

11º CONGRESSO BRASILEIRO DE PESQUISA E DESENVOLVIMENTO EM PETRÓLEO E GÁS



TÍTULO DO TRABALHO:

COMPORTAMENTO DINÂMICO DE COLUNAS DE DESTILAÇÃO POR FILME LÍQUIDO DESCENDENTE EQUIPADAS COM TERMOSSIFÃO BIFÁSICO: IDENTIFICAÇÃO DE PARÂMETROS DE FUNÇÕES DE TRANSFERÊNCIA

AUTORES:

Vitor Ferreira Antonangelo, José Luiz Francisco Alves, Cintia Marangoni

INSTITUIÇÃO:

Universidade Federal de Santa Catarina

COMPORTAMENTO DINÂMICO DE COLUNAS DE DESTILAÇÃO POR FILME LÍQUIDO DESCENDENTE EQUIPADAS COM TERMOSSIFÃO BIFÁSICO: IDENTIFICAÇÃO DE PARÂMETROS DE FUNÇÕES DE TRANSFERÊNCIA

Resumo

A destilação desponta como uma das técnicas de separação mais utilizadas na indústria química. Essa operação unitária não é barata dada a sua ineficiência termodinâmica, o que impulsiona o desenvolvimento de tecnologias que permitam maiores integrações energéticas, equipamentos compactos e com menor gasto de energia. A destilação por filme líquido descendente encontra essas características na tecnologia DESTUBCAL, uma alternativa promissora aos processos convencionais de destilação e que propõe a integração de uma coluna de separação de filme líquido descendente e um termossifão bifásico. No entanto, ainda é necessária a compreensão do comportamento dinâmico do processo para atingir os objetivos de separação. Este trabalho considera como estudo de caso a separação de uma mistura contendo etanol e água, e teve por objetivo investigar experimentalmente a dinâmica do processo em malha aberta para dois arranjos de coluna de destilação de filme líquido descendente assistidas por termossifão bifásico (unitubular e multitubular) considerando uma configuração de fornecimento de calor isotérmica. Para esse fim, avaliou-se o comportamento dinâmico das vazões e composições do destilado em resposta às perturbações positivas na quantidade de calor fornecida pelo evaporador e na temperatura do óleo de aquecimento da corrente de entrada, considerando um modelo empírico baseado em relações de dados de entrada e saída. Adicionalmente, a resposta transiente obtida foi comparada, qualitativamente, com a resposta transiente do processo em colunas de prato convencionais. A tecnologia estudada pôde ser bem representada pelo modelo de funções proposto e, observou-se menores tempos de resposta e tempo morto muito baixo, o que pode ser atribuído ao fornecimento integral de calor no tubo de destilação. Perturbações positivas nas variáveis manipuladas reduziram a qualidade e aumentaram a vazão do destilado. Os resultados incentivam a busca por uma estratégia de controle eficiente e que atenuar os efeitos de possíveis perturbações do processo na qualidade do produto.

Palavras-chave: destilação por filme descendente, intensificação energética, dinâmica do processo, modelagem empírica.

Abstract

Distillation emerges as one of the most used separation techniques in the chemical industry. This operation is not cheap because of its thermodynamic inefficiency, it drives several studies focused on developing techniques and patents that allow greater energy integration, compact equipment, and lower energy consumption. Falling film distillation finds these characteristics in the DESTUBCAL technology, a promising alternative to conventional distillation processes that proposes the integration of a falling film separation column and a two-phase thermosiphon in the same apparatus. However, an understanding of the dynamic behavior of the process is necessary to achieve the separation goals. This work considers a case study of an industrially relevant separation of a mixture containing ethanol and water. It aims to experimentally investigate the open-loop process dynamics for two arrangements of biphasic thermosiphon-assisted falling film distillation column (single-tube and multi-tube), considering an isothermal heat supply configuration. For this purpose, the dynamic behavior of the flow rates and distillate compositions in response to disturbance in the amount of heat supplied by the evaporator and in the temperature of the heating oil of the inlet stream was evaluated, considering an empirical model

based on input/output data correlation. Additionally, the transient response obtained was qualitatively compared with the transient process response in conventional tray columns. The studied technology could be well represented by the proposed function mode, shorter response time and very low delay were observed, which can be attributed to the integral heat supply along all the distillation tubes. Positive steps in the manipulated variables reduced the quality and increased the distillate flow rate. The results encourage the search for an efficient strategy control that mitigates the effects of possible process disturbances on product quality.

