



## DESENVOLVIMENTO DE METODOLOGIAS PARA MEDIDAÇÃO DE VAZÃO EM DUTOS DE PETRÓLEO E DERIVADOS USANDO O RADIOTRAÇADOR $^{123}\text{I}$

Eduardo Ramos Gonçalves

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de  
Pós-graduação em Engenharia Nuclear, COPPE,  
da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como  
parte dos requisitos necessários à obtenção do  
título de Doutor em Engenharia Nuclear.

Orientadores: Inayá Corrêa Barbosa Lima  
Luís Eduardo Barreira Brandão

Rio de Janeiro  
Novembro de 2021

**DESENVOLVIMENTO DE METODOLOGIAS PARA MEDIÇÃO DE VAZÃO EM  
DUTOS DE PETRÓLEO E DERIVADOS USANDO O RADIOTRAÇADOR  $^{123}\text{I}$**

Eduardo Ramos Gonçalves

**TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO LUIZ COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA DA UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR EM CIÊNCIAS EM ENGENHARIA NUCLEAR.**

Orientadores: Inayá Corrêa Barbosa Lima

Luís Eduardo Barreira Brandão

Aprovada por: Prof<sup>a</sup>. Inayá Corrêa Barbosa Lima

Prof. Luís Eduardo Barreira Brandão

Prof. Ademir Xavier da Silva

Prof. Francisco Thiago Sacramento Aragão

Prof. Cláudio Márcio do Nascimento Abreu Pereira

RIO DE JANEIRO, RJ - BRASIL

NOVEMBRO DE 2021

Gonçalves, Eduardo Ramos

Desenvolvimento de metodologias para medição  
de vazão em dutos de petróleo e derivados usando o  
radiotraçador  $^{123}\text{I}$ / Eduardo Ramos Gonçalves. – Rio  
de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2021.

XV, 112 p.: il.; 29,7 cm.

Orientadores: Inayá Corrêa Barbosa Lima

Luís Eduardo Barreira Brandão

Tese (doutorado) – UFRJ/ COPPE/ Programa de  
Engenharia Nuclear, 2021.

Referências Bibliográficas: p. 99-106.

1. Radiotraçador. 2. Contagem Total. 3. Petróleo.  
I. Lima, Inayá Corrêa Barbosa *et al.* II. Universidade  
Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de  
Engenharia Nuclear. III. Título.

Dedico este trabalho às duas díádivas que  
O Altíssimo me agraciou:  
Lília e Luiza.

## AGRADECIMENTOS

Em primeiro lugar a Deus, que em sua infinita misericórdia devo minha vida, orientação e proteção.

A minha orientadora, Profª. Inayá Corrêa Barbosa Lima, pelo acolhimento no momento incerto, atenção, compreensão, apoio, confiança, empenho, orientação na defesa deste trabalho.

Ao Professor Delson Braz (*in memoriam*), por aceitar-me como orientando no início deste trabalho.

Ao pesquisador Brandão, pela confiança, apoio e pela sua generosidade em compartilhar os seus inestimáveis conhecimentos desde 2011, que proporcionou a realização deste trabalho e outros mais que hão de realizarmos juntos.

A minha esposa Lilia, pela presença, compreensão e parceira nessa jornada.

A minha mãe, pelos seus cuidados, atenção, amor e carinho.

Aos meus amados familiares e amigos pelo carinho, incentivo e compreensão pelas minhas constantes ausências.

Ao Prof. Marcelo Oliveira Pereira, por apresentar e incentivar meu ingresso no Programa de Engenharia Nuclear. Cheguei até aqui, Professor!

Ao Instituto de Engenharia Nuclear/CNEN e seus funcionários, em especial à Direção, à equipe de operação do Reator Argonauta, à equipe da DIRA pelo fornecimento do radioisótopo  $^{123}\text{I}$ .

Ao colegas do Laboratório de Aplicação de Radiotraçadores na Indústria IEN/CNEN Alex, Anna Karla, Eddie, Eder, Eduardo, Rafael.

À Patrice pela enorme ajuda na formatação desta tese.

Aos professores do Programa de Engenharia Nuclear da COPPE/UFRJ pela oportunidade e confiança para o desenvolvimento deste trabalho.

À Liliane Oliveira da Rocha, Washington Luiz dos Santos, Reginaldo Baptista de Oliveira e a toda equipe administrativa do PEN/COPPE/UFRJ.

Aos ex-alunos do PEN/COPPE/UFRJ que, por meio das suas pesquisas, artigos, dissertações e teses, forneceram dados fundamentais para a realização deste trabalho.

A todos os membros da banca examinadora, por terem aceitado o convite para avaliar este trabalho.

A todos que direta ou indiretamente contribuíram para a realização deste trabalho.

Resumo da Tese apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Doutor em Ciências (D.Sc.)

## DESENVOLVIMENTO DE METODOLOGIAS PARA MEDIÇÃO DE VAZÃO EM DUTOS DE PETRÓLEO E DERIVADOS USANDO O RADIOTRAÇADOR $^{123}\text{I}$

Eduardo Ramos Gonçalves

Novembro/2021

Orientadores: Inayá Corrêa Barbosa Lima

Luís Eduardo Barreira Brandão

Programa: Engenharia Nuclear

Para garantir a credibilidade das operações de transferência de commodities na indústria de petróleo e gás, medidores de vazão calibrados são usados para quantificar a movimentação de fluidos nos dutos. Tradicionalmente, conforme proposto pela norma ISO 2975-7: 1977 para ensaios em meio aquoso, o Método de Transiente de Tempo (MTT) é empregado para medir vazão posicionando dois detectores separados por distâncias que, em plantas industriais, nem sempre é possível instalá-los em posições recomendadas por essa norma. Como não existe norma específica para medição de vazão de petróleo e seus derivados líquidos com uso de radiotraçadores, o objetivo deste trabalho é propor uma metodologia em que aplica o MTT, usando o óleo marcado com  $^{123}\text{I}$  como radiotraçador, com um conjunto de quatro detectores cintiladores NaI(Tl) para medir vazão de petróleo e seus derivados líquidos em dutovias, dutos instalados em plantas industriais ou plantas com espaço restrito, tipicamente encontrados em plataformas. O método proposto neste trabalho utiliza os detectores NaI(Tl) separados um do outro por 0,30 m e três injeções contendo 5,0 ml de óleo marcado com  $^{123}\text{I}$ . Os experimentos foram realizados em uma linha de transporte que permitiu escoamentos com perfis de velocidades característicos de regime laminar, de transição e turbulento. os resultados alcançaram incertezas inferiores a 1,0% para escoamentos com Número de Reynolds da ordem de  $10^4$ .

Abstract of Thesis presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements  
for the degree of Doctor of Science (D.Sc.)

DEVELOPMENT OF FLOW MEASUREMENT METHODOLOGIES IN  
PETROLEUM AND BY-PRODUCTS USING THE  $^{123}\text{I}$  RADIOTRACKTOR

Eduardo Ramos Gonçalves

November/2021

Advisors: Inayá Corrêa Barbosa Lima

Luís Eduardo Barreira Brandão

Department: Nuclear Engineering

To ensure the credibility of commodity transfer operations in the oil and gas industry, calibrated flow meters are used to quantify fluid movement in pipelines. The use of the Time Transient Method with radiotracers can add logistical and financial advantages to the flow measurement as a function of the properties of the interaction of radiation with matter. Traditionally, as proposed by the ISO 2975-7: 1977 standard for tests in aqueous media, the Time Transient Method is used by placing two detectors separated by distances that, in industrial plants, it is not always possible to install them in positions recommended by this standard. As there is no specific standard for measuring the flow of oil and its liquid derivatives using radiotracers, the objective of this work is to propose a methodology in which the Time Transient Method is applied, using the  $^{123}\text{I}$ -labelled oil as a radiotracer, with a set of four NaI(Tl) scintillating detectors to measure the flow of oil and its liquid derivatives in pipelines, pipelines installed in industrial plants or plants with restricted space, typically found on offshore platforms. The method proposed in this work uses scintillator detectors separated from each other by 0.30 m and three injections containing 5.0 ml of  $^{123}\text{I}$ -labelled oil. The experiments were carried out in a transport line that allowed the production of flows with velocity profiles characteristic of laminar, transition and turbulent regimes. the results reached uncertainties lower than 1.0% for flows with a Reynolds number in the order of  $10^4$ .

## **Sumário**

CAPÍTULO 1 – Introdução .....	1
1.1. Medição de vazão .....	2
1.2. Objetivos.....	6
1.3. Revisão Bibliográfica .....	7
1.3.1. Mecânica de fluido .....	7
1.3.2. Incerteza de medição de petróleo e derivados .....	9
1.3.3. Radiotraçador e técnicas .....	10
CAPÍTULO 2 – Fundamentos Teóricos .....	17
2.1. Fluidos .....	17
2.1.1. Teoria geral do escoamento de fluidos em dutos.....	17
2.1.1.1. A dispersão longitudinal.....	20
2.1.1.2. A difusão radial .....	21
2.1.1.3. Número de Reynolds .....	22
2.1.1.4. Perfil de velocidades.....	24
2.1.1.5. Região de entrada e comprimento de entrada.....	26
2.1.1.6. Equipamentos retificadores de fluxo .....	27
2.2. Medidores de vazão para petróleo e derivados .....	28
2.2.1. Medidores de deslocamento positivo.....	29
2.2.2. Medidores de turbina .....	29
2.2.3. Medidores de placa de orifício .....	30
2.2.4. Medidores eletromagnéticos.....	31
2.2.5. Medidores ultrassônicos de tempo de trânsito.....	31
2.2.6. Medidor massivo Coriolis .....	32
2.3. Traçadores.....	33
2.3.1. Radiotraçador.....	34
2.4. Funções distribuição do tempo de residência .....	37
2.4.1. Modelos para escoamento turbulento .....	39
2.4.1.1. Escoamento tipo pistão perfeito com dispersão .....	40
2.4.2. Modelo para escoamento laminar.....	43
2.5. Técnicas de medidas de vazão usando radiotraçadores .....	44
2.5.1. Medida da vazão pela técnica da Injeção Contínua.....	45
2.5.2. Medida da vazão pela técnica do Transiente do Tempo.....	46

2.5.3. Medida da vazão pela técnica da Contagem Total .....	48
2.6. Funções RTD associadas à teoria dos momentos estatísticos para estudos do escoamento de fluidos em dutos.....	49
2.7. Medição de vazão de escoamento usando o método do transiente de tempo (MTT)	
.....	53
2.7.1. Teste estatístico para rejeição de dados espúrios da velocidade de escoamento .....	55
2.7.2. Teste de normalidade dos dados experimentais.....	56
2.7.3. Teste de normalidade Shapiro-Wilk .....	57
2.7.4. Metodologia estatística para o cálculo de incerteza na medição de vazão usando MTT e radiotraçador por três injeções .....	58
CAPÍTULO 3 – Materiais e métodos .....	64
3.1. Montagem das linhas de transporte .....	64
3.1.1. Sistema de pressurização e controle de vazão da linha de transporte.....	65
3.1.2. Sistema de injeção .....	66
3.1.3. Dispositivo Retificador de fluxo.....	67
3.1.4. Material transportado.....	68
3.2. Sistema de Detecção da Radiação e aquisição de dados .....	68
3.3. Sistema de aquisição para medir atividade .....	69
3.4. Sistema de aquisição para detectar o radiotraçador injetado na linha de transporte .....	70
3.5. Radiotraçador.....	71
3.5.1. Escolha do radioisótopo.....	71
3.5.2. Estabilidade do radiotraçador .....	72
3.5.2.1. Estabilidade do radiotraçador quanto à temperatura .....	72
3.5.2.2. Estabilidade do radiotraçador quanto à reação com as paredes do duto e precipitação.....	73
3.6. Determinação da presença de vazio (bolhas de ar) ou material depositado na parede interna do duto da linha de escoamento de óleo .....	74
3.7. Verificação de escoamento estratificado .....	74
CAPÍTULO 4 – Resultados e discussões .....	76
4.1. Curva característica dos detectores cintiladores .....	76
4.2. Eficiência do detector do módulo de contagem de atividade total .....	78
4.3. Radiotrador .....	79

4.3.1. Estabilidade do radiotraçador quanto à temperatura .....	80
4.3.2. Estabilidade quanto à reação do radiotraçador com as paredes do duto e a possibilidade de que ocorra uma precipitação do óleo marcado durante o escoamento .....	81
4.4. Determinação da presença de vazio (bolhas de ar) ou material depositado na parede interna do duto da linha de escoamento de óleo .....	82
4.5. Medida de vazão pela técnica de velocidades médias .....	83
4.5.1. Verificação de tipos de escoamentos .....	84
4.5.1.1. Escoamento turbulento .....	84
4.5.1.2. Medição de vazão para perfil de escoamento turbulento .....	86
4.5.1.3. Escoamento laminar e de transição .....	89
4.5.1.4. Medição de taxa de vazão para perfil de escoamento laminar .....	93
CAPÍTULO 5 – Conclusões .....	96
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	99
ANEXO A – Validation of transient time method to calibrate oil flow meters in closed conduits using $^{123}\text{I}$ as the radiotracer.....	107

