente. Wijngaarden e Westerterp [10], atribuem parte da divergência nas medidas de temperatura em leitos compactados ao fato de que o leito compactado é heterogêneo na escala do "pellet", isto é, se um perfil radial de temperatura é acompanhado numa única posição axial, a porosidade local é uma variável Booleana. A outra parte, surge do fato que a corrente de gás dentro dos espaços vazios são dirigidas no espaço de uma maneira estatística. Como resultado, os perfis de temperatura medidos também exibem uma certa quantidade de espalhamento.

Recentemente, devido à elevada complexidade do fenômeno de transferência de calor em reator de leito poroso fixo e sua importância industrial, diversos trabalhos teóricos e experimentais tem sido conduzidos [22-27]. Neste sentido, este trabalho tem como objetivo estudar experimentalmente o comportamento da temperatura do sistema fluido-partícula no interior de um leito cilíndrico recheado de partículas (reator cilíndrico de leito fixo).

2. Materiais e Métodos

2.1 Equipamentos e Procedimentos experimentais

A Figura 1 apresenta um diagrama simplificado do equipamento e periféricos utilizados para coletar medidas de temperatura (radial, axial e angular), num reator cilíndrico de leito fixo, com o objetivo de estudar e analisar o transporte de calor no reator.



1. Compressor; 2. Manômetros; 3. Medidor de vazão; 4. Chave seletora para termopares; 5. Filtro; 6. Conjunto de refrigeração do desumificador; 7. Desumificador; 8. Trocador de calor; 9. Psicrômetro; 10. Conjunto de refrigeração da célula de medidas; 11. Célula de medidas; 12. Coluna de sílica gel.

Figura 1: Diagrama esquemático do equipamento e periféricos

O equipamento foi projetado e montado por Thoméo [6], para operar em regime estável na faixa de número de Reynolds de partícula de 40 a 240, sendo o número de Reynolds de partícula definido como Re = Gdp/ μ ,, onde G= $\epsilon\rho$ u é a vazão mássica de fluido, dp o diâmetro da partícula e μ a viscosidade do fluido. Nesta figura, o fluido percolante, que é o ar atmosférico, é fornecido ao sistema por um compressor e passa por um filtro regulador de pressão onde são retiradas gotículas de água e óleo. Em seguida, atravessa um medidor de vazão de duplo orifício, que está acoplado a um sistema de manômetros diferenciais de água e mercúrio, sendo posteriormente seco no desumidificador. Posteriormente, passa através de uma coluna de sílica-gel, visando reduzir a umidade. O rendimento desta unidade era fornecido pelo psicrômetro. Em seqüência, o ar é aquecido no trocador termelétrico, cuja diferença de potencial é controlada por um sistema de controle digital, que mantém a temperatura do ar na entrada da seção térmica da célula de medidas num valor desejado e pré-estabelecido no experimento.

A célula de medidas térmicas (Figura 2), formada basicamente por uma seção de entrada, uma seção térmica e um conjunto de sustentação de termopares dispostos axialmente, é resfriada na parede por água refrigerada, proveniente do conjunto de refrigeração. As temperaturas no interior do leito são lidas por termopares instalados na célula de medidas, e ligados a uma chave seletora, acoplada a um milivoltímetro digital.



SE. Seção de entrada (246 mm); ST. Seção térmica (100 mm); SST. Seção de suporte dos termopares

Figura 2: Célula de medidas térmicas

A seção de entrada é constituída por um tubo de latão com 246,0 mm de comprimento, 57,0 mm de diâmetro, e 3,0 mm de espessura de parede, sendo a mesma empacotada do mesmo modo e com partículas de mesma classificação granulométrica que aquelas usadas na seção térmica. A flange inferior desta seção está firmemente unida à flange de um cabeçote cônico-cilíndrico, que tem como função primordial, alimentar e distribuir uniformemente o fluido percolante do leito compactado desta seção. Entre tais flanges, foram colocadas duas juntas de borracha, entre as quais foi inserida uma tela de sustentação do meio poroso. A principal finalidade do uso da seção de entrada é favorecer o desenvolvimento do perfil de velocidade do fluido percolante, e eliminar ou pelo menos minimizar os efeitos de variação da porosidade axial sobre a hidrodinâmica do sistema, sem a qual, pronunciados efeitos manifestar-se-iam na região próxima à entrada da seção térmica.

A seção térmica, também de latão, é formada basicamente por um módulo composto por dois cilindros concêntricos de 57,0 mm e 95,0 mm de diâmetro interno e externo, respectivamente, com espessura de parede de 3,0 mm e 100,0 mm de comprimento. O espaço anular entre os tubos é aproveitado como camisa por onde circula água de refrigeração, cujas temperaturas na entrada e saída foram medidas para verificar a uniformidade nos seus valores.

Usando este mesmo equipamento e operando sob condições semelhantes, mediante termopares instalados ao longo da parede do leito poroso, Thoméo [6] verificou que as medidas de temperatura da água de resfriamento na entrada e saída da camisa de refrigeração tinham diferença desprezível, o que torna absolutamente válida a aproximação, de que a temperatura da água de refrigeração é essencialmente constante.

A seção de entrada, a seção térmica, assim como a seção de suporte dos termopares, são todas separadas por juntas de borracha exatamente iguais àquelas usadas na separação das seções de entrada e o cabeçote cônico-cilíndrico.