Keywords: falling film distillation, energy intensification, process dynamics, empirical modeling.

Introdução

O aumento da temperatura global é amplamente atribuído às mudanças climáticas, devido as emissões de CO₂ e outros gases causadores do efeito estufa. Mesmo diante deste cenário, é esperado um aumento de cerca de 1,5 vezes nas emissões de CO₂ no setor de transportes, considerando as condições de produções atuais. Para reduzir esse efeito existem, basicamente, duas opções: diminuir o consumo ou alterar os combustíveis (RODRÍGUEZ-ANTÓN *et al.*, 2022). Nesse contexto, Milovanoff e colaboradores (2020) mostraram que o uso de combustíveis que combinam 15 a 30% de etanol com gasolina podem ser capazes de reduzir as emissões de CO₂ provenientes da queima de etanol produzidos através do milho em até 7,2%, até 2030. Além disso, promover a sustentabilidade dos processos de obtenção desse combustível também é de grande interesse, e nesse sentido novos processos de destilação têm se mostrado uma alternativa promissora na melhoria do processo.

A destilação é um dos processos de separação mais importantes na indústria química. Estima-se que é utilizada em 95% dos processos de separação líquido-líquido (PREMKUMAR & RANGAIAH, 2009) dada sua flexibilidade em operar em variados níveis de recuperação de produtos de interesse e variadas condições na alimentação. Entretanto, possui baixa eficiência termodinâmica, usualmente entre 5 e 20% e, pode corresponder a mais de 50% do custo operacional de uma instalação química industrial (BATTISTI *et al.*, 2020). Estima-se que 3% do consumo total de energia do mundo venha dos processos de destilação (PREMKUMAR & RANGAIAH, 2009). Buscando atingir um processo eficiente, alternativo e sustentável, Marangoni *et al.* (2011) propuseram uma tecnologia, denominada DESTUBCAL, que integra uma coluna de separação de filme líquido descendente e um termossifão bifásico. O termossifão fornece calor integralmente ao longo de todo o tubo de destilação através de uma câmara de vapor que utiliza vapor de água como fluido de aquecimento (MILANEZ *et al.*, 2014). Visando a obtenção de um desinfetante para o combate à COVID-19 e utilizando essa tecnologia, Battisti e colaboradores (2021), partindo de uma mistura aquosa contendo 10% de etanol, obtiveram fração de 70% de etanol no destilado, com redução de cerca de 46,4% o consumo de energia.

Esta unidade mostra-se promissora, mas é necessário investigar o comportamento dinâmico em unidades de destilação de filme líquido descendente energeticamente intensificadas. Embora existam estudos disponíveis na literatura focados no processo de destilação em colunas de pratos convencionais, o estado da arte atual é insuficiente no que diz respeito a uma compreensão detalhada sobre comportamento dinâmico do processo em unidades de filme líquido descendente energeticamente intensificadas. Assim, este trabalho teve por objetivo avaliar a dinâmica de processo em malha aberta para dois arranjos de coluna de destilação de filme líquido descendente assistidas por termossifão bifásico, um unitubular e um multitubular, considerando uma configuração de fornecimento de calor isotérmica, ou seja, com a mesma temperatura ao longo de toda a câmara de vapor. Dentro do escopo deste trabalho, foi empregada uma abordagem de identificação aproximada de sistema, baseada em