## **Lista de Figuras**

Figura 1. Exemplo de configuração do sistema de medição de petróleo em linha.....	4
Figura 2. Exemplo de configuração de uma estação de medição de petróleo em linha ...	4
Figura 3. Esquema de escoamento laminar e turbulento (CFD SUPPORT, 2021).....	18
Figura 4. Representação dos processos de difusão radial (a) e dispersão longitudinal (b)	
.....	22
Figura 5. Desenvolvimento da camada limite e perfil de velocidade do escoamento (INCROPERA, DEWITT, 2003).....	24
Figura 6. Mecanismo de entrada do fluido no duto (VICTOR, 2019, INCROPERA, DEWITT, 2003) .....	25
Figura 7. Perfil de velocidade para os regimes laminar e turbulento (BALIÑO, 2020, CHENG, HEYWOOD, 1984) .....	26
Figura 8. Comportamento do perfil de velocidade na região próxima a uma curva (GÜNER, 2016).....	27
Figura 9. Retificadores de fluxo (ITUFLUX, c1998, RDS, 2021).....	28
Figura 10. Medidores de deslocamento positivo (CAMPOS, 2018).....	29
Figura 11. Medidores de turbina (CAMPOS, 2018) .....	30
Figura 12. Medidores de placa de orifício (CAMPOS, 2018).....	31
Figura 13. Medidores eletromagnéticos (CAMPOS, 2018) .....	31
Figura 14. Medidores ultrassônicos de tempo de trânsito (CAMPOS, 2018) .....	32
Figura 15. Medidor massivo Coriolis (CAMPOS, 2018).....	33
Figura 16. Representação gráfica do pulso de saída para o modelo fluxo pistão.....	39
Figura 17. Representação gráfica do pulso de saída para modelo fluxo com mistura perfeita.....	40
Figura 18. Representação gráfica de dispersão longitudinal ao lodo de um escoamento tipo pistão .....	41
Figura 19. Representação gráfica de escoamento tipo fluxo pistão com pequena dispersão longitudinal.....	42
Figura 20. Representação gráfica de escoamento tipo fluxo pistão com grande dispersão longitudinal.....	43
Figura 21. Variação da velocidade dos elementos de volume em relação a sua posição radial (LEVENSPIEL, 2000).....	43
Figura 22. Representação gráfica RTD para o escoamento laminar .....	44

Figura 23. Localização adequada do ponto de medida a partir do ponto de injeção do radiotraçador (GONÇALVES, 2013) .....	45
Figura 24. Diagrama esquemático para obtenção de medidas com a Técnica Transiente de Tempo (GONÇALVES, 2013) .....	46
Figura 25. Diagrama esquemático para obtenção de medidas pela Técnica de Contagem Total (GONÇALVES, 2013) .....	48
Figura 26. Representação dos métodos de estímulo e resposta usando dois detectores cintiladores em um duto submetido a uma injeção X (t) de traçador e monitorado com dois detectores posicionados na entrada e na saída .....	50
Figura 27. Exemplo de gráfico Q-Q e a linearidade dos dados sugere que eles são normalmente distribuídos .....	56
Figura 28. Ilustração do teste F aplicado a uma medição da velocidade média do escoamento em um duto considerando três injeções de radiotraçadores e quatro detectores cintiladores .....	59
Figura 29. Linha de transporte de derivado de petróleo líquido.....	64
Figura 30. Medidor de vazão digital.....	65
Figura 31. Bomba modelo WEB 1 HP e controlador de frequência de rotação da bomba .....	66
Figura 32. Sistema de injeção do radiotraçador na linha de transporte .....	66
Figura 33. Dispositivo retificador de fluxo .....	67
Figura 34. Diagrama esquemático do conjunto eletrônico de módulos de instrumentos utilizados na detecção das atividades das amostras.....	69
Figura 35. Arranjo de blindagem e colimação .....	70
Figura 36. Módulo de aquisição de dados LUDLUM.....	70
Figura 37. Detectores conectados cintiladores NaI 1”x1” por cabos coaxiais .....	71
Figura 38. Aparato experimental foi desenvolvido para a verificação da possibilidade de precipitação, volatização e reação do radiotraçador com as paredes do duto .....	73
Figura 39. O dispositivo de dispersão é usado para analisar a parede interna do cachimbo e identificar depósitos sólidos ou bolhas de ar .....	74
Figura 40. Dispositivo para verificação de escoamento estratificado .....	75
Figura 41. Curva de operação dos detectores cintiladores 1x1” do sistema Ludlum.....	77
Figura 42. Curva de operação do detectores cintiladore 2x2” do sistema empregado para medir atividade .....	78
Figura 43. Espectro de emissão do $^{123}\text{I}$ .....	79

Figura 44. Gráfico referente à variação de temperatura .....	80
Figura 45. Estabilidade quanto à reação do radiotraçador com as paredes do duto e a possibilidade de que ocorra uma precipitação do óleo marcado .....	82
Figura 46. Curva RTD $E(\theta)$ de escoamento turbulento $Re = 8085$ .....	85
Figura 47. Curva RTD $E(\theta)$ de escoamento turbulento $Re = 10107$ .....	85
Figura 48. Testes de normalidade para vazão 1000 L/h (a) e 800 L/h (b).....	87
Figura 49. Escoamento de óleo $Re = 1300$ .....	89
Figura 50. Curva RTD $E(t)$ de escoamento laminar de óleo $Re = 1300$ .....	90
Figura 51. Curva RTD $E(\theta)$ de escoamento laminar de óleo $Re = 1300$ .....	90
Figura 52. Diagrama de posicionamento dos detectores no dispositivo experimental...	91
Figura 53. Curva RTD $E(\theta)$ de escoamento laminar de óleo $Re = 2300$ .....	92
Figura 54. Escoamento de óleo em regime de transição $Re = 4700$ .....	93
Figura 55. Curva RTD $E(\theta)$ de escoamento laminar de óleo $Re = 2300$ .....	94

## **Lista de Tabelas**

Tabela 1. Erros Máximos Admissíveis por Classe de Exatidão (PORTARIA INMETRO 2003).....	3
Tabela 2. Comparação de viscosidades de varios fluidos (CRABTREE, 2009) .....	20
Tabela 3. Resumo dos regimes de escoamentos (BENEDICT, 1980) .....	23
Tabela 4. Radiotraçadores mais usados na indústria (IAEA, 2001).....	36
Tabela 5. Coeficientes Shapiro-Wilk para N=6 .....	58
Tabela 6. Características do medidor digital OVAL FLOWPET-EG LS4976-400A ....	65
Tabela 7. Características do óleo utilizado no experimento (PETROBRAS, 2011).....	68
Tabela 8. Tensão de operação dos detectores cintiladores NaI 1x1 .....	77
Tabela 9. Tensão de operação do detector cintilador NaI 2x2 .....	77
Tabela 10. Comparação de eficiências .....	78
Tabela 11. Varredura da linha nas posições de medida usando uma fonte $^{241}\text{Am}$ .....	83
Tabela 12. Velocidades médias (em cm/s) para injeções T1, T2 and T3 VR = 800 L/h (Re = 8085).....	86
Tabela 13. Velocidades médias (em cm/s) para injeções T1, T2, and T3 VR = 950 L/h (Re = 9600).....	86
Tabela 14. Velocidades médias (em cm/s) para injeções T1, T2, and T3 RV= 1000 L/h (Re = 10107).....	86
Tabela 15. Análise de variância para vazão de referência 800L/h .....	88
Tabela 16. Análise de variância para vazão de referência 950L/h .....	88
Tabela 17. Análise de variância para vazão de referência 1000L/h .....	88
Tabela 18. Relação entre dados de medidas de fluxo turbulento .....	89
Tabela 19. Velocidades de cada camada estratificada.....	91
Tabela 20. Análise de variância para vazão de referência 600L/h .....	94
Tabela 21. Relação entre dados de medidas de fluxo laminar.....	95

## **Lista de Siglas**

ANOVA	Análise de Variância
ANP	Agência Nacional do Petróleo, Gás Natural e Biocombustíveis
IAEA	Agência Internacional de Energia Atômica
IEN	Instituto de Engenharia Nuclear
INMETRO	Instituto Nacional de Metrologia, Qualidade e Tecnologia
ISO	Organização Internacional de Normalização
NIM	Nuclear Instrument Module
RTD	Distribuição de Tempo de Residência

## CAPÍTULO 1

### Introdução

A importância da indústria petrolífera na sociedade atual pode ser mensurada pela participação que o petróleo tem na nossa matriz energética e por meio da observação da presença no nosso cotidiano de produtos manufaturados que têm como matéria-prima derivados de petróleo. Segundo dados contidos no anuário 2019 da Agência Nacional do Petróleo, Gás Natural e Biocombustíveis (ANP), o Brasil produziu em 2018 2,7 milhões de barris/dia e teve o sétimo maior consumo de petróleo do mundo, 3,1 milhões barris diários, que representaram 3,1% do consumo mundial (ANP, 2019).

A cadeia produtiva da indústria de petróleo é extensa e complexa, e, em todas as etapas de extração, produção, transferência e comercialização, o transporte de petróleo e derivados é realizado usando dutos de diferentes diâmetros e extensão. O Brasil possui 571 dutovias, perfazendo 9,1 mil Km de extensão (ANP, 2019), destinados a essa movimentação. A relação custo-manutenção-benefício ambiental agrega vantagens logísticas e financeiras a esse modal de transporte de grandes volumes (AYADI *et al.*, 2018).

O aumento de prospecção em novos poços em bacias na região do pré-sal potencializa, com o encremento na produção de petróleo, não só o alcance da autonomia em relação a dependência de fornecimento externo desta comodite, como também na elevação do montante arrecadado pelos entes federativos por meio de taxas e royalties.

A regulamentação das participações governamentais e de terceiros na arrecadação referente ao petróleo é gerida segundo a Lei nº 9.478/1997 (BRASIL, 1997). Nela é estabelecida a distribuição de royalties, participações especiais entre outros.

Art. 45. O contrato de concessão disporá sobre as seguintes participações governamentais, previstas no edital de licitação:

I - bônus de assinatura;

II - *royalties*;

III - participação especial;

IV - pagamento pela ocupação ou retenção de área.

§ 1º As participações governamentais constantes dos incisos II e IV serão obrigatórias.

[...]

Art. 47. Os *royalties* serão pagos mensalmente, em moeda nacional, a partir da data de início da produção comercial de cada campo, em montante correspondente a dez por cento da produção de petróleo ou gás natural.

[...]

Art. 50. O edital e o contrato estabelecerão que, nos casos de grande volume de produção, ou de grande rentabilidade, haverá o pagamento de uma participação especial, a ser regulamentada em decreto do Presidente da República.

§ 1º A participação especial será aplicada sobre a receita bruta da produção, deduzidos os *royalties*, os investimentos na exploração, os custos operacionais, a depreciação e os tributos previstos na legislação em vigor (BRASIL, 1977, s/p.).

Em 2018, R\$ 23,4 bilhões foram recolhidos em royalties, sendo que 37% desse montante foram destinados ao estado do Rio de Janeiro e a seus municípios. Referente às participações especiais, foram arrecadados R\$ 29,6 bilhões. Novamente o estado do Rio de Janeiro recebeu o maior valor, R\$ 9,1 bilhões, e, entre outros municípios desse estado, Maricá, Niterói e Campos dos Goytacazes angariaram R\$ 898,8 milhões, R\$ 791,2 milhões e R\$ 243,8 milhões, respectivamente. Ainda em 2018, foi registrada a destinação de R\$ 2 bilhões a título de investimento em pesquisa, desenvolvimento e inovação (ANP, 2019).

Os valores acima citados já expõem a relevância da indústria petrolífera na economia brasileira e local. Não obstante, há de somar ainda a esse montante os impostos e as contribuições taxados por cada ente da federação (ÁVILA, 2019, AFONSO; CASTRO, 2011). Toda essa incidência tarifária é calculada por meio de alíquotas sobre os volumes movimentados, que em dutovias e dutos, são medidos por meio de sistemas compostos por diversos dispositivos de medição de vazão específicos para cada ponto de medição.

## **1.1. Medição de vazão**

À toda medição é necessário associar um parâmetro que expresse a qualidade dos dados que certifique a confiabilidade dos valores medidos. Esse parâmetro é a incerteza da medição. Em diversos ramos industriais, a atenção dada à incerteza da medição não se faz de maneira adequada, entretanto, na indústria do petróleo, o tratamento de dados referentes à medição é observado com rigor (BOWMAN, 2019) para atender às normas consolidadas por organismos internacionais, em anuêncio à metodologia descrita no guia para a expressão da incerteza de medição (JCGM, 2008).

Como exemplo da importância da precisão nas medições na indústria petrolífera, em uma estação de transferência, em que são bombeados 240 barris de petróleo por minuto ( $1 \text{ barril} \approx 160 \text{ Litros}$ ), um erro de 0,1% na medição da vazão mostra uma

diferença de aproximadamente de 7,5 milhões de dólares americanos por ano (AUDUBON COMPANIES, 2016).

No Brasil, a ANP e o Instituto Nacional de Metrologia, Qualidade e Tecnologia (INMETRO) emitiram a portaria em conjunto ANP/INMETRO N.º 1 de 19 de junho de 2000 (ANP, 2000), na qual são regulamentadas as incertezas de medição de vazão. Nela é estabelecido que os sistemas de medição fiscal de petróleo em linha devem ser projetados, instalados e calibrados para operar dentro da classe de exatidão 0.3, e, para medições para apropriação da produção, os medidores em linha devem obter uma classe de exatidão 1.0, como demonstrado na Tabela 1 a seguir:

Tabela 1. Erros Máximos Admissíveis por Classe de Exatidão (PORTARIA INMETRO 2003)

	<i>Classes de Exatidão</i>				
	<b><u>0.3</u></b>	<b><u>0.5</u></b>	<b><u>1.0</u></b>	<b><u>1.5</u></b>	<b><u>2.5</u></b>
A	$\pm 0.3\%$	$\pm 0.5\%$	$\pm 1.0\%$	$\pm 1.5\%$	$\pm 2.5\%$
B	$\pm 0.2\%$	$\pm 0.3\%$	$\pm 0.6\%$	$\pm 1.0\%$	$\pm 1.5\%$

Linha A – sistema completo; Linha B – medidor de vazão

Para alcançar os limites de tolerância relativos às incertezas na medição de vazão, só a instalação do dispositivo medidor de vazão na linha de transporte não se mostra suficiente. É requerida a presença de vários equipamentos auxiliares à jusante e à montante, assim como a localização apropriada da instalação do sistema de medição (DUPUIS, 2014), também chamada de Estação de Medição, pois as características do perfil de velocidades do escoamento do fluido na região de medição interferem na acurácia do resultado final medido.

