

# COMPORTAMENTO HIDRODINÂMICO DA FASE LIQUIDA NA LIXIVIAÇÃO EM PILHA

Alex Sandro Santos Costa & Luiz Rogério Pinho de Andrade Lima<sup>(\*)</sup>

Departamento de Ciência e Tecnologia dos Materiais, Universidade Federal da Bahia  
Rua Aristides Novis, n.2, Salvador, Bahia, CEP 40210-630.  
E-mail: lelo@ufba.br

## RESUMO

O escoamento gotejante envolvido no processo de lixiviação em pilha foi simulado através de testes controlados usando colunas de 25 centímetros de diâmetro interno e 1,30 metros de altura preenchidas com uma rocha com diâmetros médios iguais a 5,5 e 11 milímetros. A altura do leito foi 1,0 metro. As vazões volumétricas de solução usadas foram 124 e 260 ml/h. Os experimentos envolveram o uso de ensaios com traçador e a análise da distribuição do tempo de residência para a fase líquida com excitações na forma de degrau negativo. Os resultados experimentais foram ajustados com o modelo pistonado com dispersão axial e troca com uma zona estagnada, cujas equações foram resolvidas numericamente. Os parâmetros do modelo ajustados foram usados para avaliar os parâmetros fundamentais para o projeto e análise sistemática de reatores em leito gotejante como a lixiviação em pilha. Os resultados experimentais mostram que: (i) a dispersão axial da fase líquida diminui ligeiramente com o aumento da vazão do líquido e do diâmetro médio das partículas do leito, (ii) a saturação dinâmica aumenta com o aumento da vazão do líquido e do diâmetro médio das partículas do leito, (iii) a saturação estática diminui com o aumento da vazão do líquido e com o diâmetro médio das partículas do leito, (iv) o coeficiente de transferência de massa aumenta ligeiramente com o aumento da vazão do líquido e com a redução do diâmetro médio das partículas do leito.

**PALAVRAS-CHAVE:** Escoamento em meios porosos; Reator em leito gotejante; Modelagem; Lixiviação em pilha.

## ABSTRACT

The trickle flow found in heap leaching was simulated using two small columns (25 x 130 cm) filled with a rock with two size fractions (5.5 and 11 mm). The bed height was 100 cm, and the solution flowrates were 124 and 260 mL/h. Tracer experiments with hydrochloric acid and excitation as negative steps was used and the liquid phase residence time distribution analyzed. The experimental results were fit with the plugflow-dispersion-exchange model, whose equations were solved numerically. The fit model parameters were then used to evaluate the basic parameters for the systematic analysis and project of trickle-bed reactors, as heap leaching. The experimental results show that: (i) the axial dispersion of the liquid phase diminishes slightly with the liquid phase flowrate and the bed particles size, (ii) the dynamic saturation increases with the liquid phase flowrate and the bed particles size, (iii) the static saturation diminishes with the enhancement of the liquid phase flowrate and the bed particles size, (iv) the mass transference between dynamic and stagnant zones increases slightly with the liquid phase flowrate and the reduction of the bed particles size.

**KEY WORDS:** Porous media flow; Trickle-bed reactors; Modeling; Heap leaching.

## 1. INTRODUÇÃO

A lixiviação em pilha tem sido amplamente usada para a extração de cobre, ouro e urânio proveniente de pequenos depósitos ou de minérios com baixos teores. Neste processo ocorrem fenômenos análogos aos encontrados em reatores catalíticos de leito gotejante, cuja hidrodinâmica tem sido bastante estudada (Satterfield, 1975; Iliuta *et al.*, 1999). O comportamento hidrodinâmico de sistemas submetidos a escoamento gotejante é caracterizado pela quantidade de líquido e gás retido no leito poroso e pela dispersão axial destas fases, que são parâmetros chaves para o projeto e análise sistemática destes equipamentos. Alguns aspectos do escoamento gotejante, entretanto, ainda não foram resolvidos, sobretudo aquelas relacionadas com a região de baixas vazões de líquido e de gás, que são pouco encontrados nos reatores industriais, mas importantes para os processos de lixiviação em pilha e em monte (de Andrade Lima, 2004; de Andrade Lima, 2005).

A compreensão do efeito da vazão da fase líquida e da granulometria do leito poroso, em sistemas submetidos a escoamento gotejante é fundamental para a descrição do processo. A granulometria do leito poroso afeta tanto o volume de vazios do leito quanto à área superficial disponível para o escoamento, afetando assim a velocidade local do fluido, o que contribui para ocasionar dispersão no escoamento.