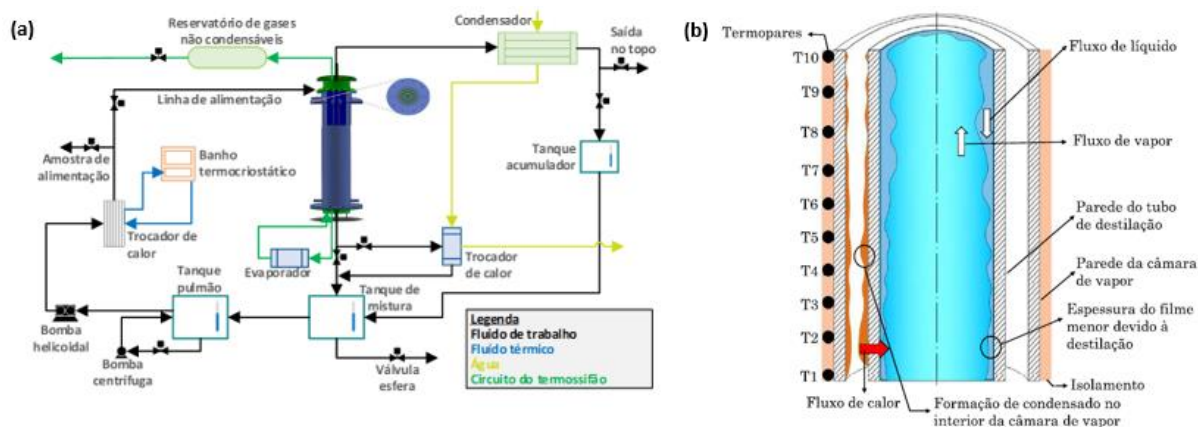
funções de transferência de primeira ordem. Tal conhecimento pode ser incorporado em estruturas de controle para este tipo de unidade.

Metodologia

Os experimentos de separação etanol-água em escala piloto foram realizados em dois arranjos de coluna de destilação por filme descendente que utilizam um termossifão bifásico como fornecedor de calor para o processo. Ambas as unidades piloto operam sob pressão atmosférica e de forma contínua. Os dois arranjos diferem no que diz respeito ao número de tubos de destilação. A coluna de destilação de filme descendente do tipo multitubular é composta por nove tubos cilíndricos dispostos verticalmente (**Figura 1a**), enquanto a unitubular é composta de apenas um tubo (**Figura 1b**). As duas unidades são aquecidas por um termossifão bifásico que operou com a mesma temperatura ao longo da câmara de vapor. A alimentação é aquecida por um banho termostático utilizando óleo como fluido térmico. A mistura é alimentada pelo topo da unidade. O detalhamento das características construtivas pode ser encontrado na Patente Brasileira BR10201402976850 (MILANEZ *et al.*, 2014).

Após obtido o regime permanente de operação, foram aplicadas perturbações positivas isoladamente do tipo degrau na temperatura de pré-aquecimento da corrente de alimentação, ou seja, na temperatura do fluido térmico (10°C) ou na potência fornecida para a câmara de vapor (10%). A potência da câmara de vapor representa o refeedor em uma unidade convencional. A condição térmica da alimentação, no caso da unidade estudada, pode influenciar na temperatura de topo, e consequentemente na corrente de destilado. Por esta razão, ambas variáveis foram definidas para estudar a dinâmica do processo em relação a qualidade de destilado.

Figura 1 – Diagrama esquemático do arranjo multitubular (a) e o corte longitudinal representativo do tubo de destilação e câmara de vapor para o arranjo unitubular (b).



Fonte: Adaptado de Alves et al. (2020).

Na **Tabela 1** são apresentados os pontos de operação das unidades no regime permanente anterior às perturbações. Após a aplicação do degrau, amostras foram coletadas do produto de topo e mensurou-se as variáveis de qualidade: vazão de destilado e composição mássica de etanol nesta corrente. Os ensaios foram conduzidos até a obtenção do novo regime permanente. As medidas da fração de etanol na corrente de destilado foram obtidas utilizando-se um densímetro para álcool. A repetibilidade dos resultados experimentais foi garantida utilizando valores médios obtidos a partir dos testes em escala piloto e em malha aberta realizados em triplicata.