Não obstante, os componentes constituintes desses equipamentos que ficam em contato com o fluido são passíveis de desgastes, fadiga e corrosão, que podem interferir nos resultados apresentados pelo sistema e, dessa forma, exigem uma periodicidade de aferição e calibração (RIBEIRO, 2003).

No que se refere ao Brasil, todas as especificidades dos equipamentos que compõem a estação de medição, instalação, manutenção, calibração e rastreabilidade dos resultados medidos e os procedimentos no tratamento dos dados estão regulamentados na referida resolução da ANP/INMETRO (ANP, 2013). A Figura 1 e a Figura 2 demonstram um exemplo de estação de medição de vazão, composto por:

- retificador de fluxo;
- medidor de vazão;
- trechos retos à montante (com ou sem retificador de fluxo) e à jusante;
- transmissor de pressão estática;
- transmissor de temperatura;
- computador de vazão;
- dispositivo de calibração (normalmente medidor padrão/mastermeter ou provador de deslocamento mecânico/prover);
- amostradores de fluido (manual e/ou automático);
- analisadores em linha (teor de água no óleo e massa específica).

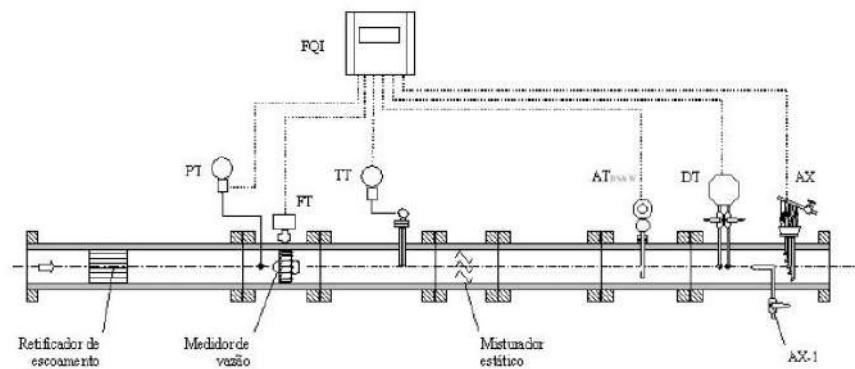


Figura 1. Exemplo de configuração do sistema de medição de petróleo em linha  
(SILVA FILHO *et al.*, 2010)



Figura 2. Exemplo de configuração de uma estação de medição de petróleo em linha  
(DUPUIS, 2014)

A análise de vazão de fluidos é complexa e nem sempre sujeita a uma análise por métodos numéricos, que nem sempre respondem com precisão ao fenômeno modelado, principalmente no caso de escoamentos de fluidos com as caraterisiticas do petróleo bruto e seus derivados. As condições de uso dos equipamentos de medição de vazão no campo dificilmente são reproduzidas em laboratórios de calibração. O regime de operação dos equipamentos sofre interferência por temperatura do meio, flutuação de pressão da linha, perfil de velocidades do escoamento e viscosidade, como também pelo ambiente externo, vibração, estresse da linha. Medidores diferentes respondem de maneiras diferentes a esses agentes, e, assim sendo, o medidor padrão também será suscetível a essas mesmas influências e dificilmente reproduzirá as condições que foram calibradas no laboratório e será confidente às alterações no regime de operação do medidor de vazão no campo (RIBERIRO, 2003, GHORBANI *et al.*, 2018).

Em oposição à complexidade desses sistemas de medição convencionais, as técnicas que utilizam radiotraçadores são relativamente mais simples, minimamente invasivas e, resguardadas as condições apropriadas em sua aplicação, são mais precisas. Em função de características singulares da interação entre a radiação e a matéria, principalmente a penetrabilidade da radiação, as técnicas que empregam radiotraçadores apresentam grande versatilidade na sua aplicação em dutovias, independente de suas dimensões, materiais constituintes de suas paredes e isolamentos e dos fluidos que são transportados neles. São técnicas reconhecidas por sua segurança, efetiva precisão, custos competitivos e tem seu emprego regido por certificações internacionais (IAEA, 2001).

Das técnicas que fazem uso de radiotraçadores, o método de transiente de tempo (MTT) é o mais aplicado na indústria. O MTT consiste na colocação de dois detectores posicionados em um duto, de seção transversal conhecida, a uma distância definida para registrarem o sinal durante a passagem da nuvem de radiotraçador injetado em um ponto a montante do primeiro detector. Com o auxílio de métodos estatísticos, é medido o tempo médio de residência e sua incerteza associada, e calculado, a velocidade média do escoamento. Essa técnica, apesar de simples e bem consolidada, apresenta duas restrições importantes que limitam o seu emprego: todo volume do duto compreendido entre os dois detectores tem que estar completamente preenchido pelo fluido e apresentar escoamento turbulento.

Embora haja uma vasta literatura sobre o emprego de técnicas de medição de vazão com o uso de radiotraçadores, a maioria retrata a aplicação em água e, em menor quantidade, em escoamentos gasosos. Entretanto, são raras as publicações que descrevem

seu emprego em derivados de petróleo na fase líquida. A AIEA relata que pesquisas e tecnologias nessa área foram e são desenvolvidas pelas grandes companhias de petróleo, mantendo em segredo os resultados e aplicações alcançadas (IAEA, 2001).

Na Figura 21, nota-se que o primeiro equipamento de entrada da estação de medição é um retificador de fluxo. Esse equipamento tem a função de equalizar o perfil de velocidades do fluidos no ponto de medição e garantir no trecho de medição na dutovia que o perfil de velocidades de escoamento seja semelhante ao encontrado em regimes de escoamento turbulento, condição *sine qua non* de operação de quase todos medidores de vazão. Nos trabalhos publicados na área de medição de vazão que utilizam técnicas de traçadores, não é observado o estudo e a verificação do regime de fluxo e do perfil de velocidades do escoamento no trecho de medição.

## 1.2. Objetivos

Embora exista uma norma ISO para medida de vazão com técnicas que fazem uso de radiotraçadores para escoamento em dutos de água e de gás, ISO 2975 (1977) e ISO 4053 (1978) respectivamente, não há uma norma específica para escoamento de óleo bruto e derivados líquidos de petróleo. O objetivo principal deste trabalho de pesquisa é desenvolver metodologia que permita o uso de radiotraçadores para qualificar tipos de escoamentos e medir a vazão usando o MTT em dutos da indústria de óleo e gás natural que atendam aos padrões da norma da ANP (ANP, 2010).

Como objetivos secundários, destacam-se:

- projetar e montar linhas de transporte de fluidos orgânicos;
- verificar a estabilidade do radiotraçador para diferentes condições de escoamento de derivados líquidos de petróleo;
- desenvolver uma metodologia de verificação de presença de depósitos de materiais que provocam pontos de estanção e volumes vazios na linha de transporte;
- desenvolver um dispositivo de varredura para ser empregado nas linhas de transporte de derivado líquido de petróleo para verificação de presença de escoamentos com perfis de velocidades estratificados.

.

### **1.3. Revisão Bibliográfica**

#### **1.3.1. Mecânica de fluido**

Em 1920, TAYLOR iniciou uma abordagem matemática por meio de métodos estatísticos do fenômeno de difusão de um traçador em um fluido em movimento contínuo, focando principalmente em regime turbulento (TAYLOR, 1922).

Posteriormente, novamente TAYLOR (1953) estudou o mesmo fenômeno, mas em dutos. Nesse trabalho, o autor desenvolveu um modelo matemático para escoamentos em regime estacionário não turbulento e afirmou que a dispersão do traçador em um escoamento, em regime estacionário, é proveniente da combinação da ação de convecção paralela à direção do escoamento e da difusão molecular de direção radial.

Na década seguinte, LEE (1960), em seus estudos, usou um traçador simples (solução salina de fluorescina e solução de sulfato de níquel) em uma grande tubulação de água subterrânea com diâmetro de 8 pés e determinou a vazão, a velocidade de escoamento, o coeficiente de dispersão e a quantidade de lodo que se depositou no tubo. Além disso, CLAYTON *et al.* (1963) estudaram a difusão do radiotraçador Kr-85 em um fluido compressível, ar, em encoamento, em regime turbulento.

KENNEY e THWAITES (1971) mediram o coeficiente de dispersão longitudinal para soluções de polímeros para escoamento aquoso. Os resultados experimentais que a teoria postulada por Taylor, que foi originalmente desenvolvida para escoamentos turbulentos na faixa de  $Re$  de 13.000, puderam ser extendidos para escoamentos com Número de Reynolds até 30.000.

PARK e GOMEZPLATA (1971) determinaram os coeficientes de dispersão axial em escoamento aquoso turbulento ( $Reynolds$  entre 3.800 e 11.500), em dutos com diâmetro de 6 polegadas com quatro curvas de 90 graus localizadas em intervalos de 50 polegadas. Além disso, demonstrou que o efeito das curvas sobre o coeficiente de dispersão geral depende do Número de Reynolds e de um comprimento característico.

ROUSSEAU *et al.* (1973) mediram o tempo médio de residência usando como radiotraçador Mn-56 na forma de soluções aquosas de  $Mn(NO_3)_2$ , injetado com pulso rápido em um sistema de dutos com dois detectores cintiladores instalados a 6 pés e 26 pés do ponto de injeção. Determinaram o coeficiente de dispersão usando os resultados da técnica de transformada de laplace momentos associados.

LANE *et al.* (1975) desenvolvem a teoria do efeito de diferentes perfis de velocidade na dispersão de um soluto não difusível no escoamento de fluido por um tubo reto. Estudos experimentais foram efetuados para monitorar o transporte de hemácias marcadas com NaCRO<sub>4</sub> e marcado com <sup>51</sup>Cr no sangue total em escoamentos dentro da faixa de viscosidade não newtoniana.

ENKAMBARA e JOSHI (2003) dissertaram sobre dispersão axial e o aprimoramento do modelo apresentado pioneiramente por Taylor em 1953. São citados trabalhos de diversos autores que identificam a limitação para a sua aplicação a escoamentos com Número de Reynolds maiores que 10 000. Abaixo desse valor, o comportamento do perfil das velocidades na região próxima à parede no tubo contribui significativamente para o aumento do coeficiente de difusão radial.

EBENEZER (2006) pesquisou a influência de incrustações nas vazões em dutos transportando derivados de petróleo. O autor apresentou um modelo matemático baseado na Teoria de Taylor de dispersão em dutos e dissertou sobre os conceitos de mecanismos de dispersão. EBENEZER (2006) afirma que geralmente a contribuição da dispersão longitudinal é da ordem de milhões de vezes maior que a da difusão molecular e da difusão turbulenta.

CRABTREE (2009) traz todo arcabouço referente à medição de vazão. O artigo apresenta uma retrospectiva bibliográfica sobre publicações referentes à medição de vazão e acompanha a evolução desses conteúdos. Em apêndice, acompanha um livro que disserta desde mecânica de fluidos a tipos de medidores e técnicas de medição

PEGORARO *et al.* (2012) desenvolveram estudo pormenorizado, adequando as funções estatísticas de distribuição de tempo de residência a modelos de perfil de velocidades em escoamentos em regime laminar não ideais. Quatro equações derivadas da teoria apresentada por DANCKWERTS (1953) foram apresentas e empregadas com resultados congruentes aos dados experimentais.

DANTAS *et al.* (2014) compararam resultados experimentais com valores obtidos com modelagem computacional de coeficiente de difusão radial para fluidos não ideais em regime de velocidades laminar. Por meio de funções estatística de distribuição de tempo de residência, derivadas a partir das ideais desenvolvidas por DANCKWERTS (1953), os autores, utilizando fluidos newtoniano e pseudoplástico, calcularam a efetiva difusão radial.

HART *et al.* (2016) confrontam os resultados obtidos por meio de experimentos com água em regimes de escoamento laminar, de transição e turbulento, com a teoria de

Distribuição de Tempo de Residência (RTD) e estabeleceram limites de validade desse modelo. Os autores afirmam que, tanto o modelo proposto por Taylor para dispersão axial quanto para a RTD apresentada por DANCKWERTS (1953), não se mostram compatíveis ao representar escoamentos que possuam Número de Reynolds inferiores a 3 000.

TAKEUCHI *et al.* (2016) analisaram o comportamento de névoa de óleo em gás transportado em dutos com escoamentos em regime de transição e observaram que há presença de perturbações no perfil de velocidades em extensões maior que 2 000 diâmetros do duto. Eles creditam essas flutuações à interação da névoa com a parede rugosa do duto.

ARADHYA *et al.* (2017) analisaram, por meio de parâmetros estatísticos, perfis de velocidades e regimes de escoamento em sistemas bifásicos gás-sólidos utilizando uma fonte selada de Cs-137 e um sistema de detecção bem colimado.

ROSSI *et al.* (2017) buscaram parâmetros de correlação com os coeficientes de dispersão axial em escoamento laminar para diferentes geometrias, principalmente em militubos helicoidais. Utilizando água como meio e tinta como traçador, eles trabalharam com escoamentos que apresentavam Número de Reynolds bem pequenos, próximos de 20 e menores que 120.