A quantidade de líquido retido em um meio poroso é definido como:  $h_L = \epsilon \beta_L$ , onde  $\epsilon$  é a porosidade do leito e  $\beta_L$  é a saturação líquida total, que corresponde ao volume de líquido por unidade de vazios do volume do reator. A saturação líquida total tem duas frações, uma que flui livremente no leito, chamada saturação dinâmica ( $\beta_d$ ) e outra determinada pela quantidade de líquido que permanece no leito se ele for evacuado, chamado de saturação estática ( $\beta_s$ ). O valor da dispersão axial ( $D$ ) indica o nível de desvio em relação ao escoamento pistonado ideal. O presente trabalho visa aprofundar a investigação sobre o efeito da vazão da fase líquida e da granulometria do leito poroso na dispersão axial do líquido e na saturação do leito.

## 2. METODOLOGIA

A distribuição do tempo de residência (DTR) é obtida através da injeção de um traçador na corrente de entrada do sistema na forma de uma perturbação conhecida, e observar a concentração do traçador na corrente de saída do sistema no decorrer do tempo (Levenspiel, 2000). A DTR de líquido e gás em reatores de leito fixo de laboratório tem sido utilizada para avaliar o efeito das vazões e da granulometria do leito sob a dispersão dos fluidos e na quantidade de líquido retido no leito. No presente trabalho a DTR foi utilizada para a avaliação da hidrodinâmica do escoamento gotejante operando com pequenas vazões de líquido.

Neste estudo os reatores foram simulados por colunas de PVC de 25 centímetros de diâmetro interno e 1,30 metros de altura preenchidas com um sólido poroso e irregular, especificamente uma rocha composta majoritariamente por quartzo com diâmetros médios iguais a 5,5 e 11 milímetros. A altura do leito foi 1,0 metro. Após verificar não haver interação com a rocha que compõe o leito, o traçador escolhido foi ácido clorídrico com concentração de 0,01 M. As vazões volumétricas de solução usadas foram 124 e 260 ml/h. Todos os experimentos foram realizados para baixos números de Reynolds, em temperatura ambiente e pressão atmosférica, a viscosidade da solução e densidade foram assumidas respectivamente como:  $\mu_L = 1,002 \times 10^{-3}$  kg/ms e  $\rho_L = 998,2$  kg/m<sup>3</sup>.

A Figura 1 mostra o esquema do arranjo experimental utilizado no presente estudo. Ele consiste de duas colunas. Na parte superior destas colunas foi colocada uma bomba peristáltica e um distribuidor do líquido para o interior das colunas. Na parte inferior existe um pequeno reservatório no qual um eletrodo de pH encontra-se imerso. Este eletrodo está ligado a um pHmetro que está interfaciado com um microcomputador através da conexão RS 232. Os resultados são armazenados em arquivo ASCII. Os valores de concentração de íon de hidrogênio são em seguida calculados ( $[H^+] = 10^{-pH}$ ) e usados nos para cálculos das curvas de distribuição de tempo de residência.

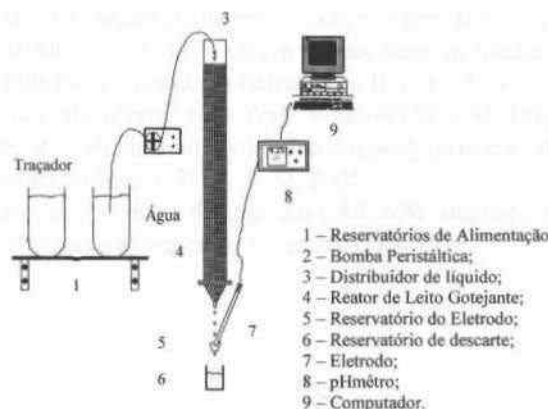


Figura 1: Arranjo experimental usado nos testes de distribuição de tempo de residência.

Para a realização dos experimentos inicialmente equilibrou-se o sistema com água destilada. Após esta etapa, o traçador foi injetado na corrente de entrada das colunas, mudando-se o tubo de alimentação da bomba peristáltica do reservatório contendo água destilada para o reservatório contendo o traçador. O tubo de alimentação da bomba peristáltica permaneceu no reservatório contendo o traçador até a estabilização da medida do pH. Após a estabilização o tubo de alimentação da bomba peristáltica foi colocado no reservatório de água destilada. Observando-se após a interrupção da adição do traçador uma resposta na forma de um degrau negativo. Estes resultados são posteriormente usados para ajustar modelos teóricos através da determinação dos parâmetros.