Um termopar estrategicamente inserido na posição radial central (r = 0 cm) e posição axial 1,0 cm da entrada da seção térmica garantiu, juntamente com o sistema de controle digital, constância da temperatura do fluido percolante em 70°C, temperatura esta admitida neste estudo como sendo a temperatura do ar na entrada da seção de medidas térmicas, (T₀).

Ambas as seções da célula de medidas são empacotadas com partículas de óxido de zinco de forma geométrica semelhante, com diâmetro médio de 3,0 mm, sendo a técnica de empacotamento análoga para as duas seções.

O conjunto suporte de termopares é composto por um módulo semelhante em características e dimensões ao da seção térmica, no qual foi posicionado no centro um tubo metálico, em cujo interior, foram afixadas duas peças em PVC, visando diminuir o problema da condução tipo aleta ao longo dos termopares, e que serviam de sustentação para quatro termopares localizados nas posições radiais adimensionais ($r^* = r/R$) 0,0; 0,3; 0,6; e 0,9, com a finalidade de obter medidas do perfil radial de temperaturas na saída do leito. O tubo metálico no qual estavam inseridas as peças em PVC que seguravam os termopares, possuía mobilidade tanto angular quanto axial, permitindo estudar as flutuações angulares de temperatura, assim como as distribuições radiais de temperaturas em várias profundidades de leito.

A célula de medidas térmicas é completamente isolada termicamente do ambiente, com isolante de lã mineral, com espessura de aproximadamente 40,0 mm, visando evitar perda de calor para o exterior. Todos os termopares usados neste estudo foram de ferro-constantan, com 3,0 mm de diâmetro e 150 mm de comprimento, sendo os mesmos devidamente calibrados em banho de água termostatizado contra um termômetro de precisão de 0,5°C.

Visando trabalhar numa região de razão de aspecto (D/dp = 20) onde as variações radiais de porosidade e velocidade pudessem ser consideradas desprezíveis, o leito poroso foi empacotado com partículas cilíndricas de óxido de zinco (catalisador industrial) com diâmetro médio de aproximadamente 3,0 mm, gerando uma porosidade média para o leito de $\varepsilon = 0,4$.

A técnica de empacotamento empregada neste trabalho seguiu a mesma metodologia utilizada e descrita por Zotin (1985), que se caracteriza basicamente no "derramamento" de uma quantidade prefixada de partículas, em etapas, de forma que todas as partículas da porção adicionadas sofram o mesmo processo de acomodação e mesma altura de queda. Após a adição de cada porção, foram realizadas algumas batidas na parede do tubo, visando se atingir uma acomodação aleatória das partículas do leito. Quando se observava que não mais havia variação na altura no interior do meio poroso, cessavam-se as batidas, e uma nova quantidade de partículas era acrescentada, e o procedimento repetido até se atingir a altura desejada no experimento.

Os dados experimentais de temperatura apresentados e discutidos neste trabalho foram obtidos no Laboratório de Sistemas Particulados e Transporte de Calor, do Departamento de Engenharia Química, da Universidade Federal de São Carlos - São Paulo.

O procedimento experimental adotado para a obtenção das medidas de temperatura na saída do leito poroso consistia basicamente do seguinte: Depois de estabelecidas as condições de operação do ensaio (vazão mássica superficial de fluido e altura do leito poroso), circulava-se água a 22,5°C (T_w) pela camisa de refrigeração e ligavam-se os equipamentos periféricos de aquecimento e controle da temperatura do fluido percolante, até que a mesma atingisse na entrada do leito o valor desejado (70°C). A monitoração e comprovação desta temperatura foram feitas por um termopar inserido imediatamente antes da entrada da seção térmica. Quando o ar atingia 70°C, o mesmo era admitido à célula de medidas. Então, a cada 15 minutos eram realizadas as leituras das temperaturas de todos os termopares, até que as mesmas fossem reproduzidas por três vezes consecutivas, indicando que o regime estacionário havia sido estabelecido, o que demandava um tempo médio de aproximadamente 2 horas. Estabelecido o regime permanente, o conjunto suporte dos termopares era deslocado angularmente de 30 em 30°, até perfazer doze posições angulares desejadas entre 0 e 330°.

Neste estudo foram utilizadas vazões superficiais de ar correspondentes aos de número de Reynolds de partícula de 105, 125, 145, 165 e 185, sendo esta estreita faixa fixada pelo excessivo desgaste mecânico das partículas de catalisador quando se utilizava número de Reynolds acima de 185. Para um dado número de Reynolds de partícula fixo, foram empregadas as seguintes alturas de leito poroso: 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90 e 100 mm.

Visando obter uma boa reprodutibilidade dos ensaios, a temperatura da água de refrigeração foi mantida fixa num valor desejado (22,5°C), através de um eficiente conjunto de refrigeração, que garantia a reprodutibilidade das condições de temperatura na entrada da seção de medidas térmicas.