### **1.3.2. Incerteza de medição de petróleo e derivados**

ZVIRIN e SHINNAR (1976) afirmam que geralmente a precisão da medição por meio de traçador mostra dependência significativa com o ponto de injeção do traçador e que a vazão pode ser calculada por meio do primeiro momento da curva de concentração vs tempo. Contudo, o erro associado à medição e aos seus parâmetros pode ser relativamente maior se obtidos pelo segundo momento da curva de concentração vs tempo.

SILVA FILHO *et al.* (2010) ressaltam a importância da acurácia nas medições na indústria de petróleo desde a prospecção com base na ISO GUM e na portaria conjunta ANP e INMETRO. Eles abordam as especificidades de métodos de medição, normas de instalação de equipamentos e as incertezas exigida para cada tipo de movimentação de petróleo e derivados.

A ANP e o INMETRO (2010, 2013) normatizam todo o processo de medição de petróleo em todas as etapas no país. Entre outros aspectos importante para a medição, consta a regulamentação que abrange o uso de cada tipo de medidor de vazão, desde o seu posicionamento à instalação de seus respectivos equipamentos auxiliares exigidos, a periodicidade de aferição e a calibração destes e a precisão exigida para cada tipo de movimentação e fluido.

SPITZER (2010) apresentou os conceitos de repetibilidade e precisão e descreveu sobre a importância de um medidor apresentar repetibilidade e precisão dando exemplos. Ele afirma que é impossível um medidor ter acurácia sem ter repetibilidade.

MARSHALL (2013) descreve que, além das condições e propriedades do fluido, diversos fatores operacionais influenciam na acurácia da medição de vazão e na calibração de medidores de vazão. Além disso, ressalta a importância do conhecimento do perfil de velocidades do escoamento na região do duto em que é feita a medição.

DUPUIS (2014), em um artigo com o subtítulo “quando dinheiro troca de mãos, a precisão da medida de vazão é importante”, expõe a relevância de se ter acurácia na medição na indústria de petróleo, apresentando um exemplo de um oleoduto no Alasca que a incerteza de 0,1% representa US\$ 278 000,00 por dia. O autor elenca as agências reguladoras de diversos países e afirma que, apesar de existir inúmeros tipos de medidores de vazão na indústria em geral, muitos deles não são apropriados para serem empregados na indústria de petróleo. Além disso, ressalta a necessidade de instalação de equipamentos em auxílio aos medidores de vazão para alcançar a precisão exigida por ela.

WAHID *et al.* (2017) dissertam sobre a técnica de Análise de Variância (ANOVA) e sua aplicação em um exemplo demonstrativo. Eles apresentam como condições de emprego que a amostra tenha ao menos três médias e o experimento tenha uma característica randômica.

### **1.3.3. Radiotraçador e técnicas**

Para um traçador, a ser utilizado num meio, são requeridas diversas características, sejam físico-químicas e/ou econômicas. Inicialmente, o emprego de radioisótopos como traçadores enfrentou vários desafios tecnológicos, principalmente, quanto à sua reação com o meio. Muitos radiotraçadores reagem com o meio, perdendo suas propriedades físico-químicas. Assim sendo, o desenvolvimento de novas técnicas para obtenção de radiotraçadores tornou-se imperativo.

No início da década de 50, JACOBSON (1952) fez referência ao emprego do bromo como radiotraçador em compostos orgânicos. Relatou que, como o elemento bromo é volátil e bastante corrosivo, deve ser irradiado, numa composição salina, principalmente, como brometo de potássio. Jacobson patenteou a técnica de separação do bromo da fórmula salina, que consistia em misturar brometo de potássio com brometo de alumínio anidro, numa câmara de vácuo, sob aquecimento até o ponto de fusão (próximo a 200°C), quando o gás bromo é alocado num recipiente selado. Em seguida, condensou e repetiu o processo de evaporação do brometo de alumínio até alcançar o equilíbrio. Ao final do processo, o gás bromo registrava 80% a 90% da atividade do brometo potássio irradiado.

No ano seguinte, DANCKWERTS (1953) descreveu como as funções de tempo de residência podiam medir e determinar o comportamento de fluxos de materiais em sistemas reais. O autor derivou as funções de distribuição do tempo de residência, distribuição de idade interna, função acumulativa de tempo de residência e tempo médio de residência.

HULL (1958) desenvolveu um novo método para calcular a vazão, usando radiotraçador, e denominou esse procedimento de técnica de contagem total. No seu trabalho, evidenciou as inúmeras restrições do uso de medidores de vazão mecânicos em dutos fechados e afirmou que a técnica de contagem total pode ser empregada em larga escala de vazão e em todos os tipos de escoamento, podendo até ser empregada em dutos parcialmente preenchidos. Num oleoduto que liga os estados americanos do Colorado e Utah, HULL (1958) fez uma injeção, do tipo pistão, de um radiotraçador e, com um contador Geiger, detectou a passagem da nuvem radioativa por diversos pontos do oleoduto. Embora as curvas das contagens tivessem formatos diferentes, as áreas abaixo das curvas eram constantes. Essas áreas representavam a contagem total detectada da atividade da nuvem radioativa extraída da radiação de fundo. Com a atividade injetada no duto conhecida, o fator de calibração, determinado pela reprodução em laboratório do mesmo arranjo de detecção utilizado *in situ* e mesmo radiotraçador, e a contagem total detectada pela passagem do radiotraçador, mediu a vazão com incerteza de 1%. O autor ressaltou que, para o emprego da técnica, era necessário que a vazão a ser medida fosse constante.

Na década seguinte, FRIES (1961) ressaltou as vantagens do emprego do  $^{198}\text{Au}$  como radiotraçador, para medição de vazão em dutos de petróleo, e patenteou dois

compostos estáveis, obtidos por meio da secura de cloreto áureo com adição de cianeto de sódio e anidrido sulfúrico.

AKERMAN e SZUCHNIK (1964) descreveram as características, as vantagens e as desvantagens do emprego de compostos químicos dos radioisótopos  $^{14}\text{C}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{82}\text{Br}$  e  $^{131}\text{I}$ , respectivamente, como radiotraçadores, para investigar a movimentação de materiais no refino e na indústria petroquímica. Os autores relataram que, embora  $^{14}\text{C}$  e  $^3\text{H}$  tenham boa adsorção aos compostos orgânicos, eles apresentam desvantagens, tais como: 1) meia-vida longa (5568 anos e 12 anos, respectivamente); 2) emissão de radiação gama de relativamente baixa energia (0,155MeV e 0,018MeV, respectivamente); e 3) custo elevado dos compostos de  $^{14}\text{C}$  e compostos de  $^3\text{H}$  instáveis. Confirmaram ainda que o  $^{36}\text{Cl}$  tinha propriedades físico-químicas semelhantes às dos hidrocarbonetos, porém possuíam meia-vida longa ( $4,0 \cdot 10^5$  anos) e que, apesar de compostos de  $^{131}\text{I}$  apresentarem características radioquímicas mais favoráveis, suas propriedades físico-químicas não eram adequadas. Segundo os autores, os compostos de  $^{82}\text{Br}$  apresentavam as melhores características de um radiotraçador para marcar escoamento de petróleo e seus derivados.

EVANS e ELY JR. (1964) formalizaram uma função que representa a equação obtida de forma empírica por HULL (1958) para a medida de vazão pela técnica de contagem total.

CLAYTON (1965) revisou o emprego das técnicas de injeção contínua, contagem total e transiente de tempo, em medições de vazão de líquidos e gases, em dutos fechados e canais abertos. Concluiu que o emprego de radiotraçadores permitiria se obter medidas de vazão com incertezas de 1% e descreveu as condições para que essa precisão fosse alcançada. Além disso, ressaltou como se deveria proceder para a escolha do radiotraçador.

Também no mesmo ano, CAMPBELL e ELLIS (1965), objetivando produzir um radiotraçador estável, termicamente e eletroquimicamente, para o Grupo de Pesquisas Industriais da Comissão de Energia Atômica Australiana, a ser empregado na indústria de petróleo australiana, desenvolveram uma técnica para a obtenção de ouro por processos químicos, por meio dos compostos  $\text{AuCl}_3$  e  $\text{HAuCl}_4$  adicionados à resina Ambertite (LA-1 LA-2), com rendimentos próximos de 100%.

GASPAR e ONCESCU (1972) afirmaram que os métodos de determinação de vazão, usando-se radiotraçadores, são similares aos originais métodos químicos, exceto as peculiaridades das aplicações práticas. Na abordagem sobre a técnica de contagem total, os autores descreveram os procedimentos para a determinação do fator de

calibração, em laboratório, assim como o uso da técnica para fluxos convergentes e divergentes.

A ISO (1977), em sua Norma ISO 2975-7, normatizou o emprego da técnica de transiente de tempo na medição de vazão de água em dutos fechados por meio de radiotraçadores. Na norma, foram explicitadas as condições requeridas à aplicação da técnica, os procedimentos, a seleção do traçador e a estimativa da incerteza da medida da vazão. Realizaram um ensaio experimental para medir a vazão, seguindo as instruções constantes na ISO 2975-7 (1977), usando um duto de 2 metros de diâmetro, 10 mCi de atividade de  $^{24}\text{Na}$ , na composição química de  $\text{NaHCO}_3$ , dois detectores distantes de 72 m e 172 m do ponto de injeção do radiotraçador. A vazão foi medida com uma incerteza de 0,5%.

GRACZYK e ILLER (1976) fizeram testes laboratoriais com o radioisótopo  $^{82}\text{Br}$ , visando investigar: o comportamento do fluxo de hidrocarbonetos; a dinâmica de fases no fluxo; a sua composição em diversas partes no equipamento de destilação; além da eficiência de purificação nos processos de obtenção de compostos de radiotraçador.

BARRY (1978) detalhou um estudo em aplicações da técnica de injeção contínua, podendo ser estendida à técnica de contagem total contínua de situações, em que a homogeneização do traçador com o meio não é alcançada no ponto de detecção, e propôs equações para medir a vazão e sua incerteza, desde que se conheça a média ponderada da concentração ou um fator de correção através de média aritmética das concentrações.

SHOWALTER *et al.* (1988) descreveram as vantagens do emprego de traçadores radioativos no controle de deslocamento de volumes de petróleo. Os autores patentearam o uso de radioisótopos dos grupos VIB, VIIB e de terras raras presentes na tabela periódica, na verificação da permeabilidade de jazidas de petróleo, quando uma pequena quantidade de óleo marcado era misturada ao óleo a ser injetado em um poço. Segundo eles, por meio da detecção desse óleo marcado, podia-se analisar o caminho percorrido pelo óleo injetado e a permeabilidade do poço.

No Guidebook da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 1990), consta a recomendação de que a técnica de transiente de tempo seja empregada em sistemas com dutos fechados, onde o volume, na seção em que a medida for feita, é conhecido. Ainda recomenda que a injeção do traçador no fluxo deva ser na forma de um pulso rápido (tipo pistão). A concentração do traçador será detectada por dois detectores, posicionados após a distância de homogeneização, em dois pontos externos à tubulação. Analisadores de sinal fornecerão as medidas que, por meio das funções estatísticas de

distribuição de tempo de residência, determinarão o transiente de tempo entre os dois pontos de detecção. A técnica de contagem total é abordada de forma abreviada, destacando que ela poderá ser empregada, na situação de escoamentos em canais abertos, através da imersão do detector. É ressaltada a recomendação de que a contagem total seja de 40 000, para alcançar a acurácia de 1%, para um nível de confiança de 95%.

GODLEY (2002) descreveu as condições em que a água escoa em dutos parcialmente preenchidos, principalmente, numa rede de esgoto. Descreveu os diversos métodos e equipamentos usados para a medição da vazão e suas respectivas normas específicas de uso. Ressaltou que o uso de traçadores é vantajoso, quanto ao acesso imediato aos resultados, evitando o custo de análises laboratoriais.

RAMOS (2006) realizou medidas de vazão de escoamento de água em tubulações, empregando as técnicas de transiente de tempo, contagem total e um contador calibrado. RAMOS (2006) encontrou incertezas relativas, entre as medidas pela técnica de transiente de tempo e o contador calibrado, de 1%. Com relação às incertezas relativas, entre as medidas com a técnica de contagem total e o contador calibrado, foram calculadas em 2,5%, para a vazão de  $0,13 \text{ l} \cdot \text{s}^{-1}$ , 4%, para a vazão de  $0,071 \text{ l} \cdot \text{s}^{-1}$ , e 14%, para a vazão de  $0,03 \text{ l} \cdot \text{s}^{-1}$ . Ele destacou que a vazão mais lenta propiciou um efeito calda, no gráfico representativo das contagens, gerando um erro maior na medida da área sob a curva. Como alternativa para diminuir essas incertezas, sugeriu o aumento da atividade do radiotraçador a ser inserido no sistema, sob injeção mais rápida possível.

SHARMA (2007) pesquisou os processos nucleares de ativações dos isótopos:  $^{232}\text{Th}(n; \gamma)$ ,  $^{232}\text{Th}(n; 2n)$ ,  $^{197}\text{Au}(n; \gamma)$ ,  $^{197}\text{Au}(n; \alpha)$ ,  $^{197}\text{Au}(n; xn)$ ,  $^{59}\text{Co}(n; \alpha)$ ,  $^{59}\text{Co}(n; xn)$ ,  $^{181}\text{Ta}(n; \gamma)$  e  $^{181}\text{Ta}(n; xn)$ , incidindo um feixe de prótons de 1GeV de energia sobre alvos cercados por 6,0 cm de parafina e determinou as seções de choque relativas às reações nucleares, respectivamente. Os resultados para a reação  $^{197}\text{Au}(n; \gamma)^{198}\text{Au}$  foi a emissão de radiação  $\gamma$  com 411.80 keV e uma seção de choque correspondente a  $26.9 \pm 0.67$  barns (1 barn= $10^{-24} \text{ cm}^2$ ).

A Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 2008) publicou o relatório nº 31 dedicado ao treinamento de operadores em aplicações radioiodo radiotraçadores, nas quais as funções de tempo de residência (RTD) foram abordadas, de forma detalhada, assim como: suas aplicações na indústria e no meio ambiente, a escolha de radiotraçadores, as técnicas de medida de vazão e os tipos de injeção de radiotraçadores.

AL-DAHHAN (2008) fez uma revisão de aplicações de técnicas que empregam radioisótopos, seja com radiotraçadores ou fontes seladas, na indústria petroquímica para monitorar, controlar, inspecionar, otimizar processos e equipamentos. O autor descreve o uso de Funções de Distribuição de Tempo de Residência (RTD) e rastreamento de partículas marcadas em equipamentos industriais. Nesse trabalho, AL-DAHHAN (2008) elenca também características que um radiotraçador deve apresentar.

CANDEIRO (2008) desenvolveu uma unidade móvel para a produção de radiotraçador gasoso brometo de metila,  $\text{CH}_3\text{Br}$ , marcado com o radioisótopo  $^{82}\text{Br}$ . Empregou a técnica de transiente de tempo para medir a vazão de sistemas gasosos, em tubulações com diversos diâmetros, que resultaram incertezas de 2% nas medidas efetuadas.

SIRELKHATIMI *et al.* (2008), buscando obter melhorias no projeto, empregaram cinco detectores de NaI(Tl) (1"x1") e injetaram 150 mCi do gás  $^{41}\text{Ar}$ , em processadores na indústria petroquímica. Empregando as funções estatísticas de tempo de residência, constataram a ocorrência de comportamentos do tipo canalizações e falhas quanto à mistura perfeita de materiais.

BRANDÃO *et al.* (2009) desenvolveram uma metodologia de marcação em compostos orgânicos com  $^{123}\text{I}$  (fotópico 159 keV). O grupo alcançou com esse método uma eficiência de 80% a 85% na transferência do Iodo inicial para o composto orgânico.

SERAJ *et al.* (2010), ao utilizarem traçadores fluorescentes e radioativos, apresentaram as correções que devem ser consideradas nas medições de um medidor de vazão Venturi, quando empregado num duto que transportava gás, na presença de água e de condensados (óleo). Neste trabalho, foram apresentadas algumas vantagens do uso de radiotraçadores para determinar essas correções. O fator de correção foi determinado, mediante o posicionamento externo de duas fontes diferentes, emissores de radiação  $\gamma$  num lado da tubulação, e um detector posicionado diametralmente oposto a elas. Através da perda de intensidade do fluxo de radiação  $\gamma$  e do conhecimento das densidades das fases, determina-se o fator de correção.

KASBAN *et al.* (2010) analisaram o emprego de radiotraçadores na indústria e os procedimentos adequados para determinar a distribuição do tempo de residência, o tempo de mistura, medição de vazão, detecção de incrustações e vazamentos em dutos subterrâneos. Além disso, investigaram colunas de destilação e defeitos de solda em tubulações.

SHEORAN *et al.* (2018) apresentam uma revisão do uso da técnica de Distribuição de Tempo de Residência (RTD). Os autores destacam as vantagens do uso de radiotraçadores frente aos traçadores convencionais (corantes, eletrolíticos, íons, ácidos e bases). Os autores apresentam diversos radiotraçadores empregados na indústria petroquímica especificando quais processo/equipamento no qual pode ser aplicado.

## CAPÍTULO 2

### Fundamentos Teóricos

#### 2.1. Fluidos

Segundo FOX e MCDONALD (1988, p. 2), “fluido é a substância que se deforma continuamente sob a ação de um esforço (tensão) tangencial, não importando quão diminuto é esse esforço”.

Uma das características fundamentais de um fluido (líquido ou gás) é sua viscosidade. Em uma conceituação simples, é uma força de atrito interna entre as diferentes camadas do fluido à medida que passam uma pela outra. Em um líquido, isso ocorre devido à coesão das forças entre as moléculas enquanto em um gás surge de colisões entre moléculas (CRABTREE, 2009). Em condições normais, quando um fluido se comporta de maneira que as taxas de deformação são proporcionais às tensões tangenciais aplicadas, ele é denominado Fluido Newtoniano e, quando essa condição não é observada, o fluido é classificado de não-Newtoniano (FOX, MCDONALD, 1988). Fluidos podem ainda ser classificados como incompressíveis ou compressíveis, dependendo se sua densidade sofre alteração quando sofrem a aplicação de força externa.

##### 2.1.1. Teoria geral do escoamento de fluidos em dutos

Dentro das tubulações, o regime de escoamento está associado às condições de contorno (pressão, sistema de bombeamento, curvas, válvulas, conexões, variações de diâmetro) e às propriedades químicas/físicas do fluido (densidade, viscosidade, temperatura). O regime de escoamento pode ser classificado quanto a:

**a) posição:**

- **interno:** o fluido é forçado a fluir completamente limitado por superfície sólida, isto é, o escoamento acontece em dutos ou tubulações totalmente preenchidos. Quando o escoamento ocorre dentro de um duto, mas não ocupa toda a sua seção transversal na qual há uma superfície livre sujeita a pressão constante, é denominado fluxo em canal (FOX, MCDONALD, 1988);
- **externo:** o escoamento ocorre imerso em meios fluídicos ilimitados.

**b) perfil de velocidades de escoamento:**

- **laminar:** o escoamento laminar ocorre quando as partículas do fluido se movem de modo suave e contínuo (FOX, MCDONALD, 1988), em linhas retas, paralelas ao eixo da tubulação, de modo ordenado e com pouca deformação. Ele pode ser considerado como o escoamento em que toda a turbulência é amortecida pela ação da viscosidade e é observado em escoamentos muito lentos.

Em escoamentos dutoviários terrestres de petróleo e derivados com altas viscosidades (normalmente superiores a 200 cSt, a depender do diâmetro nominal e da temperatura do escoamento), é comum a ocorrência de escoamento laminar. Segundo SANTOS, 2019, esses dados são valores típicos de transporte dutoviário terrestre de petróleo.

Eroneamente se pensa que é mais fácil medir vazões laminares. Nos casos reais em plantas industriais, a maioria dos escoamentos é turbulenta, e muitos medidores só conseguem medir vazões com Número de Reynolds acima de um determinado limite, tipicamente de  $10^4$  (RIBEIRO, 2003);

- **turbulento:** ocorre quando as partículas de fluido não se movem em trajetórias bem definidas, ou seja, as partículas descrevem trajetórias irregulares, com movimento aleatório. No escoamento turbulento, as velocidades locais e as pressões variam aleatoriamente, de modo que as partículas não seguem a mesma trajetória, formando redemoinhos, conforme mostrado na Figura 3.
- **transição:** na transição entre os regimes laminar e turbulento, ocorre alguma mistura entre as camadas e as linhas de fluxo tornam-se onduladas. HART (2013) e CRABTREE (2009) afirmam que a transição entre o regime laminar e turbulento se encontra na região  $2\ 000 < Re < 4\ 000$ .

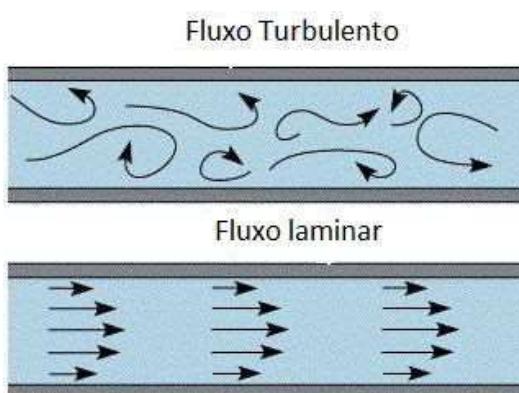


Figura 3. Esquema de escoamento laminar e turbulento (CFD SUPPORT, 2021)

c) **tempo:**

- **Estacionário:** as características do fluido (velocidade, pressão, densidade) em um ponto não mudam com o tempo. Em um escoamento estável, a velocidade de escoamento, em qualquer ponto do escoamento, não sofre alteração no tempo. Ela é constante no tempo, mas não necessariamente será constante em todos os pontos do deslocamento.
- **Transitorio:** as características do fluido em um ponto mudam em relação ao tempo. Em um escoamento instável, a velocidade de escoamento varia com o tempo. Entretanto, se os valores flutuam em torno de um valor médio constante, a vazão poderá ser tratada como estável numa primeira aproximação (RIBEIRO, 2003).

d) **trajetória:**

- **uniforme:** um escoamento uniforme se caracteriza quando o perfil de velocidades é constante por todo deslocamento. Dessa forma, a pressão, a densidade e a viscosidade também permanecem constantes em todo volume transportado. O escoamento de líquidos sob pressão em tubulações longas com diâmetro constante é considerado uniforme, com a vazão estável ou instável;
- **não uniforme:** as características em um ponto do fluido mudam em relação ao espaço. Se a seção transversal de uma tubulação variar, durante o escoamento, será considerado como não uniforme.

e) **movimento rotacional:**

- **rotacional:** as partículas de fluido, enquanto seguem ao longo de linhas de fluxo, também giram em torno de seu eixo (geralmente em aplicações práticas, essa característica é desprezada), este tipo de escoamento é gerado em dutos onde existirem depósitos internos ou então quando existirem mudança na trajetória devido a curvas);
- **irrotacional:** as partículas de fluido, enquanto seguem ao longo das linhas de fluxo, não giram em torno de seu eixo.

O escoamento de um fluido pode variar em função de pressão e temperatura (INCROPERA, DEWITT, 2003). Essas grandezas interferem diretamente na velocidade de escoamento, na densidade e na viscosidade do fluido dentro de uma tubulação.

O escoamento de um fluido sem viscosidade é classificado como escoamento ideal, em que as forças internas, em qualquer seção transversal, são sempre perpendiculares a ela e, portanto, não há movimento rotacional das partículas em torno de seus centros de massa e nem tensão de cisalhamento. Na prática ele nunca é observado, mas sim o escoamento real, visto que todos os fluidos reais possuem algum grau de viscosidade. A Tabela 2 relaciona alguns fluidos com a temperatura e a viscosidade:

Tabela 2. Comparaçāo de viscosidades de varios fluidos (CRABTREE, 2009)

Fluido	Temperatura (°C)	Viscosidade $\mu$ (Pa.s)
Melaço	20	100
Glicerina	20	1.5
Óleo de motor (SAE 10)	30	0.2
Leite	20	$5 \times 10^{-3}$
Sangue	37	$4 \times 10^{-3}$
Água	0	$1.8 \times 10^{-3}$
Álcool etílico	20	$1.2 \times 10^{-3}$
Água	20	$1 \times 10^{-3}$
Água	100	$0.3 \times 10^{-3}$
Ar	20	$0.018 \times 10^{-3}$
Vapor de água	100	$0.013 \times 10^{-3}$
Hidrogênio	0	$0.009 \times 10^{-3}$

Diversos fenômenos influenciam o escoamento em um duto. Esses fenômenos têm origem nas interações entre molécula-molécula do fluido e moléculas-parede do duto, que acarretam o surgimento de dois processos em escoamentos: difusão radial e dispersão longitudinal.

### 2.1.1.1. A dispersão longitudinal

A dispersão é produzida pela difusão e pela mistura induzida por convecção. Ambas atuam na redução dos gradientes de concentração do traçador enquanto o fluido escoa pelo sistema (SVEIN, JON, 1992). Em um duto, a dispersão atua tanto na direção radial como na direção axial, direção do escoamento. A dispersão resulta da tensão de cisalhamento de velocidades nas paredes do duto, acarretando com que as moléculas

localizadas próximas à região das paredes tenham velocidades inferiores as moléculas que são transportadas na região central do duto (TAYLOR, 1953). A dispersão longitudinal está intrinsecamente ligada à viscosidade e à velocidade média do fluido transportado. Quando a relação entre o comprimento e o diâmetro do duto é maior que quatro o efeito axial é predominante e o efeito radial pode ser desprezado. Nesse caso, esse modelo é denominado dispersão longitudinal. Para esse modelo, a concentração C (t, x) é uma função do tempo e posição axial no pipeline, sendo descrita pela seguinte expressão 2.1.

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_L \frac{\partial^2 C}{\partial^2 x} \quad (2.1)$$

Onde:

C - concentração de traçador;

D<sub>L</sub> - coeficiente de dispersão axial ou longitudinal.

### 2.1.1.2. A difusão radial

Inicialmente, a partir de dois fluidos miscíveis separados por uma interface bem definida, gradualmente, por meio da difusão molecular, surge um volume de mistura. Esse mecanismo é produzido pelo movimento aleatório das moléculas do fluido que impõe um grau de resistência ao escoamento. A difusão radial tem desempenho importante em escoamentos, ou regiões específicas do volume interno do duto, com velocidades muito baixa, nesse sentido, em escoamentos de característica laminar ou em regiões próximas às paredes dos dutos (SVEIN, JON, 1992, EBENEZER, 2006). No escoamento laminar de fluidos através de tubos, a mistura axial acontece principalmente devido aos gradientes de velocidade, enquanto a mistura radial ocorre devido apenas à difusão molecular (LEVENSPIEL, 2000).