Tabela 1 - Condição experimental de referência empregada.

Variáveis	Unitubular	Multitubular
Temperatura de alimentação (°C)	78	78
Fração mássica de etanol na corrente de alimentação (wt%)	12	12
Vazão mássica da corrente de alimentação (kg h ⁻¹)	33	255
Temperatura da câmara de vapor (°C)	100	100

Os parâmetros empíricos da função de transferência de primeira ordem (Equação 1) nomeadamente a constante de tempo do processo (τ_p), ganho do processo (K_p) em estado estacionário e, tempo morto (θ), foram determinados no domínio do tempo empregando o método de mínimos quadrados, sendo K_p o ganho, θ o tempo morto e τ , a constante de tempo do processo.

$$G_s = \frac{K_p e^{-\theta s}}{(1 + \tau_p s)} \quad (1)$$

Resultados e Discussão

Comportamento dinâmico do processo

Os resultados apresentados na **Figura 2** mostram a redução da qualidade do destilado tanto para a unidade unitubular quanto para a multitubular, após a aplicação da perturbação na temperatura do óleo de aquecimento da corrente de alimentação. Foi observada uma redução na fração mássica de etanol na corrente de destilado de aproximadamente 8,3% para a unidade unitubular e, aproximadamente 5,8% para a unidade multitubular. Para os dois arranjos também foi observado um incremento na vazão de destilado de cerca de 42% na unidade unitubular e, de 40% na unidade multitubular. Este comportamento era esperado para a vazão de destilado pois com maior temperatura na alimentação, há maior formação de vapor na parte superior da unidade.

Na **Figura 3** ilustra-se a resposta transiente a uma perturbação na potência fornecida à seção de evaporação do termossifão. Os resultados indicaram um comportamento semelhante para os dois arranjos analisados, havendo um decréscimo na fração mássica de etanol na corrente de destilado e, um aumento na vazão mássica da corrente. Para a unidade unitubular a fração mássica de etanol no destilado reduziu cerca de 7,6% e a vazão de destilado aumentou cerca de 67,7%; já para a unidade multitubular a fração reduziu aproximadamente 7%, com a vazão mássica aumentando em 41,1%. Esse resultado pode ser explicado pela relação entre o aumento da potência fornecida pelo evaporador e o aumento do fluxo de calor advindo da câmara de vapor em direção ao(s) tubo(s) de destilação, favorecendo a geração de vapor e com isso aumentando a vazão. Observa-se que o comportamento da unidade multitubular é similar quando perturbada as variáveis da base e do topo da unidade, apresentando reduções de mesma grandeza nas variáveis resposta. Porém, para a unidade unitubular, percebe-se claramente a diferença na resposta da vazão do destilado. Para a perturbação na potência do termossifão, a diferença foi maior na unidade unitubular, o que pode ser explicado pelo fato do calor ser distribuído para apenas um tubo ao invés de nove.

Figura 2 - Resposta a uma perturbação na temperatura do óleo de aquecimento: **(a)** fração mássica de etanol (%) no destilado, e **(b)** diferença na vazão mássica de destilado (kg h^{-1})