2.2 Tratamento Estatístico dos Dados Experimentais

Como os dados experimentais da temperatura ao longo do raio foram obtidos em apenas quatro posições, a partir dos valores médios calculados conforme o procedimento mencionado acima, optou-se por obter uma equação de T em função da posição radial, através do ajuste não-linear de uma função parabólica a três termos e a três parâmetros, que é uma metodologia estatisticamente mais adequada, do que utilizar um número reduzido de dados. A forma da equação proposta no ajuste é dada como segue:

$$T(r) = b_5 + b_6 r + b_7 r^2$$
 (1)

A estimativa não-linear dos parâmetros da Equação 1 foi realizada usando-se o Software Statistica®. O método

numérico de ajuste escolhido foi o Rosembroock e Quasi-Newton, para todos os testes, adotando-se como valor para o critério de parada 0,001. A forma da curva proposta é baseada nos trabalhos de Thoméo [6], Borkink e Westerterp [28] e Oliveira e Lima [29] que afirmam ser o perfil de temperatura ao longo do reator de leito fixo, parabólico em relação à posição radial.

Desde que, obter estimativas de parâmetros num campo bi-dimensional também não é estatisticamente conveniente, optou-se por se trabalhar com a temperatura média radial, através da integração das equações obtidas no ajuste nãolinear (Equação 1), pela seguinte expressão:

$$\overline{T}_{r}(r) = \frac{\int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{R} rT(r)drd\theta}{\int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{R} rdrd\theta}$$
(2)

A integração expressa pela Equação 2 foi realizada analiticamente para todas as curvas usando o Software Mathematica®. Obteve-se dessa forma os valores das médias radiais para todas as alturas de leito e números de Reynolds utilizados. Desta maneira, dispunha-se nesse ponto de perfis de temperatura radiais médios em função da posição z.

Procedimento semelhante ao utilizado na Equação 1 foi adotado nestes perfis, visando obter agora, equações representativas da temperatura radial média em função da altura do leito. Neste caso, baseando-se nos trabalhos de Lima [30] e Nascimento [31], propõe-se nesta etapa, uma equação exponencial a três termos e a seis parâmetros. A equação proposta nesta etapa tem a seguinte forma matemática:

$$T_{r}(z) = b_{8} \exp(b_{9}z) + b_{10} \exp(b_{11}z) + b_{12} \exp(b_{13}z)$$
(3)

Novamente, o ajuste não-linear foi realizado usando o Software Statistica® com o método numérico de Rosembroock e Quasi-Newton, com um critério de convergência de 0,001 para todos os casos

3. Resultados e Discussão

3.1. Medidas de temperatura e Reprodutibilidade do empacotamento

Os dados de temperatura coletados na célula de medidas (Figura 2) exibem variações tanto na direção radial quanto na angular que são nitidamente percebidas quando experimentos replicados são executados. Porém, esta variabilidade é geralmente desconsiderada pela maioria dos modelos de transporte de calor em leito fixo. Com o objetivo de verificar a qualidade dos dados de temperatura coletados, foram executados 8 réplicas do experimento com número de

Reynolds de partícula Re = 145, onde as temperatura foram medidas numa altura z = 1,0 cm do leito. Uma análise de variância nos dados é mostrada na Tabela 1. Nesta tabela, são apresentados as medidas de temperatura e seus respectivos desvios, em diferentes posições radiais do leito. Esta análise foi realizada visando-se obter a estimativa da variância experimental das medidas de temperatura e análise do grau de reprodutibilidade do empacotamento do leito. A temperatura em cada réplica numa dada posição radial, representa a média aritmética das medidas de temperatura realizadas em 12 posições angulares defasadas entre si de 30°, sendo este procedimento adotado, visando "filtrar" os efeitos de variabilidade nos dados, devido a flutuações angulares de porosidade sobre o valor da medida.

Tabela 1: Temperatura em experimentos réplicas, valores médios em cada réplica e entre elas, e seus desvios, para z = 1.0 cm e Re = 145

NTO J.	Temperatura na réplica \pm desvio (°C)					
n-ua -		r/I	2			
Teplica -	0,0	0,3	0,6	0,9		
1	$68,5\pm0,8$	$65{,}4\pm1{,}7$	$59{,}2\pm3{,}1$	$44,8\pm4,5$		
2	$67,0 \pm 1,0$	$65{,}0\pm1{,}2$	$58,2\pm3,1$	$43,\!4\pm2,\!7$		
3	$68,5\pm0,6$	$66,9 \pm 1,3$	$60,2\pm3,5$	$44,6 \pm 3,7$		
4	$70,4 \pm 1,0$	$67,0\pm0,8$	$60,2\pm2,3$	$45,6 \pm 1,8$		
5	$71,5 \pm 0,4$	$67,6\pm1,5$	61,0 ± 2,3	$47,\!9\pm2,\!0$		
6	$68,9\pm0,6$	$68,5 \pm 1,0$	$60,2 \pm 3,1$	$43,8 \pm 3,7$		
7	$70,8\pm0,4$	$68,0\pm1,5$	60,8 ± 3,9	$45,6 \pm 4,3$		
8	$68,9\pm0,6$	$68,1 \pm 1,3$	$60,9 \pm 3,1$	$45,8 \pm 3,0$		
Média ^a	$69,3\pm0,7$	$67,1\pm1,3$	$60,1 \pm 3,1$	$45,2\pm3,2$		

^a Média ± desvio

As variações de porosidade, decorrentes de eventuais diferenças no processo de empacotamento, constituem as maiores fontes de dispersão nos dados [12] Observa-se, após análise dos dados, que em todas as réplicas o desvio em relação à média de temperatura vai aumentando com a posição radial em direção à parede, comportamento este atribuído às possíveis oscilações da porosidade nesta mesma direção, podendo provocar uma distribuição desigual de fluido e conseqüentemente uma dispersão mais acentuada nos dados de temperatura [32-34], visto que nesta região do leito, os caminhos preferenciais de fluido são predominantes, em razão da baixa resistência ao escoamento. Portanto, essa maior variabilidade nas medidas de temperatura na região próxima à parede se traduz em graves conseqüências aos valores estimados dos parâmetros [35].