Na Figura 4, estão representados os processos de difusão radial e dispersão longitudinal. Desses dois mecanismos, surgem parâmetros que determinam uma característica de estado do escoamento que é de fundamental necessidade para o posicionamento do ponto de medição de vazão: o comportamento do perfil de velocidades do escoamento do fluxo interno em dutos e, consequentemente, a determinação da região

ao longo do tubo na qual o escoamento apresenta-se plenamente desenvolvido, isto é, onde o perfil de velocidades do escoamento não se altera.

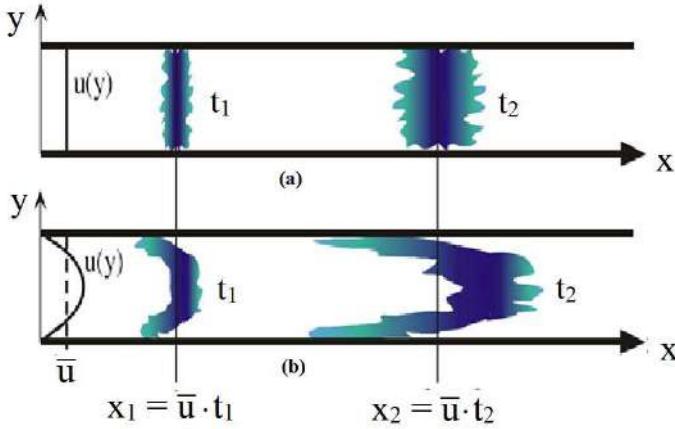


Figura 4. Representação dos processos de difusão radial (a) e dispersão longitudinal (b)

### 2.1.1.3. Número de Reynolds

Medidores de vazão são dispositivos que baseiam seu funcionamento na mecânica dos fluidos, e seus desempenhos são influenciados de alguma forma pela viscosidade do fluido. O comportamento do perfil de velocidades de escoamentos internos em dutos pode ser avaliado pelo Número de Reynolds. Ele fornece parâmetros que permitem, pelo menos numa primeira aproximação, por meio de modelos reduzidos, dados referentes ao regime do escoamento: se é laminar ou turbulento, e comprimento da região de entrada. O Número de Reynolds é um parâmetro adimensional e é intimamente ligado à viscosidade e à velocidade do fluido transportado. Ele descreve a relação entre a força de inércia imposta, que pode ser considerada como a propensão do fluido a continuar se movendo, e as forças viscósas, que podem ser compreendidas como a tendência dos fluidos a não se manter em movimento (STEVEN *et al.*, 2017).

O Número de Reynolds é definido pela expressão

$$R_e = \frac{\rho v D}{\mu} = \frac{v D_h}{\vartheta} \quad (2.2)$$

Onde:

$\rho$  – densidade do fluido [ $kg/m^3$ ];

$\mu$  – viscosidade [Pa.s];  
 $\vartheta$  – viscosidade dinâmica [ $m^2/s$ ];  
 $D_h$  – diâmetro hidráulico [m];  
 $v$  – velocidade média de fluxo [ $m/s$ ]

Por meio da expressão acima, observa-se que o regime de escoamento não é caracterizado somente pela velocidade de escoamento do fluido, mas também pela viscosidade, densidade e dimensão do duto. REYNOLDS (1883) determinou que, para valores pequenos de  $Re$ , o regime do escoamento é laminar e que, a partir de um valor crítico ( $Re_c = 2\,300$ ), começam a surgir turbulências, ocasionando uma transição para o regime turbulento e alcançando o regime turbulento plenamente par  $Re \approx 10^5$  (INCROPERA, DEWITT, 2003).

De modo geral, os valores para o Número de Reynolds apresentam flutuações para caracterização de regimes de escoamentos em sistemas reais. Para inferiores a 2 000, o escoamento encontra-se no regime laminar na qual forças atribuídas à ação da viscosidade são predominantes. A partir desse valor, as forças inerciais não podem ser desprezadas e o sistema começa a apresentar alguma turbulência. Para valores entre 4 000 e 10 000, o sistema promove turbulência continuamente no escoamento e segundo BENEDICT (1980), para  $Re$  acima de 10 000, o regime de escoamento tem um comportamento independente do modelo proposto por REYNOLDS (1883). HART (2013) afirma que a flutuação no valor de um Número de Reynolds crítico é em função de o mecanismo de transição em sistemas reais é mais complexo que o modelo proposto por O. Reynolds.

A Tabela 3 relaciona o regime de escoamento com o Número de Reynolds:

Tabela 3. Resumo dos regimes de escoamentos (BENEDICT, 1980)

Alcance	Regime	Descrição
$Re < 2000$	Laminar	Escoamento laminar
$2000 < Re < 4000$	Transicional	Turbulência intermitente
$4000 < Re < 10000$	Baixa turbulência	Turbulência contínua, forte dependência $Re$
$Re > 10000$	Turbulência total	Turbulência contínua, baixa/negligenciável dependência $Re$

#### 2.1.1.4. Perfil de velocidades

O perfil de velocidades do escoamento é provavelmente o mais importante e menos conhecido parâmetro de influência da vazão (RIBEIRO, 2003). Quando um fluido entra em contato com uma superfície rígida, em função da viscosidade, as partículas que tomam contato com a superfície aderem a estas e adquirem velocidade nula e retardam o deslocamento das partículas que estão na camada adjacente e assim sucessivamente. O retardo no deslocamento do fluido é resultado da ação de tensões de cisalhamento  $\tau$  nos planos paralelos à direção da velocidade do fluido. A taxa de variação do deslocamento  $du$  em função da altura  $y$  é denominada perfil de velocidade da camada limite ou perfil de velocidades do escoamento (INCROPERA, DEWITT, 2003). A Figura 5 abaixo descreve o desenvolvimento da camada limite e do perfil de velocidade sob uma superfície plana.

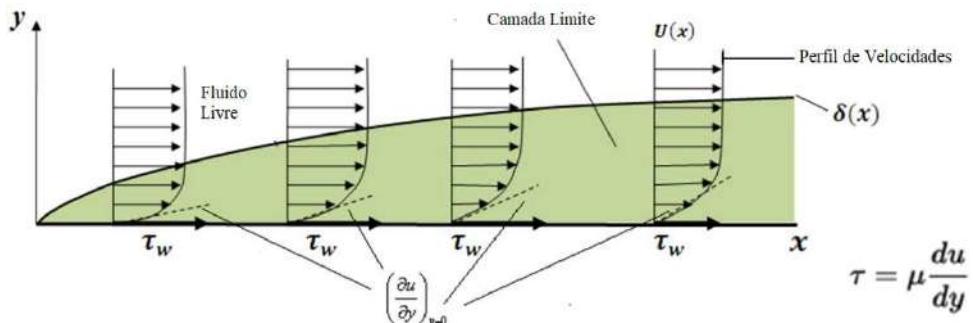


Figura 5. Desenvolvimento da camada limite e perfil de velocidade do escoamento  
(INCROPERA, DEWITT, 2003)

Em um escoamento interno, o fluido é forçado a escoar todo envolto por uma superfície rígida, e essa configuração interfere no desenvolvimento da camada limite. Quando o fluido entra no duto, a camada limite cresce em detrimento da região na qual o fluido escoa livre da ação de tensões de cisalhamento. Esse mecanismo ocorre à medida que o fluido é deslocado e cessa quando as camadas limites se encontram no centro do duto. A partir desse ponto  $X_{cd}$ , o perfil de velocidade permanece constante e considerar-se que o escoamento está plenamente desenvolvido. A Figura 6 abaixo descreve o mecanismo de entrada do fluido no duto:

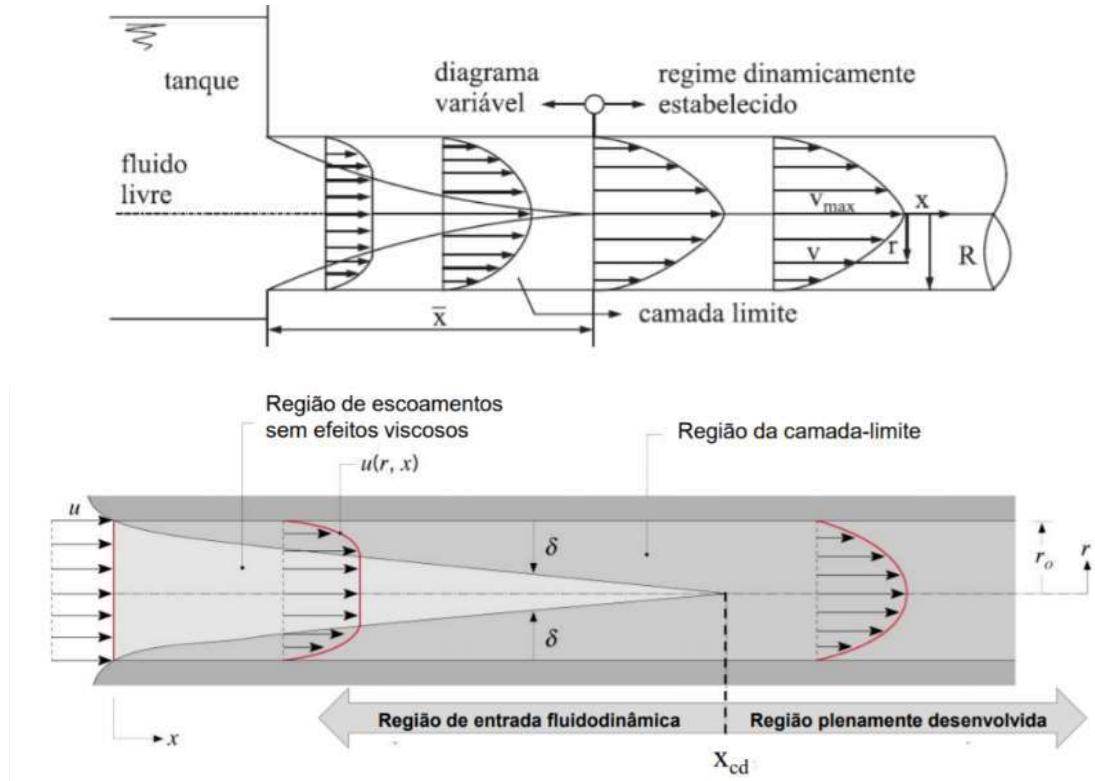


Figura 6. Mecanismo de entrada do fluido no duto (VICTOR, 2019, INCROPERA, DEWITT, 2003)

Na região em que o escoamento se encontra plenamente desenvolvido, o perfil de velocidades para um escoamento laminar apresenta perfil parabólico, regido pela equação (2.3), enquanto para o regime de escoamento turbulento, o perfil de velocidade segue a equação (2.4) e apresenta um formato tipo plugue, com velocidade nula na camada em contato com a superfície do duto (TAKEUCHI *et al.*, 2016).

$$u_y = 2U \left\{ 1 - \left( \frac{R - y}{R} \right)^2 \right\}, \quad (2.3)$$

$$u_y = 1.22U \left( \frac{y}{R} \right)^{1/7}. \quad (2.4)$$

A Figura 7 abaixo descreve o perfil de velocidade para os dois regimes:

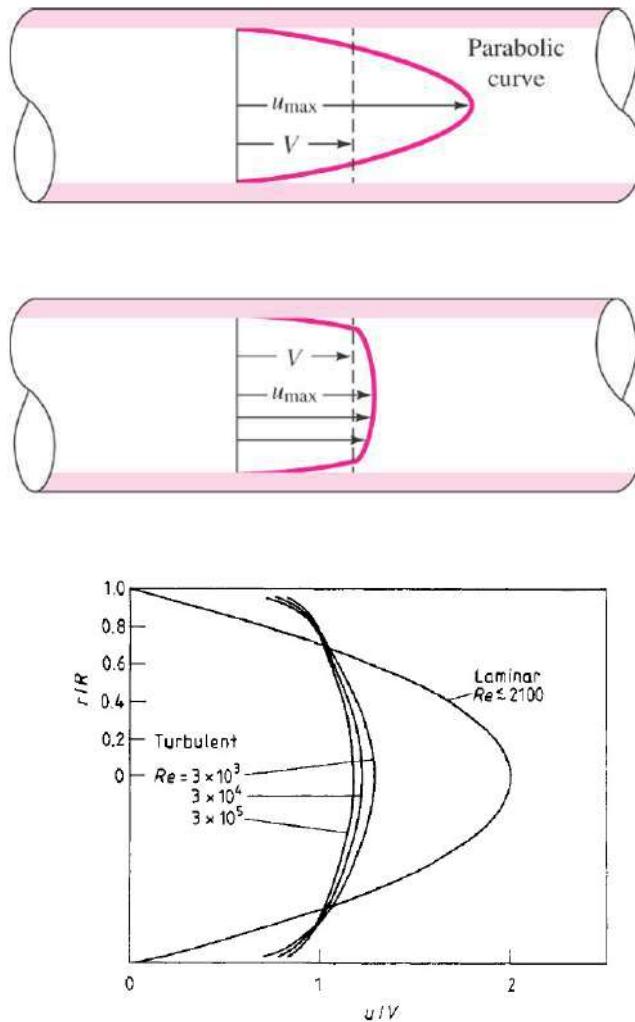


Figura 7. Perfil de velocidade para os regimes laminar e turbulento (BALIÑO, 2020, CHENG, HEYWOOD, 1984)

### 2.1.1.5. Região de entrada e comprimento de entrada

A região do duto que antecede ao ponto  $X_{cd}$  é classificada como região de entrada fluidodinâmica, e ela é a distância compreendida entre a entrada do duto e ponto  $X_{cd}$  e é denominada como comprimento de entrada. Esses parâmetros de escoamentos têm grande relevância na medição de vazão, pois servem como balizadores para as normas emitidas pelos órgãos reguladores para a determinação do posicionamento de instalação de sistemas de medição de vazão nos dutos. A equação (2.5) determina o comprimento de entrada para escoamento laminar ( $Re \leq 2\ 300$ ), e a equação (2.6) para escoamento turbulento HART (2013).

$$\frac{L_h}{D} = 0.06 R_e \text{ para escoamento laminar}$$

(2.5)

$$\frac{L_h}{D} = 4.4 R_e^{\frac{1}{6}} \text{ para escoamento turbulento}$$

(2.6)

É necessário ressaltar que a presença de sistemas de bombeamento, conexões, curvas, válvulas, dispositivos e variações de diâmetro do duto causam distorções no escoamento e podem interferir significativamente no perfil de velocidade, introduzindo assimetrias na distribuição de velocidade e degradando a acurácia da medição (MARSHALL, 2013, NMS, 2017). Nesse sentido, a região de entrada, para cálculo do comprimento de entrada, deve ter início a partir da mais próxima singularidade à montante do sistema de medição. A Figura 8 mostra o comportamento do perfil de velocidade na região próxima a uma curva.