Resultados experimentais prévios de um impulso de um traçador para reatores em leito gotejante mostraram que a hidrodinâmica desses reatores está perto do escoamento pistonado ideal para altas taxas de fluxo, mas na maioria dos casos há um importante componente de dispersão axial e uma longa cauda característica, os quais indicaram alguma interação com o substrato ou um efeito cromatográfico (van Swaaij *et al.*, 1969; Scardi *et al.*, 1980; de Andrade Lima, 2005). Foram propostos vários modelos para descrever este comportamento. O modelo que obteve maior êxito para descrever a hidrodinâmica de reatores em leito gotejante foi o modelo de fluxo pistonado com dispersão axial e transferência de massa para as áreas estagnadas, também conhecido como modelo PDE, da designação inglesa "Piston-Dispersion-Exchange Model".

A Figura 2 ilustra esquematicamente o comportamento do escoamento de um fluido submetido a escoamento gotejante em meios porosos que seguem o modelo PDE, em um reator de leito gotejante de comprimento  $L$  que segue este modelo, que é dividido nas zonas dinâmicas e estáticas.

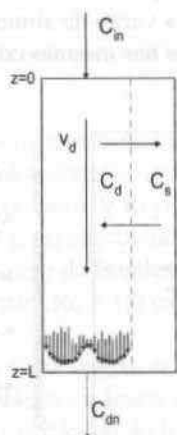


Figura 2: Representação Esquemática do Modelo PDE.

O balanço de massa para o sistema ilustrado na Figura 2 é representado pelas equações de concentração do traçador nas regiões dinâmica e estática (van Swaaij *et al.*, 1969; Iliuta *et al.* 1999).

$$\frac{\partial C_d}{\partial t} = \left( \frac{D_d}{L^2} \right) \frac{\partial^2 C_d}{\partial Z^2} - \left( \frac{v_d}{L} \right) \frac{\partial C_d}{\partial Z} - \left( \frac{k_m a}{\varepsilon \phi_d} \right) (C_d - C_s) \quad (1)$$

$$\frac{\partial C_s}{\partial t} = - \left( \frac{k_m a}{\varepsilon (1 - \phi_d)} \right) (C_s - C_d) \quad (2)$$

No caso de uma perturbação na forma de degrau negativo as condições iniciais e de contorno são:

$$C_d(0, Z) = C_{d0}; C_d(t, 0) = 1 - H(t) = C_{in}; u_d C_d(t, 0^+) = u_d C_d(t, 0^-) - D_d \left( \frac{\partial C_d}{\partial Z} \right)_{z=0}; \left( \frac{\partial C_d}{\partial Z} \right)_{z=L} = 0; C_s(0, Z) = C_{s0} \quad (3)$$

onde,  $C_d$  é a concentração do traçador na região dinâmica e  $C_s$  é a concentração do traçador na região estática,  $D_d$  é o coeficiente de dispersão axial na região dinâmica,  $Z$  é a distancia adimensional ( $Z=z/L$ ),  $z$  é a distancia,  $L$  é o comprimento do reator,  $v_d$  é a velocidade intersticial da fase líquida ( $v_d = u_d / \varepsilon \beta$ ),  $u_d$  é a velocidade superficial do líquido na região dinâmica ( $u_d = QL/S$ ),  $Q_L$  é a vazão volumétrica na região dinâmica, e  $S$  é a área de seção transversal do leito,  $\varepsilon$  é a porosidade do leito,  $\beta$  é a saturação total do leito,  $k_m a$  é o coeficiente global de transferência de

massa na interface da fase dinâmico-estática,  $\phi_d$  é a fração do volume de vazios dentro do reator na zona dinâmica e  $H(t)$  é a função degrau de Heaviside.