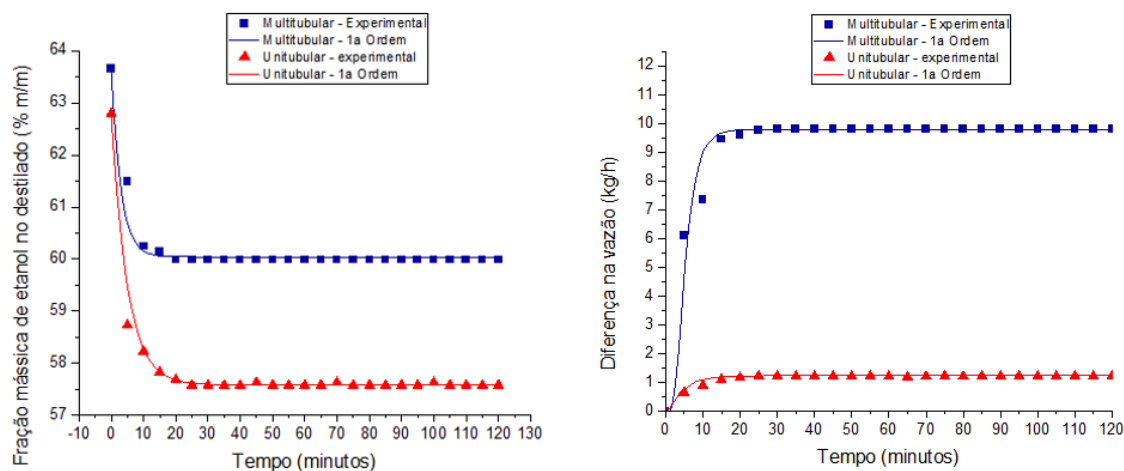
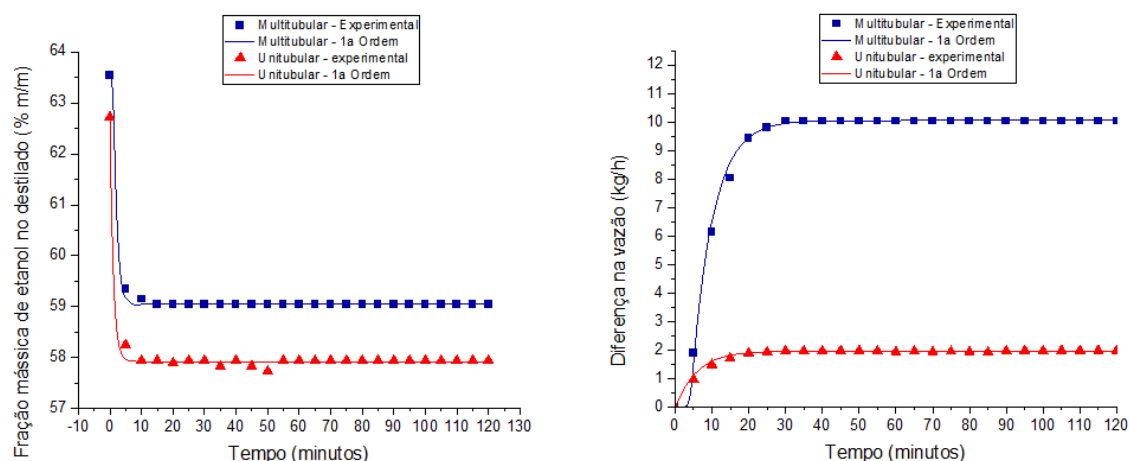


Figura 3 - Resposta a uma perturbação na câmara de vapor: **(a)** fração mássica de etanol (%) no destilado, e **(b)** diferença na vazão mássica de destilado (kg h^{-1})



Os tempos necessários para atingir a estabilidade foram bem próximos para os dois arranjos em ambas as perturbações. Para perturbação na temperatura do óleo de aquecimento da corrente de alimentação, obteve-se cerca de 25 min para a unidade unitubular referente à resposta da fração mássica do destilado e 20 min para a unidade multitubular. Este resultado indica que o sistema de alimentação diferente nas duas unidades (devido ao número de tubos) não interfere na resposta a esta perturbação. Para perturbação na potência fornecida à seção de evaporação do termossifão obteve-se 30 min para a vazão mássica da corrente de destilado e, 20 minutos para a fração mássica do destilado. Este resultado demonstra que a dinâmica do processo não é alterada pela inserção de mais tubos de destilação.

Determinação das funções de transferência

Os parâmetros obtidos para as funções de transferência são resumidos na **Tabela 2**. As funções de transferência considerando um modelo de primeira ordem foram as mais adequadas para descrever o comportamento observado para as perturbações estudadas.