Verifica-se ainda na Tabela 1 que, em cada réplica, os desvios em relação à média de temperatura numa dada posição radial, (exceto no centro do leito) mantêm a mesma ordem do desvio observado entre as réplicas, evidenciando claramente que o experimento pode ser considerado reprodutível, pois a variabilidade dos dados verificada angularmente é sempre mantida num mesmo nível de magnitude. Uma vez que o termopar localizado no centro do leito não sofre mudança na sua posição angular, o desvio de cada réplica representa as flutuações nos valores das variáveis de entrada, incorporando dessa forma a dispersão dos diferentes empacotamentos.

Thoméo [6], trabalhando sob diferentes condições operacionais, realizou estudo semelhante em seus dados e chegou a conclusões semelhantes, todavia alertava que experimentos futuros evitassem o uso de leitos de baixas alturas e alturas sucessivas próximas, para que os gradientes de temperaturas medidos fossem elevados, mesmo sabendo que dessa maneira, se perderia informação sobre os efeitos de entrada.

A Figura 3 apresenta uma análise de resíduos da média de temperatura entre réplicas e a posição radial adimensional, para número de Reynolds Re = 145 e posição axial do leito z = 1,0 cm. Observa-se uma distribuição de resíduos aleatória, independente e identicamente distribuída; justificando estatisticamente o uso do método dos mínimos quadrados ordinários para estimativa de parâmetros de qualquer modelo matemático.



Figura 3: Distribuição de resíduos de temperatura em função da posição radial, representação do valor médio de cada réplica e o valor médio entre as réplicas

A realização de réplicas mesmo representando um esforço experimental adicional, torna possível uma análise estatística refinada da variância dos dados e estimativa do erro puro associado às medidas. Sua importância está no teste da adequabilidade estatística do modelo, assim como refletir o comportamento dos resultados de temperatura obtidos nas demais condições experimentais. O procedimento descrito acima foi aplicado às demais alturas do reator em toda faixa de números de Reynolds trabalhadas neste estudo. Observa-se claramente na Figura 3, que a distribuição dos resíduos de temperatura apresenta um comportamento nítido de uma curva de Gauss em relação ao eixo y.

3.2. Estimação Não-linear de Parâmetros

A Figura 4 apresenta uma comparação entre as medidas de temperaturas radiais, e o ajuste da Equação 1 a esses dados experimentais em várias posições axiais no reator de leito fixo, para o número de Reynolds de partícula igual a 105.

Pode-se observar na figura que em todas as alturas de leito, os perfis radiais de temperatura medidos apresentam um comportamento essencialmente parabólico estando, portanto de pleno acordo com a equação proposta e com a literatura [6,28].



Figura 4: Perfis radiais de temperatura em várias alturas de leito, para Re = 105

Para posições axiais situadas próximas da entrada (baixas alturas de leito), nota-se a ocorrência dos maiores gradientes

radiais de temperatura, que vão sendo gradualmente diminuídos à medida que se trabalha com leitos mais profundos, fato este atribuído provavelmente ao amortecimento do perfil axial de porosidade, com o aumento da altura do leito [33].

Observa-se ainda da Figura 4 que os gradientes de temperatura são fortemente dependentes de ambas as posições axial e radial, todavia os gradientes mais elevados estão concentrados na posição radial, associado talvez as maiores flutuações que sofre o perfil de porosidade nessa mesma direção. À medida que se afasta da região de entrada do reator, é nítida a tendência do perfil de temperatura na posição axial tornar-se cada vez menos pronunciado, chegando a existir uma superposição dos perfis para posições radiais mais próximas à parede do reator e posições axiais mais próximas à saída do reator. Esta constatação, segundo Dixon [4], pode estar relacionada de certa forma ao fato de que em maiores alturas (leitos mais profundos) a fuga de calor por condução (tipo aleta) pela parede do reator é menos intensa do que próximo à região de entrada, onde prevalecem os maiores gradientes de temperatura, em qualquer posição radial. A Tabela 2 apresenta os valores das constantes da Equação 1 e os respectivos valores do coeficiente de correlação, obtidos a partir do ajuste aos dados experimentais, para cada posição longitudinal do reator.

Outra característica extremamente perceptível, de acordo com a Figura 4 e Tabela 2 é que o ajuste aos dados de um modelo parabólico, só não pode ser considerado de excelente qualidade na região próxima à entrada do leito (z = 1,0 cm), visto que o coeficiente de correlação para essa altura de leito foi de 0,96469. Para as demais alturas o ajuste pode ser considerado de excelente qualidade, uma vez que os respectivos valores dos coeficientes de correlação estão situados no intervalo entre 0,99821 e 1,0000. A mesma tendência nos resultados da Tabela 2 aconteceu nos resultados apresentados nas Tabelas 3 a 6, para as demais velocidades mássicas de fluido, ou seja, para os demais números de Reynolds de partículas (125, 145, 165 e 185).