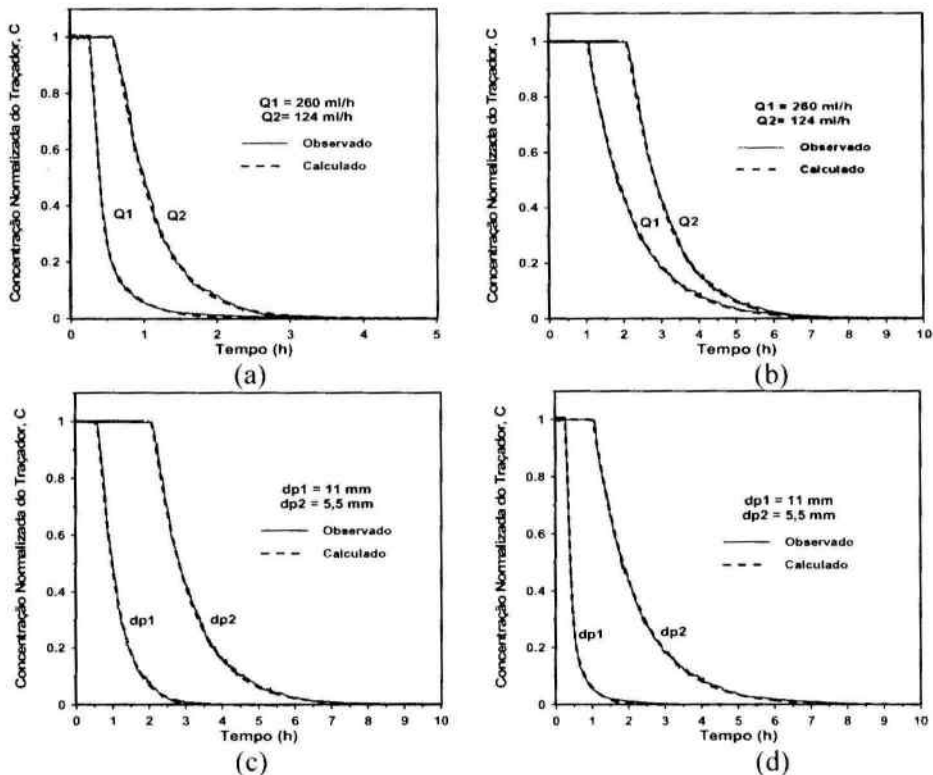
O sistema de equações diferenciais dado pelas equações 1, 2 e 3 foram resolvidos numericamente usando o método de diferenças finitas centrais para o espaço e diferenças finitas para frente para o tempo. Foi usada uma aproximação inicial e o limite condicional que inclui as condições de contorno de Danckwerts (Iliuta *et al.* 1999). Os parâmetros do modelo PDE ( $D_d$ ,  $km_d$ ,  $\phi_d$  e  $\beta_d$ ) foram estimados através da comparação dos resultados experimentais e teóricos gerados a partir do modelo, utilizando-se o método dos mínimos quadrados e uma função objetivo modificada para levar em consideração o comportamento da curva experimental (de Andrade Lima, 2005):

$$J = \sqrt{\sum_{t=0}^{n_t} (C_t - \hat{C}_t)^2} / n_t \quad (4)$$

onde  $C_t$  é a concentração medida,  $\hat{C}_t$  é a concentração calculada,  $t$  é o tempo de amostragem, e  $n_t$  é o número de intervalos de tempo.

### 3. RESULTADOS E DISCUSSÕES

As Figuras 3a a 3d apresentam as curvas experimentais de DTR como resposta as perturbações do tipo degrau negativo. Estas figuras apresentam também as respectivas curvas de ajustes obtidas a partir do modelo PDE. As curvas experimentais foram obtidas variando-se a vazão de alimentação para os dois diferentes tamanhos de partículas. Cada experimento foi realizado três vezes nas mesmas condições para que se pudesse ter uma maior confiabilidade nos dados coletados.



**Figura 3:** Efeito das variáveis sobre a DTR: (a) vazão de alimentação e partículas de grandes ( $d=11$  mm), (b) vazão de alimentação e partículas pequenas ( $d=5,5$  mm), (c) tamanho das partículas e vazão de alimentação pequena ( $Q=124$  mL/h), (d) tamanho das partículas e vazão de alimentação grande ( $Q=260$  mL/h).

Nota-se que os ajustes obtidos a partir do modelo PDE descrevem bem o escoamento ideal para altas taxas de fluxo líquido de alimentação e para partículas do leito de tamanhos maiores. Nota-se em todos os casos uma longa cauda característica, comuns em processos que utilizam escoamento gotejante em meios porosos. Estes gráficos mostraram também a existência de um importante componente de dispersão axial os quais indicam alguma interação com o substrato, ou um efeito cromatográfico.