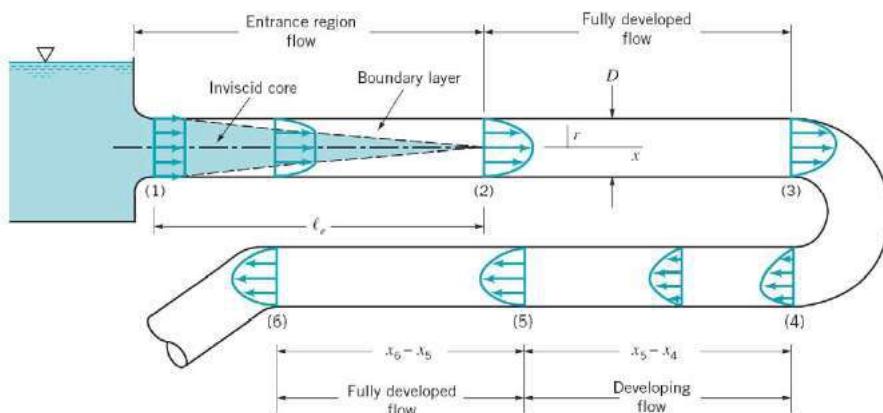


Figura 8. Comportamento do perfil de velocidade na região próxima a uma curva  
(GÜNER, 2016)

#### 2.1.1.6. Equipamentos retificadores de fluxo

Devido à demanda de engenharia do projeto, o trecho reto onde será instalado o medidor de vazão pode não compreender o comprimento necessário para ser atingido o

pleno desenvolvimento do escoamento. Esta situação exige instalação de um dispositivo denominado retificador de fluxo que uniformiza as distorções presentes no perfil de velocidades do escoamento, garantindo a ausência de distúrbios no escoamento que provoquem assimetrias acentuadas no perfil de velocidade, limitando a no máximo 5% a relação entre a velocidade axial em qualquer ponto da seção normal do duto e a velocidade axial máxima nessa mesma seção (MARTIM, 2005). A Figura 9 apresenta dois modelos de retificadores de fluxo.



Figura 9. Retificadores de fluxo (ITUFLUX, c1998, RDS, 2021)

## 2.2. Medidores de vazão para petróleo e derivados

Medir a vazão é uma atividade essencial em todas as etapas na indústria petrolífera e está intrinsecamente ligada às operações de deslocamento, produção, comercialização e fiscal. A medição de vazão de fluidos em linha é complexa e extremamente dependente de características físicas do fluido e das condições internas e externas do duto no qual é escoado. Durante o escoamento, elementos de volumes do fluido podem mover em velocidades diferentes e podem ser sujeitos a acelerações diferentes, apresentando perfil de velocidades próprio que podem influenciar drasticamente na acurácia da medição da vazão.

A medição de petróleo em linha é mundialmente realizada por meio de medidores de vazão dos seguintes tipos: deslocamento positivo, turbina, placa de orifício, Coriolis e ultrassônico. Entretanto, tecnicamente, com exceção do ultrassônico, é um processo invasivo que acarreta perda de carga, a sua aplicação é limitada pela tolerância da escala

do medidor e, principalmente, devido à alta suscetibilidade à corrosão e à erosão, que exigem maior demanda por manutenção periódica.

### 2.2.1. Medidores de deslocamento positivo

Seu funcionamento consiste na passagem do fluido através de suas câmaras de volumes bem definidos, constituídas por partições ou êmbolos, que proporcionam alta precisão à medição de vazão. O movimento alternado de preenchimento e esvaziamento dessas câmaras, provocado pelo escoamento, é registrado por um dispositivo em unidade de vazão. Na Figura 10, está apresentado um modelo de medidor de deslocamento positivo e o esquema do funcionamento. Esse tipo de medidor é empregado em situações de medição fiscal e transferência de custódia na indústria petrolífera, porém a imposição de ausência de impurezas, volumes estranhos ao meio e o alto custo de manutenção proporcionado pelo desgaste de seus componentes internos, que ficam em contato com o fluido transportado, implicam em um movimento de substituição desses medidores pelo mercado.

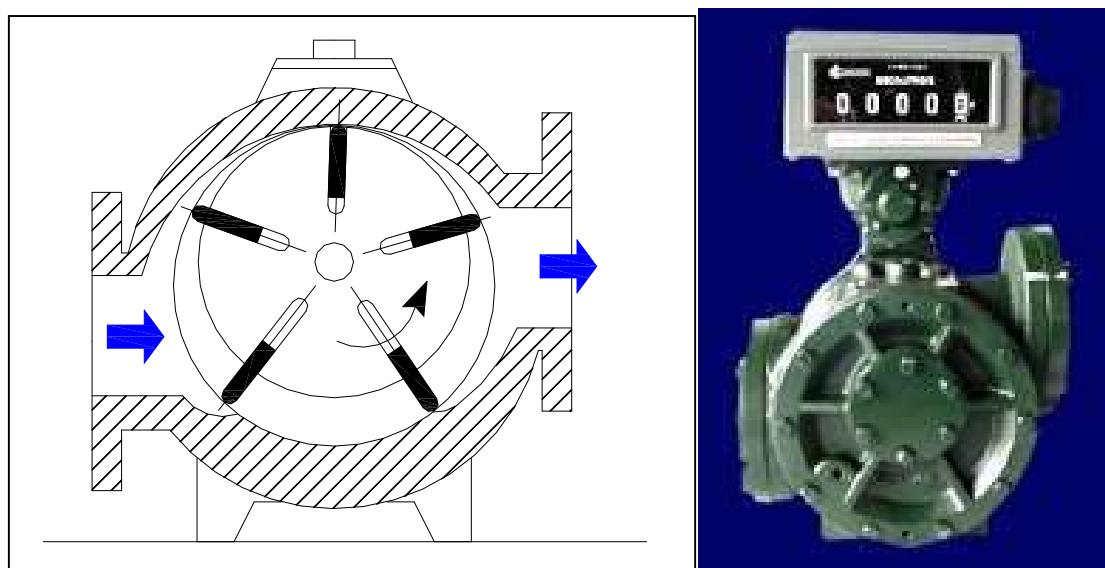


Figura 10. Medidores de deslocamento positivo (CAMPOS, 2018)

### 2.2.2. Medidores de turbina

O medidor de vazão tipo turbina é constituído de um rotor com pá que gira à medida que o fluido passa pelo medidor. Acoplado ao corpo do medidor, um sensor

magnético capta a rotação das lâminas e gera um sinal de frequência que é convertido em um output de vazão diretamente proporcional à velocidade angular da turbina. Diferentemente ao medidor de deslocamento positivo, o volume não é geometricamente bem definido. Sua precisão é da ordem de 1,0%, podendo chegar a menos de 0,25% e, por esse motivo, vem sendo empregado em situações de medição fiscal e transferência de custódia na indústria petrolífera, porém, apresenta a desvantagem por ser relativamente caro, e assim como o medidor de deslocamento positivo, o contato com o meio provoca desgastes de seus componentes internos, levando a alto custo de manutenção. A Figura 11 mostra modelos de medidores de turbina e seu interior.

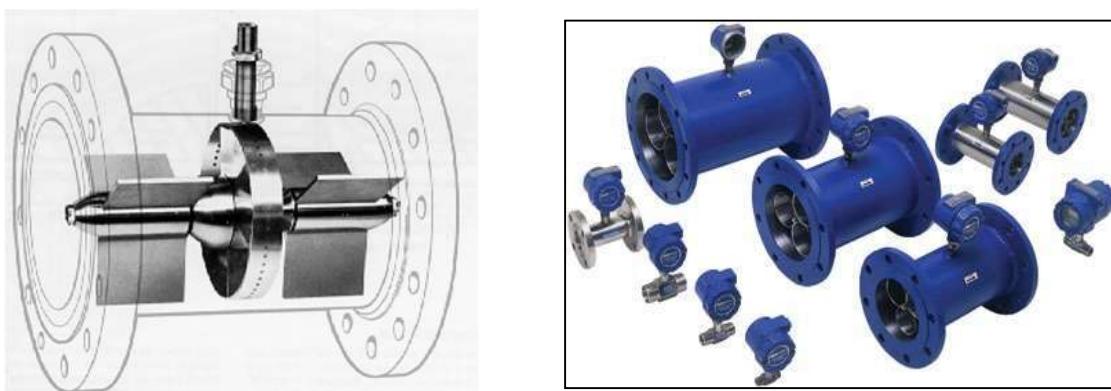


Figura 11. Medidores de turbina (CAMPOS, 2018)

### 2.2.3. Medidores de placa de orifício

Esse tipo de medidor de vazão é constituído, como o nome diz, por uma placa com orifício, que provoca uma redução da seção do fluxo, e é montada entre dois anéis que contêm furos para tomada de pressão em cada lado. Por meio da aplicação da equação de Bernoulli, associada a um fator de correção de coeficientes empíricos, obtém-se a vazão de maneira indireta. Na Figura 12, estão apresentados modelos medidores de placa de orifício e o esquema do funcionamento. Esse tipo de medidor é o mais utilizado pela indústria, aproximadamente 50% dos projetos o empregam em função de sua praticidade e relativo baixo custo de aquisição e manutenção, apesar de provocar grande perda de carga na linha e proporcionar baixa precisão (entorno de 3%).

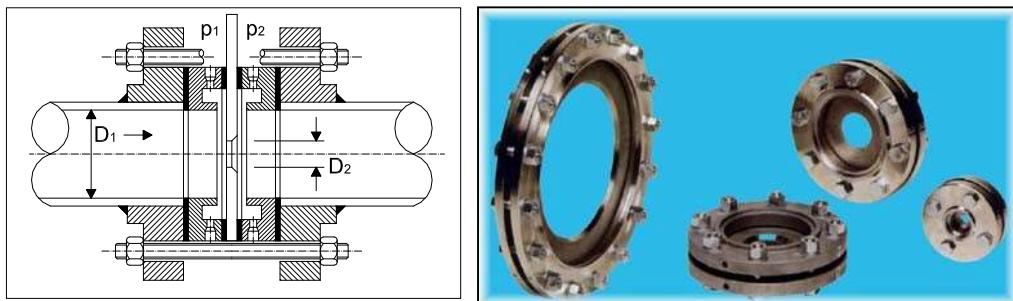


Figura 12. Medidores de placa de orifício (CAMPOS, 2018)

#### 2.2.4. Medidores eletromagnéticos

Os medidores eletromagnéticos operam baseados na Lei de Faraday de indução, que estabelece que, quando um condutor se move perpendicularmente ao campo magnético, é gerada uma tensão que é proporcional à velocidade desse condutor movimentando-se no campo. Desta forma, existe uma limitação muito significativa no emprego desse tipo de medidor: a vazão a ser mensurada tem que ser de um fluido condutor. Isso impede sua utilização para medir gases, vapor e todos os hidrocarbonetos. Na Figura 13, estão apresentados o esquema do funcionamento e modelos medidores eletromagnéticos.

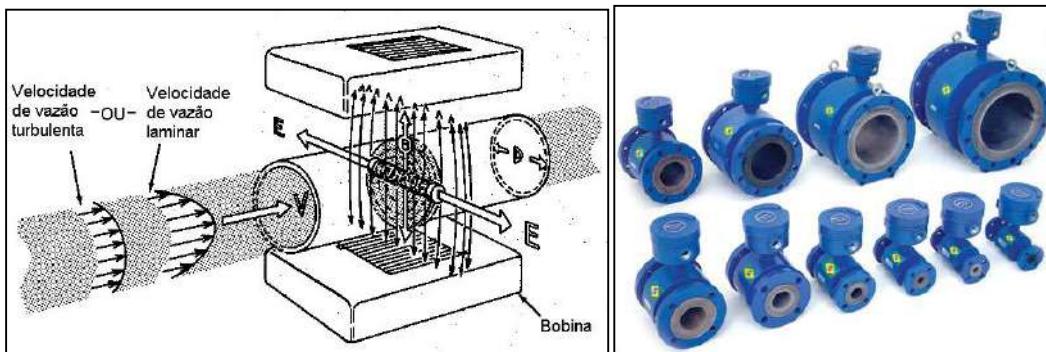


Figura 13. Medidores eletromagnéticos (CAMPOS, 2018)

#### 2.2.5. Medidores ultrassônicos de tempo de trânsito

Medidores ultrassônicos operam baseados no princípio de propagação de ondas através do fluido. Um ou mais pares de transdutores são instalados em posição oposta em relação ao diâmetro do duto, porém desalinhados de maneira a formar um ângulo não ortogonal em relação à direção de escoamento. Esses transdutores emitem e recebem trens

de ondas com frequência na faixa ultrassônica. O transiente de tempo entre a transmissão e o recebimento é sensivelmente menor quando orientada no sentido a favor do escoamento do fluido em comparação quando orientada contra o sentido do fluxo. Se o diâmetro do duto for conhecido, a vazão pode ser calculada. Na Figura 14, estão apresentados o esquema do funcionamento e um modelo medidores ultrassônicos. Por ser um medidor não invasivo, não proporciona perda de carga e nem sofre desgastes de seus componentes. Em condições apropriadas o medidor ultrassônico pode alcançar precisão de até 0,15%. O emprego desse medidor impõe que não haja a presença de impurezas ou bolhas no meio e que a seção transversal do duto se mantenha constante, livre de incrustações e volume morto na região de medição.