Tabela 2: Ajuste não-linear da Equação 1 aos dados experimentais, para Re=105

- (Parân	D ²		
z (cm)	b ₅	b ₆	b ₇	- к
1,0	59,75730	7,371026	-5,89752	0,96469
2,0	59,42379	2,923773	-4,52841	1,0000
3,0	57,53622	0,385246	-3,51154	0,99998
4,0	58,17334	-2,87953	-2,75164	0,99975
5,0	54,55386	-1,88865	-2,60842	0,99932
6,0	52,09551	1,573824	-3,51251	0,99883
7,0	51,25258	-0,24202	-2,73963	0,99821
8,0	52,40818	-4,67423	-1,45535	0,99989
9,0	50,35234	-2,93472	-1,80484	0,99970
10,0	47,45396	0,114225	-2,55807	0,99918

A elevada modificação da temperatura no sentido radial com a velocidade mássica evidencia que, para um reator de leito compactado gás-sólido, a condutividade térmica efetiva desempenha mais o papel de um coeficiente de transferência de calor do que uma verdadeira condutividade térmica de cada fase isoladamente, gás ou sólido conforme afirmativa de Bunnell [3].

Tabela 3: Ajuste não-linear da Equação 1 aos dados						
experimentais, para Re=125						
7 (am)	Parân	netros da Eq	uação 1	\mathbf{p}^2		
z (cm)	b ₅	b_6	b ₇	K		
1,0	63,40005	1,896105	-4,06122	0,99929		
2,0	60,05149	4,286083	-4,94232	0,99986		
3,0	60,28157	0,663431	-3,53186	0,99973		
4,0	59,29901	-1,71135	-3,12400	1,00000		
5,0	57,98843	-2,35621	-2,58558	0,99952		
6,0	54,36005	-0,82829	-2,63807	0,99998		
7,0	53,76501	-0,83550	-2,69022	0,99854		
8,0	54,13943	-3,52916	-2,03184	0,99979		
9,0	53,69764	-339491	-1,72165	0,99999		
10.0	49.32991	0.067353	-2.66275	0.99966		

Tabela 4: Ajuste não-linear da Equação 1 aos dados experimentais, para Re=145.

experimentals, para Re 145.					
= (am)	Parân	D ²			
z (cm)	b ₅	b ₆	b ₇	- К	
1,0	62,20249	2,143428	-3,89133	0,99862	
2,0	61,04795	4,253602	-4,82178	0,99954	
3,0	61,03314	-0,22698	-3,14440	0,99985	
4,0	60,29648	-2,13426	-2,88149	0,99996	
5,0	59,23230	-1,32013	-2,96246	1,00000	
6,0	55,24756	-0,31489	-2,87071	0,99999	
7,0	55,02303	-1,71887	-2,38622	0,99860	
8,0	55,79105	-3,49856	-1,97015	0,99996	
9,0	54,65366	-2,11782	-2,17479	0,99999	
10,0	50,86168	0,84790	-2,92687	0,99953	

A Figura 5 apresenta uma comparação entre os dados experimentais de temperaturas radiais, e os resultados do ajuste da Equação 1 a estes dados para um de leito fixo de altura z = 5 cm, quando se variou o número de Reynolds de partícula, visando avaliar a influência da vazão mássica superficial sobre os perfis radiais de temperatura no interior do reator.

Tabela 5: Ajuste não-linear da Equação 1 aos dados experimentais, para Re=165

7 (am)	Parân	\mathbf{D}^2		
z (cm)	b ₅	b ₆	b ₇	- К
1,0	62,67605	2,4683330	-3,94346	0,99765
2,0	59,73706	4,2554541	-4,58460	0,99986
3,0	61,41090	0,200959	-3,34979	0,99984
4,0	60,10255	-1,61366	-3,03400	0,99949
5,0	58,62810	-1,20763	-2,91283	0,99999
6,0	58,01518	-0,578331	-3,08009	0,99975
7,0	56,88304	-1,94759	-2,38213	0,99924
8,0	56,89777	-2,98302	-2,18183	0,99997
9,0	56,35894	-2,61118	-2,12615	0,99940
10,0	52,46528	1,614552	-3,33887	0,99964

Tabela 6: Ajuste não-linear da Equação 1 aos dados experimentais, para Re=185

T (am)	Parâm	D ²		
z (em)	b ₅	b ₆	b ₇	ĸ
1,0	63,47240	3,121131	-3,91886	0,99737
2,0	61,69894	3,719661	-4,48472	0,99968
3,0	60,72852	1,384344	-3,59621	0,99885
4,0	60,44425	-0,351988	-3,31050	0,99901
5,0	60,81133	-1,26355	-2,899002	0,99999
6,0	59,24934	0,212083	-3,55234	0,99994
7,0	57,59580	-1,56638	-2,56334	0,99979
8,0	57,67223	-2,25730	-2,30247	0,99991
9,0	56,83181	-2,54560	-2,19389	0,99975
10,0	53,79283	0,779886	-3,03434	0,99982

Observa-se da Figura 5 que o ajuste parabólico apresenta uma excelente concordância com os dados experimentais, para todos os números de Reynolds empregados. Percebe-se que, o aumento da vazão mássica superficial provoca uma maior taxa de transporte de calor na direção radial, visto que numa mesma posição axial, os gradientes de temperatura em duas posições radiais distintas são sempre maiores entre números de Reynolds consecutivos. Este fenômeno está provavelmente relacionado ao fato de que quando se aumenta a vazão mássica superficial, mantendo-se fixas as demais condições de operação, a taxa de transporte de calor por convecção se torna mais importante que o transporte de calor por condução [29,36].