A Figura 4a mostra o grupo adimensional que descreve a dispersão axial, número de Bondenstein ( $Bo = v_d d_p / D_d$ ) em função do número de Reynolds ( $Re = \rho_L v_d d_p / \mu_L$ ), que são calculados à partir da velocidade intersticial do líquido ( $v_d$ ), do diâmetro médio das partículas do leito ( $d_p$ ) e da dispersão axial ( $D_d$ ) estimada à partir das curvas experimentais de DTR. Estes resultados mostraram que a dispersão axial diminui ligeiramente com o aumento da vazão do líquido e do diâmetro médio das partículas do leito.

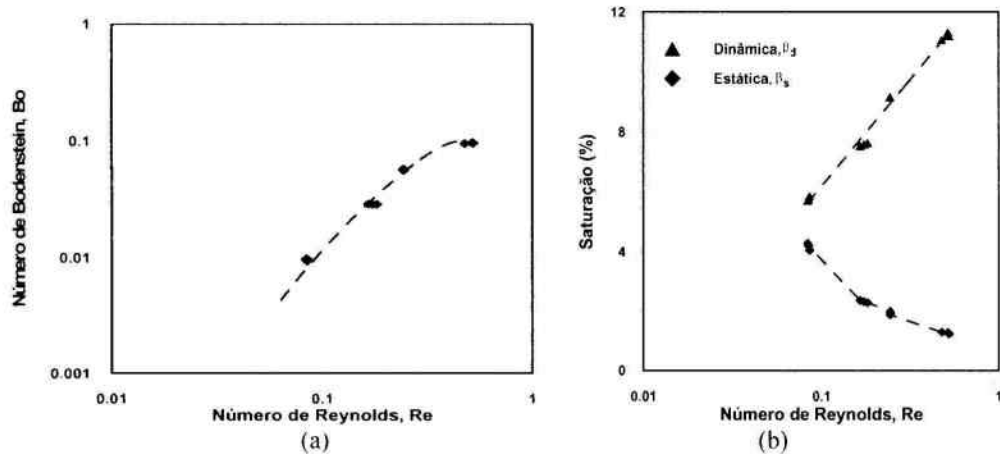


Figura 4: (a) Dispersão axial da fase líquida e (b) saturação estática e dinâmica em função do número de Reynolds.

Os resultados obtidos em estudos anteriores para reatores em leito gotejante mostram que ocorre um platô no gráfico log Bo vs log Re, para número de Reynolds entre 1,0 e 5,0 seguido de um aumento linear para número de Reynolds entre 5,0 e 10,0 e outro platô para alto número de Reynolds (van Swaaij *et al.*, 1969). No presente estudo os resultados obtidos no gráfico log Bo vs log Re, para escoamento gotejante com número de Reynolds muito pequeno ( $Re < 1,0$ ), apresentou um aumento do número de Bondenstein para número de Reynolds entre 0,08 e 0,52. Para reatores de leito gotejante convencionais, para  $Re = 1,0$  os valores do número de Bondenstein obtidos estão entre 0,02 e 0,3 (Saroja *et al.*, 1998).

A Figura 4b mostra a saturação estática ( $\beta_s$ ) e a saturação dinâmica ( $\beta_d$ ) em função do número de Reynolds intersticial. Estes resultados mostraram que a saturação dinâmica aumenta com o aumento da vazão do líquido e diminui com a diminuição do diâmetro médio das partículas do leito e a saturação estática diminui com o aumento da vazão do líquido e aumenta com a diminuição do diâmetro médio das partículas do leito. Os valores típicos obtidos em estudos anteriores para reatores convencionais em leito gotejante, para saturação dinâmica são aproximadamente de 5 a 20 % e de saturação estática de 2 a 6% (Satterfield, 1975). No caso presente, os valores encontrados são menores devido às pequenas vazões e porosidade das partículas.

A Figura 5 mostra o coeficiente de transferência de massa entre a zona dinâmica e estagnada ( $k_m a$ ) em função do número de Reynolds intersticial. Estes resultados mostraram que o coeficiente de transferência de massa aumenta ligeiramente com o aumento da vazão do líquido e com a diminuição do diâmetro médio das partículas do leito. Os resultados obtidos neste trabalho estão de acordo com os resultados obtidos para reatores em leito gotejante (Sicard *et al.*, 1980).