Tabela 2 – Parâmetros das funções de transferência definidas em relação às perturbações aplicadas.

Perturbação	Parâmetros	Unitubular		Multitubular	
		$\dot{m}_D$ (kg h ⁻¹)	$X_{EtOH,D}$ (wt.%)	$\dot{m}_D$ (kg h ⁻¹)	$X_{EtOH,D}$ (wt.%)
T_{PA} (°C)	K_p	0,1226	-0,5204	0,9666	-0,3606
	τ (min)	4,1502	4,9011	2,7929	2,8340
	θ (min)	1,0000	0	3,0000	0
Pot (%)	K_p	0,1980	-0,4797	1,0051	-0,4491
	τ (min)	5,8000	1,0083	5,6059	1,0858
	θ (min)	0	0	4,0000	0,985

Considerando a perturbação na potência fornecida à seção de evaporação do termossifão, observou-se tempos de respostas similares para as duas unidades de destilação, sendo que o tempo de resposta da variável vazão mássica da corrente de destilação é maior que o tempo de resposta da variável referente à composição da corrente, diferente do comportamento de uma unidade convencional. Para essa perturbação, não foram constatados tempo morto para a unidade unitubular. Já para a multitubular, observou-se um tempo morto inferior a 5 min.

Em relação à perturbação na temperatura do óleo de aquecimento da corrente de alimentação, observa-se a dinâmica mais lenta para a unidade unitubular e, tempos de resposta parecidos para as duas variáveis impactadas pela perturbação (fração mássica de etanol na corrente de destilado e vazão mássica de destilado). A existência de tempo morto foi indicada apenas para a resposta referente à vazão de destilado e foi inferior ao tempo de coleta das amostras, ou seja, também não foi sentido na prática na coleta dos dados experimentais. Dessa forma, os resultados demonstram que a unidade unitubular possui uma dinâmica mais lenta, diferente do que poderia ser esperado, uma vez que a unidade multitubular é maior, possui um sistema de alimentação que distribui esta corrente em nove tubos e um único termossifão envolvendo todos.

A dinâmica da unidade Destubcal pode ser comparada com colunas de destilação convencionais. Skogestad e Morari (1988) evidenciaram que a resposta dinâmica em unidades convencionais pode ser representada por uma função de transferência de 1ª ordem com tempo morto e um elevado tempo de resposta (em torno de 194 min). Nesse sentido, a dinâmica das colunas de destilação de filme líquido descendente assistidas por termossifão bifásico diferem das convencionais, pois os resultados indicaram uma dinâmica muito mais rápida com tempo de resposta rápido e baixo tempo morto (menor do que o tempo de coleta dos dados, cinco minutos). Entretanto, assim como para as colunas de pratos convencionais, o comportamento das variáveis estudadas também pôde ser representado com sucesso por uma função de transferência de 1ª ordem. Além disso, as unidades de destilação estudadas no presente trabalho tiveram uma redução na qualidade do produto, isto é, fração mássica de etanol na corrente de destilado, com o aumento da potência fornecida pelo evaporador, comportamento oposto do descrito por Fuentes e Luyben (1983) para uma coluna de destilação de pratos convencional utilizada na separação de uma mistura de etanol e água, na ocasião um aumento no calor fornecedor pelo refeedor favoreceu a recuperação de etanol na corrente de topo.

Conclusões

O presente trabalho procurou contribuir para o atual estado da arte, apresentando uma identificação aproximada, baseada em uma função de transferência de primeira ordem clássica, para