A Tabela 7 apresenta os valores médios da temperatura radial, obtidos a partir da integração numérica da Equação 1, para cada posição axial z, em diversos números de Reynolds de partícula Re, conforme descrito na Equação 2.

Os resultados apresentados na Tabela 1 e nas Figuras 4 e 5, revelaram a importância da medida exata dos dados e da realização de experimentos replicados, para se filtrar as possíveis flutuações angulares e radiais de temperatura, mesmo em leitos composto de uma seção calma (seção de entrada) para o desenvolvimento do perfil de velocidades. Os experimentos replicados serviram para demonstrar que a reprodutibilidade do empacotamento do leito foi alcançada.

No que diz respeito aos gradientes de temperatura, talvez a observação mais importante que se pode tirar dos dados coletados é que ocorrem elevados gradientes radiais de temperatura numa mesma posição axial, para qualquer número de Reynolds de partícula, mostrando que a mistura completa do gás no leito compactado não é alcançada. Isto sugere que os fluxos de gás através dos espaços vazios no leito ocorrem na forma de canais preferenciais ou de feixes e que um dado feixe não interage com os adjacentes.

Com o objetivo de correlacionar a temperatura média radial com a posição axial z, os dados da Tabela 7 em diferentes números de Reynolds, foram ajustados com a Equação 3 e seus parâmetros obtidos. A Tabela 8 apresenta os valores dos parâmetros da Equação 3, assim como os respectivos coeficientes de correlação



Figura 5: Perfis radiais de temperatura no reator em vários números de Reynolds de partícula, para a altura de leito compactado de z=5 cm

Tabela 7: Valores médios da temperatura radial ao longo da altura do leito

z (cm)	$\overline{\mathrm{T}}_{\mathrm{r}}(\mathrm{r}),(^{\mathrm{o}}\mathrm{C})$				
	$Re_{p} = 105$	$Re_{p} = 125$	$Re_{p} = 145$	$Re_{p} = 165$	$Re_{p} = 185$
0,0	70,00	70,00	70,00	70,00	70,00
1,0	49,81	50,51	50,47	51,35	53,49
2,0	46,59	48,12	49,55	49,20	50,55
3,0	44,01	47,19	47,81	48,19	48,75
4,0	41,53	43,25	44,54	44,71	46,33
5,0	40,37	43,01	44,69	44,50	46,67
6,0	40,82	42,07	42,99	44,41	45,22
7,0	39,67	41,25	42,07	43,51	44,21
8,0	37,62	39,18	41,14	42,37	44,03
9,0	37,45	40,25	41,80	42,76	43,08
10.0	37.28	38.64	40.59	35.84	42.95

As Figuras 6 a 10 apresentam as curvas representativas do ajuste da temperatura média radial em função da altura do leito, em diferentes números de Reynolds de partícula. É claramente evidente da Tabela 8 e das Figuras 6 a 10, que a qualidade do ajuste entre os dados experimentais e os valores preditos pela Equação 3, em todas as condições experimentais

é excelente, uma vez que os valores do coeficiente de correlação são todos muito próximos da unidade.

Tabela 8: Parâmetros da Equação 3, ajustada aos dados das Tabelas 2 a 6

	Re _p				
	105	125	145	165	185
$\mathbf{b_8}$	43,06921	111,59468	16,96975	20,09896	253,66539
b9	-1,52293	-2,63429	-81390,47	-200,762	-157,3293
b ₁₀	12,50598	20,32948	51,10693	49,88191	-234,4628
b ₁₁	-51,0252	-215,4935	-4,93277	-1,93818	-157,3293
b ₁₂	14,42479	-61,93727	1,92332	0,00000	50,760699
b ₁₃	-2161,25	-2,63429	16,18995	410,9855	-1,802583
\mathbf{R}^2	0,99853	0,99544	0,99780	0,99619	0,99784



Figura 6: Comparação entre a temperatura radial média ao longo da posição axial z, (•) experimental e (+) predito pela Equação 3, para Re = 105



Figura 7: Comparação entre a temperatura radial média ao longo da posição axial z, (•) experimental e (+) predito pela Equação 3, para Re = 125

Dessa forma fica caracterizado que se pode, dentro das condições estudadas, estimar os parâmetros térmicos via modelos numéricos, por exemplo, usando para representar os pontos experimentais a Equação 3, ao invés de usar os próprios dados experimentais (que são poucos e representam apenas quatro posições radiais no reator) e não permitem se ter uma confiável significância estatística quando da estimativa dos parâmetros condutividade térmica e coeficiente convectivo de transferência de calor.