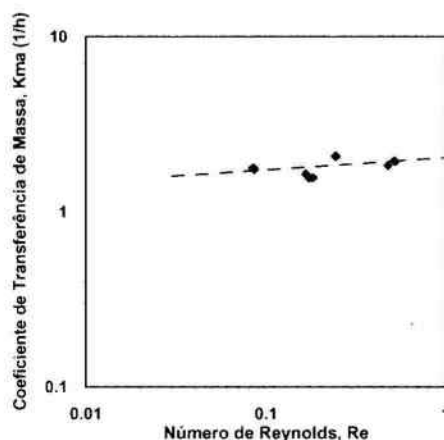


Figura 5: Coeficiente de transferência de massa entre zona dinâmica e estagnada em função do número de Reynolds.

A partir das curvas de DTR foi confirmado que a redução do tamanho das partículas do leito poroso provoca uma diminuição da porosidade, proporcionando um melhor empacotamento do leito e conseqüentemente uma maior retenção de líquido pela superfície externa das partículas é obtida. Devido a essa maior retenção de líquido haverá um melhor contato entre as partículas do leito com o fluido de alimentação, facilitando assim a entrada do líquido para os poros das partículas sólidas do leito, aumentando assim a transferência de massa entre as zonas dinâmicas e estagnadas. As curvas de DTR mostraram também que a diminuição da vazão do líquido na alimentação provoca uma formação de áreas com baixa saturação do leito dentro do reator.

#### 4. CONCLUSÕES

O efeito da vazão da fase líquida e da granulometria do leito, em sistemas submetidos a escoamento gotejante em meios porosos, com número de Reynolds muito pequeno foi investigado em colunas preenchidas com partículas sólidas porosas e irregulares, através da análise da distribuição do tempo de residência. Os parâmetros do modelo PDE foram ajustados no domínio do tempo confrontando com as curvas experimentais de DTR obtidas na forma normalizada como resposta as perturbações do tipo degrau negativo.

As análises do efeito vazão da fase líquida e da granulometria do leito poroso e irregular sobre a distribuição do tempo de residência mostraram que a dispersão axial da fase líquida diminui ligeiramente com o aumento da vazão do líquido e do diâmetro médio das partículas do leito; a saturação dinâmica aumenta com o aumento da vazão do líquido e com o aumento do diâmetro médio das partículas do leito; a saturação estática diminui com o aumento da vazão do líquido e aumenta com a redução do diâmetro médio das partículas do leito e o coeficiente de transferência de massa entre as zonas dinâmica e estagnada aumenta ligeiramente com o aumento da vazão do líquido e com a redução do diâmetro médio das partículas do leito.

Por analogia, é esperado que em sistemas submetidos a escoamento gotejante em meios porosos, com número de Reynolds muito pequeno, tais como no processo de lixiviação em pilha, os fenômenos de dispersão axial da fase líquida, saturação dinâmica, saturação estática e coeficiente de transferência de massa entre as zonas dinâmicas e estagnadas devem ser levados em consideração para elaboração de modelos matemáticos mais rigorosos.

#### 5. AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), a Fundação de Amparo a Pesquisa do Estado da Bahia (FAPESB) e a Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES), pelo apoio financeiro na forma de bolsas de mestrado e iniciação científica para este projeto.

#### 6. REFERÊNCIAS

- de Andrade Lima, L.R.P, A mathematical model for isothermal heap and column leaching, *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 21(3), p.435–447, 2004.
- de Andrade Lima, L.R.P, Liquid axial dispersion and holdup in column leaching. *Minerals Engineering*, 18, p.37–47, 2005.
- Iliuta, A., Larachi, F., Grandjean, B.P.A., Wild, W., Hydrodynamics and mass transfer in trickle-bed reactors: an overview. *Chem. Eng. Sci.*, 54, p.5329–5337, 1999.
- Levenspiel, O., Engenharia das reações químicas, 3a edição, Editora Edgard Blücher, São Paulo, 2000.
- Satterfield, C.M., Trickle bed reactors. *AIChE J.*, 21, p.209–228, 1975.
- Saroha, A.K., Nigam, K.D.P., Saxena, A.K., Dixit, L., RTD studies in trickle bed reactors packed with porous particles. *Can. J. Chem. Eng.*, 76, p.738–743, 1998.
- Sicardi, S., Baldi, G., Specchia, V., Hydrodynamic models for the interpretation of the liquid flow in trickle-bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 35, p.1775–1782, 1980.
- van Swaaij, W.P.M., Charpentier, J.C., Villermaux, J., Residence time distribution in the liquid phase of trickle flow in packed columns. *Chem. Eng. Sci.*, 24, p.1083–1095, 1969.