fornecer uma compreensão qualitativa da resposta transiente experimental do processo de destilação em colunas de filme descendente integradas energeticamente com termossifão bifásico. As funções de transferências ajustadas captaram com sucesso o comportamento dinâmico do processo. Além disso, os resultados apontaram uma dinâmica mais lenta e, com maior intensidade dos efeitos causados pelas perturbações, para a unidade unitubular. A dinâmica das colunas estudadas é bem mais rápida do que as encontradas nas colunas de pratos convencionais, com um tempo de resposta bem menor e com tempo morto muito pequeno ou até inexistente. Ao contrário do apresentado na literatura para as colunas convencionais, um aumento na quantidade de calor fornecida ao sistema, através do aumento da potência do evaporador, reduziu a qualidade do produto. Por fim, o trabalho incentiva a replicação do estudo de comportamento dinâmico para um diferente arranjo de fornecimento de calor, com perfil de temperatura na câmara de vapor, e indica a necessidade de obtenção de uma estratégia de controle eficiente e capaz de atenuar os impactos causados no produto por eventuais perturbações no processo.

Agradecimentos

Os autores agradecem o apoio financeiro da Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES – Código de Financiamento 001), ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), e à Universidade Federal de Santa Catarina (UFSC) pelo apoio tecnológico concedido.

Referências Bibliográficas

- ALVES, J. L. F.; DA SILVA FILHO, V. F.; MACHADO, R. A. F.; MARANGONI, C. Ethanol Enrichment from an Aqueous Stream using an Innovative Multi-Tube Falling Film Distillation Column Equipped with a Biphasic Thermosiphon. **Process Safety and Environmental Protection**, 2020. [s.n.]. <http://dx.doi.org/10.1016/j.psep.2020.03.039>.
- BATTISTI, R.; MACHADO, R. A. F.; MARANGONI, C. A background review on falling film distillation in wetted-wall columns: From fundamentals towards intensified technologies. **Chemical Engineering and Processing - Process Intensification**, v. 150, n. January, p. 107873, 2020a. Elsevier. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cep.2020.107873>.
- BATTISTI, R.; MILANEZ, K. W.; MANTELLI, M. B. H.; DOS SANTOS, M. C.; MEDINA, L. C.; MARANGONI, C.; MACHADO, R. A. F. Energy conditions assessment of a two-phase annular thermosiphon used as heat supplier for a new pilot-scale falling film distillation unit. **Thermal Science and Engineering Progress**, v. 19, n. February, p. 100648, 2020b. Elsevier. <http://dx.doi.org/10.1016/j.tsep.2020.100648>.
- MARANGONI, C.; MENEGUELO, A. P.; TELEKEN, J. G.; PARISOTTO, I. G. B.; WERLE, L. O.; MACHADO, R. A. F.; SANTOS, M. C. dos; GOMES, A. O.; MEDINA, L. C. New Configuration of a Distillation Process with Reduced Dimensions. **Chemical Engineering Transactions**, v. 24, p. 799–804, 2011. [s.n.]. <http://dx.doi.org/10.3303/CET1124134>.
- MILANEZ, K. W.; MANTELLI, M. B. H.; OLIVEIRA, L. C. M.; SANTOS, M. C.; MACHADO, R. A. F.; MARANGONI, C.; MENEGUELO, A. P. Equipamento e Processo de Destilação com Controle de Energia pela Demanda. Brasil. Número do registro: BR10201402976850, Instituição de registro: INPI - Instituto Nacional da Propriedade Industrial. n. Depositante (s): Petróleo Brasileiro-Rio de Janeiro-Matriz; Universidade Federal de Santa Catarina, Depósito: 28/11/2014, 2014. [s.n.].
- PREMKUMAR, R.; RANGAIAH, G. P. Retrofitting conventional column systems to dividing-Wall Columns. **Chemical Engineering Research and Design**, v. 87, n. 1, p. 47–60, 2009. Elsevier BV. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cherd.2008.06.013>.
- RODRÍGUEZ-ANTÓN, L. M.; LEGRAND, M.; GUTIÉRREZ-MARTÍN, F.; SERRANO-

CORROTO, Á. Theoretical determination of distillation curves of gasoline, ethanol and ethyl tert-butyl ether ternary blends from the experimental distillation curve of gasoline. **Fuel**, v. 308, n. September 2021, 2022. [s.n.]. <http://dx.doi.org/10.1016/j.fuel.2021.122030>.