Figura 8: Comparação entre a temperatura radial média ao longo da posição axial z, (•) experimental e (+) predito pela Equação 3, para Re = 145



Figura 9: Comparação entre a temperatura radial média ao longo da posição axial z, (•) experimental e (+) predito pela Equação 3, para Re = 165



Figura 10: Comparação entre a temperatura radial média ao longo da posição axial z, (•) experimental e (+) predito pela Equação 3, para Re = 185

4. Conclusões

A partir da metodologia utilizada e dos resultados obtidos, pode-se concluir que:

 os resultados revelaram a importância da medida exata dos dados e da realização de experimentos replicados, para se filtrar as possíveis flutuações angulares e radiais de temperatura, mesmo em leitos composto de uma seção para o desenvolvimento do perfil de velocidades. Os experimentos replicados serviram para mostrar a reprodutibilidade do empacotamento do leito;

 na região próxima à entrada do leito, as flutuações angulares e radiais são mais pronunciadas, devido ao provável efeito de condução de calor tipo aleta pela parede do reator, da seção térmica em direção à seção de entrada;

• ocorrem elevados gradientes radiais de temperatura numa mesma posição axial, mostrando que a mistura completa do gás no leito compactado não é alcançada. Isto sugere que os fluxos de gás através dos espaços vazios no leito ocorrem na forma de canais ou de feixes e que um dado feixe não interage com os adjacentes;

 os perfis radiais de temperatura são muito bem representados por uma equação parabólica, tendo em vista que o ajuste produziu coeficientes de correlação próximos da unidade para todos os números de Reynolds estudados;

• o aumento da vazão mássica de fluido, em qualquer altura de leito, altera significativamente os perfis radiais e axiais de temperatura, indicando que a transferência de calor por convecção passa a ser o mecanismo dominante;

 a porosidade do leito desempenha um papel determinante sobre o comportamento térmico do reator, visto que os maiores gradientes térmicos estão concentrados na direção radial, associado possivelmente às maiores flutuações que sofre a porosidade nessa mesma direção;

• a dispersão axial de calor pode ocorrer, por exemplo, por condução molecular, irregularidades no fluxo do fluido através do leito devido às irregularidades no empacotamento do leito, alternativamente convergindo e divergindo nos espaços vazios e taxa de fluxo de fluido;

• quando se realiza a estimativa dos coeficientes térmicos do leito a partir de dados experimentais provenientes de uma célula de medidas onde a razão H/D = 1,8, que é muito menor que 30, o fenômeno da fuga de calor pela parede torna-se bem mais pronunciado.

• a elevada variação radial de temperatura com a velocidade mássica superficial evidencia que, para leito compactado gássólido, a condutividade térmica efetiva desempenha mais o papel de um coeficiente de transferência de calor fluido-partícula do que uma verdadeira condutividade térmica de cada gás ou sólido.

Agradecimentos

Os autores agradecem a CAPES, ao CNPq e ao DEQ/UFSCar, pelo apoio financeiro concedido, e aos pesquisadores referenciados que com suas pesquisas, ajudaram no melhoramento deste trabalho.

Referências

 Schwartz, C. E.; Smith, J. M. Flow distribution in packed beds, *Industrial Chemical Engineering*, V. 45, p.1209-1218, 1953.

- [2] Freire, J. T. Transferência de calor em meios porosos, COPPE/UFRJ, Tese de Doutorado. Rio de Janeiro, 223p, 1979.
- [3] Bunnell, D. G.; Irvin, H. B.; Olson, R. W.; Smith, J.M. Effective thermal conductivities in gas-solid systems. *Industrial Engineering Chemical*, V. 41, p. 1977. 1949.
- [4] Dixon, A. G. The length effect on packed bed effective heat transfer parameters, *The Chemical Engineering Journal*, V. 31, p.163-173, 1985.
- [5] Dixon, A. G., Angular temperature variations in fixed beds of spheres. In: *Proceedings of the National Heat Transfer Conference*, Atlanta, p. 55. 1993.
- [6] Thoméo, J. C. Análise experimental dos efeitos de entrada térmicos sobre os coeficientes de transferência de calor em leito fixo, PPG-EQ/UFSCar, Dissertação Mestrado, São Carlos, 117p, 1990.
- [7] Schouten, E. P. S.; Westerterp, K. R. Angular temperature variations in a wall-cooled packed-bed reactor, *AIChE Journal*, V. 42, n. 9, p. 2635-2644, 1996.
- [8] Thoméo, J. C.; Freire, J. T. Heat transfer in fixed bed: a model non-linearity approach, *Chemical Engineering Science*, V.55, p.2329-2338, 2000.
- [9] Chalbi, M.; Castro, J. A.; Rodrigues, A. E.; Zoulaian, A. Heat transfer in fixed bed exchangers. *Chemical Engineering Journal*, V. 34, p. 89-97. 1987.
- [10] Wijngaarden, R. J.; Westerterp, K. R., The statistical character of packed beds heat transport properties, *Chemical Engineering Science*, V. 47, n. 12, p. 3125-3129, 1992.
- [11] Gunn, D. J.; Khalid, M., Thermal dispersion and wall heat transfer in packed beds, *Chemical Engineering Science*, V. 30, p. 261-267, 1975.
- [12] Ziolkowski, D.; Legawiec, B. Remarks upon thermokinetic parameters of the one and two-dimensional mathematical models of heat transfer in tubular flow apparatus with a packed bed, *Chemical Engineering Process*, V. 21, p. 65-76, 1987.
- [13] Giudici, R. Modelagem de reator de oxidação de etileno: estudo de parâmetros térmicos e estratégia de diluição de catalisador, USP, Tese de Doutorado, São Paulo, 183p, 1990.
- [14] Winterberg, M.; Tsotsas, E. Modelling of heat transport in beds packed with spherical particles for various bed geometries and/or thermal boundary conditions, *International Journal of Thermal Science*, V. 39, p. 556-570, 2000.
- [15] Dixon, A. An improved equation for the overall heat transfer coefficient in packed beds, *Chemical Engineering and Processing*, V.35, p.323-331. 1996.
- [16] Legawiec, B.; Ziółkowski, D. Axial thermal effective conductivity in packed-bed catalytic tubular reactors, *Chemical Engineering Science*, V.52, n. 12, p.1875-1882, 1997.
- [17] Dixon, A. G.; van Dongeren, H. The influence of the tube and particle diameters at constant ratio on heat transfer in packed beds, *Chemical Engineering and Processing*. V.37, p.23-32, 1998.

- [18] Fedoseev, V. N.; Shanin, O. I. Statistical characteristics of convective exchange in a stationary granular bed, Inz-Fiz, Zh., V. 51, p. 194, 1986.
- [19] Wijngaarden, R. J.; Westerterp, K. R. Incorporation of statistical distributions of particle properties in chemical reactor design and operation: The cooled tubular reactor, *Chemical Engineering Science*, V. 47, n. 8, p. 1881-1895, 1992.
- [20] Borkink, J. G. H., Van der Watering, C. G.; Westerterp, K. R. The statistical character of bed-scale effective heat transport coefficients for packed beds. *Transactions Industrial Chemical Engineering*, V.70A, p. 610-619, 1992.
- [21] Prasad, V. S.; Das, S. K. An experimental and theoretical investigation into the hyperbolic nature of axial dispersion in packed beds, *International Journal of Heat* and Mass Transfer, V. 45, p.3681-3688, 2002.
- [22] Natarajan S., Zhang C., Briens, C. Numerical simulation and experimental verification of gas flow through packed beds. *Powder Technology*. V. 152, p. 31-40, 2005.
- [23] Nemec, D.; Levec, J. Flow through packed bed reactors: I. Single-phase flow. *Chemical Engineering Journal*. V. 60, p. 6947-6957, 2005.
- [24] Guardo, A., Coussirat, M., Larrayoz, M. A., Recasens F.; Egusquiza, E. Influence of the turbulence model in CFD modeling of wall-to-fluid heat transfer in packed beds, *Chemical Engineering Science*. V. 60, p. 1733-1742, 2005.
- [25] Guardo A., Coussirat, M., Recasens, F., Larrayoz, M. A.; Escaler, X. CFD study on particle-tofluid heat transfer in fixed bed reactor: convective heat transfer at low and high pressure, *Chemical Engineering Science*. V. 61, p. 4341-4353, 2006.
- [26] Alopaeus, V.; Laavi, H.; Aittamaa, J. A dynamic model for plug flow reactor state profiles. *Computers & Chemical Engineering*, V. 32, p. 1494-1506, 2008.
- [26] Cong, T. N.; He, Y.; Chen H.; Ding, Y., Wen, D. Heat transfer of gas-solid two-phase mixtures flowing through a packed bed under constant wall heat flux conditions, *Chemical Engineering Journal*. V. 130, p. 1-10, 2007.
- [27] Shahamiri, S. A.; Wierzba, I., Modeling catalytic oxidation of lean mixtures of methane-air in a packed-bed reactor. *Chemical Engineering Journal*, V. 149, p. 102-109, 2009.
- [28] Borkink, J. G. H.; Westerterp, K. R. Determination of Effective heat transport coefficients for wall-cooled packed beds. *Chemical Engineering Science*, V. 47, n. 9-11, p. 2337-2342, 1992.
- [29] Oliveira, L. G.; Teruel, B. J.; Lima, A. G. B. Transmisión de calor em um reactor cilíndrico: Nueva solución analítica del modelo com três parâmetros, *Información Tecnológica*, V. 14, n. 1, p. 145-151, 2003.
- [30] Lima, A. G. B. Fenômeno da difusão em sólidos esferoidais prolatos. Caso estudado: secagem de banana, Universidade Estadual de Campinas, Tese Doutorado, Campinas, Brasil, 240p, 1999.
- [31] Nascimento, J. J. S. Fenômenos de difusão transiente em sólidos paralelepípedos. Estudo de caso: secagem de

material cerâmico, *Universidade Federal da Paraíba, Tese Doutorado,* João Pessoa, Brasil, 181p, 2002.

- [32] Lerou, J. J.; Froment, G. F. Velocity, temperature and conversion profiles in fixed bed catalytic reactors, *Chemical Engineering Science*, V.32, p. 853-861, 1977.
- [33] Zotin, F. M. Z. O efeito de parede em colunas de recheio. PPG-EQ/UFSCar, Dissertação Mestrado. São Carlos, 85p, 1985
- [34] Mc Greavy, C.; Foumeny, E. A.; Javed, K.H. Characterization of transport properties for fixed bed in terms of local bed structure and flow distribution, *Chemical Engineering Science*, V.41, p.787-797, 1986.
- [35] Freiwald, M. G.; Paterson, W. R. Accuracy of model predictions and reliability of experimental data for heat transfer in packed beds, *Chemical Engineering Science*, V.47, p.1545-1560, 1992.
- [36] Silveira, A. M. Transferência de calor em meios porosos: análise do modelo a uma fase em leito fixo, *COPPE/UFRJ, Tese Doutorado,* Rio de Janeiro, 201p, 1991.