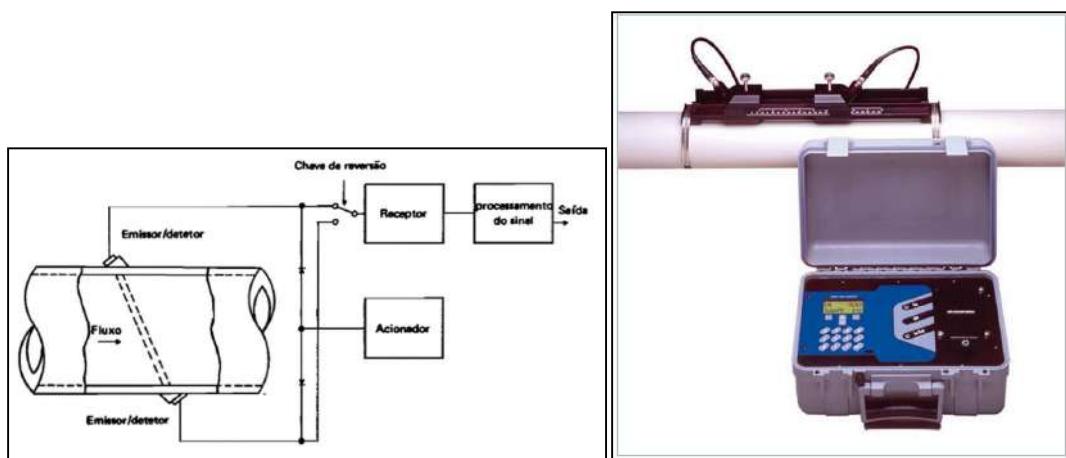


Figura 14. Medidores ultrassônicos de tempo de trânsito (CAMPOS, 2018)

## 2.2.6. Medidor massivo Coriolis

Quanto ao medidor de massa de Coriolis, seu princípio de funcionamento baseia-se no efeito de movimentos rotacionais do fluido, quando a força de Coriolis atua sobre ele. O fluido, ao percorrer um tubo curvo com uma frequência natural, geralmente em forma de “U”, provoca uma pequena deformação elástica no tubo e, dessa forma, altera sua frequência. Sensores magnéticos captam essa alteração, que é diretamente proporcional à massa e à velocidade do fluido. A Figura 15 mostra um modelo de medidor coriolis. Pelas características de funcionamento, um medidor Coriolis tem a vantagem de tornar sua operação independente do perfil de vazão, sendo capaz de registrar vazões quase nulas e sendo pouco afetado pelas mudanças de viscosidade e pelos efeitos de corrosão e abrasão. Ainda proporciona precisão muito alta, melhor que 0,1% em condições apropriadas, e, por esses motivos, muitas vezes, é empregado como medidor

calibrador. Em compensação, requer limpeza frequente do tubo (e sempre que houver mudança do tipo de fluido). Um fator a ser observado é que, como um medidor de vazão mássico, será necessário o conhecimento prévio da densidade do fluido, para se obter a vazão volumétrica. O medidor Coriolis requer, ainda, cuidados na instalação, pois é sensível a choques mecânicos e vibrações e produz alta perda de carga.



Figura 15. Medidor massivo Coriolis (CAMPOS, 2018)

### 2.3. Traçadores

Na indústria do petróleo, geralmente são movimentados grandes volumes de produtos, que exigem o emprego equipamentos de grandes dimensões tanto nas operações de transporte quanto nos processos de produção. A movimentação desses volumes pode ser monitorada por técnicas que fazem uso de traçadores que possibilitam controlar e inspecionar processos e equipamentos (AL-DAHHAN, 2018, KASBAN *et al.*, 2010, SHEORAN *et al.*, 2018).

Define-se como traçador qualquer substância injetada no fluido principal que possua alguma propriedade que possibilite a sua identificação e a observação de seu comportamento em processos físicos, químicos ou biológicos. Distinguem-se os traçadores em dois grupos: os naturais e os artificiais.

Traçadores naturais são aqueles encontrados no próprio meio de estudo, isto é, já estão presentes na população/material objeto de estudo. Como exemplos de traçadores naturais, citam-se:

- isótopos –  $^{14}\text{C}$ ,  $^{18}\text{O}$ ,  $^2\text{H}$ ,  $^3\text{H}$ ;
- biológicos – bactérias e algas.

Traçadores artificiais são os que são inseridos ao meio de estudo para observação. Por não serem naturais, seu emprego deve ser criterioso, principalmente quando for usado no meio ambiente. Entre os traçadores artificiais, podem ser destacados:

- convencionais – corante, eletrólitos, íons, ácidos, base;
- físicos: pulsos controlados de temperatura ou pressão.
- radioativos –  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{82}\text{Br}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{140}\text{La}$ ,  $^{198}\text{Au}$ .

A decisão do tipo de traçador empregado depende das condições onde o estudo será aplicado e de normas reguladoras (ambientais, radiológicas, de saúde). Por exemplo: na determinação de vazão em canais e rios os traçadores de corante exigem que sejam empregados quantidades elevadas e a liberação destas substâncias tem um controle rígido das normas ambientais. Da mesma forma o uso de traçadores radioativos, apesar de serem empregadas quantidades muito pequenas do traçador, exige a elaboração de um plano de proteção radiológica, pois a liberação de amostras radioativas depende da energia do radioisótopo, da meia-vida do radioisótopo e da atividade total da amostra.

Havendo a possibilidade de realizar a investigação usando um traçador não radioativo e sem incorrer em custos desproporcionais, nesse caso, deve-se optar pelo traçador convencional (IAEA, 2004). Contudo traçadores convencionais apresentam relevantes dificuldades operacionais para seu emprego: na maioria dos casos, sua determinação depende da coleta e análise em dispositivos externos e, em muitas plantas industriais não existe a possibilidade de coleta de amostras; outro ponto desfavorável é que estes traçadores sofrem a ação das condições de pressão e temperatura do meio, comprometendo a sensibilidade de registro (SHEORAN *et al.*, 2018).

Devido a sua característica de penetrabilidade na matéria, os traçadores radioativos são mais usados em processos industriais de diagnósticos em tempo real (IAEA, 2008), pois permitem que os detectores de radiação possam ser instalados externamente a unidade.

### **2.3.1. Radiotraçador**

O uso de técnicas que empregam radiotraçadores apresenta crescente demanda por parte indústria. Em função de suas características singulares, radiotraçadores agregam diversas vantagens, que podem ser citadas:

- são técnicas com procedimentos minimamente invasivos, pois a interferência que causam no sistema de processo é desprezível, podendo ser utilizadas sem a interrupção ou troca de rotina das plantas industriais;
- devido ao seu alto poder de penetração, podem ser utilizados em qualquer meio, independente do material que o recobre, portanto podem ser empregadas em sistemas opacos;
- não prejudicam a saúde dos colaboradores e o meio ambiente, nem as instalações da planta industrial, pois as alíquotas dos radiotraçadores injetados são de pequenas concentrações e, com escolha adequada do radioisótopo, tem um tempo de meia vida da ordem de horas (SHEORAN *et al.*, 2018).

Segundo CLAYTON (1965), SKJÆVELAND, KLEPPE (1992) e AL-DAHHAN (2008), a escolha do radiotraçador a ser utilizado em um meio deve apresentar as seguintes características:

- solubilidade e propriedades hidrodinâmicas compatíveis com as do fluido em estudo e não deve ser absorvido pelas paredes do sistema;
- estabilidade físico-química que garanta degradação insignificante durante a produção, estocagem, transporte e durante e após a injeção;
- meia-vida radioativa coerente com a conveniência de estocagem e o tempo de medição. Não obstante, sob o ponto de vista da radioproteção, recomenda-se a escolha de um radiotraçador de meia-vida curta;
- tipo de radiação emitida e sua energia, já que o volume de radiotraçador injetado é muito pequeno se comparado ao do fluido. O radiotraçador deve emitir radiações que possibilitem boa eficiência de detecção e discriminação. Nesse sentido, alguns emissores de radiação gama são adequados como traçadores, porque os raios gama penetram facilmente nos fluidos;
- custo acessível;
- garantir a segurança radiológica de todo o pessoal envolvido, não provocar danos aos equipamentos e ao meio ambiente.

Na Tabela 4, encontram-se listados os radioisótopos mais empregados na indústria segundo a IAEA (2001). Nela são observadas poucas opções de radioisótopos disponíveis para o emprego em fase orgânica, que gera dificuldades de escolha de radiotraçadores.

Tabela 4. Radiotraçadores mais usados na indústria (IAEA, 2001)

<b>Fase Empregada</b>	<b>Radioisótopo</b>	<b>Meia-vida</b>	<b>Energia [MeV]</b>	
	<b><sup>3</sup>H</b>	12,6 anos	$\beta$ :0,0018	(100%)
	<b><sup>14</sup>C</b>	5730 anos	$\beta$ :0,0156	(100%)
	<b><sup>24</sup>Na</b>	15 horas	$\gamma$ :1,37 $\gamma$ :2,75	(100%) (100%)
Aquosa			$\gamma$ :0,18	(4,5%)
	<b><sup>99</sup>Mo</b>	67 horas	$\gamma$ :0,74 $\gamma$ :0,78	(10%) (4%)
	<b><sup>99m</sup>Tc</b>	6 horas	$\gamma$ :0,14	(90%)
Aquosa				
Orgânica	<b><sup>82</sup>Br</b>	36 horas	$\gamma$ :0,55	(70%)
Gasosa			$\gamma$ :1,32	(27%)
Sólida			$\gamma$ :1,16	(95%)
Aquosa*	<b><sup>140</sup>La</b>	40 horas	$\gamma$ :0,92 $\gamma$ :0,82	(10%) (27%)
Sólida				
Orgânica*	<b><sup>198</sup>Au</b>	2,7 dias	$\gamma$ :0,41	(99%)
Mercúrio	<b><sup>197</sup>Hg</b>	2,7 dias	$\gamma$ :0,077	(19%)
Aquosa				
Orgânica	<b><sup>131</sup>I</b>	8,04 dias	$\gamma$ :0,36 $\gamma$ :0,64	(80%) (9%)
Sólida				
	<b><sup>46</sup>Sc</b>	84 dias	$\gamma$ :0,89 $\gamma$ :1,84	(100%) (100%)
	<b><sup>85</sup>Kr</b>	10,6 anos	$\gamma$ :0,51	(0,7%)
Gasosa				
	<b><sup>79</sup>Kr</b>	35 horas	$\gamma$ :0,51	(15%)
	<b><sup>41</sup>Ar</b>	110 min	$\gamma$ :1,29	(99%)

\*A Agência Internacional de Energia Atômica não faz menção a essas fases.

## **2.4. Funções distribuição do tempo de residência**

No período que se sucedeu ao pós-guerra, foi constatado um virtuoso desenvolvimento na indústria e, em particular, na indústria petroquímica. Equipamentos e processos físico-químicos complexos passaram a requerer metodologias mais adequadas para avaliação de funcionamento e eficiência.

A técnica de traçadores associada à metodologia estatística das funções de distribuição de tempo de residência (RTD) apresenta-se como uma das ferramentas mais adequadas para diagnóstico de processos industriais. Essa metodologia fundamenta-se na avaliação da interação de um pulso de um traçador ao interagir com os processos físicos/químicos que estão ocorrendo dentro da unidade. Considera-se que os elementos de volume de um material, fluindo através de um equipamento, percorram trajetórias diversas e, assim, apresentem tempos diferentes para percorrerem uma região do equipamento.

Para um determinado fluido escoando por uma unidade, define-se o tempo médio de residência como a média da distribuição de todos os intervalos de tempo medidos entre o instante de tempo da entrada e o da saída de todos os diferentes elementos de volume, e, como idade, o tempo transcorrido desde a entrada até a saída de cada elemento de volume (LEVENSPIEL, 2000).

Em uma unidade, o comportamento de um escoamento pode ser investigado por meio da análise das curvas da distribuição de tempo de residência de suas moléculas constituintes em um dado volume espacial. Essa teoria foi desenvolvida por DANCKWERTS (1953) que apresentou diagramas e funções denominadas Funções Distribuição do Tempo de Residência, as RTD, que, associadas à capacidade de penetração da matéria, tornam os radiotraçadores a metodologia ideal para o estudo e otimização de processos industriais.

A idade de cada partícula do radiotraçador, ao percorrer a unidade, possui sua “história” que é medida pelo seu tempo de permanência no interior da unidade. Desse modo, podemos relacionar parâmetros estatísticos com a média, variância, e os momentos estatísticos com o perfil de seu deslocamento pela unidade (BRANDÃO, 2003, p. 6). As funções RTD possibilitam a identificação de problemas operacionais que comprometem o funcionamento da unidade tais como: fenômenos de canalização, desvios, atalhos e volume morto (KASBAN, 2010).

Já em um sistema de dutos, as funções RTD podem ser empregadas para medir vazão e identificar o perfil de velocidades do escoamento do fluido dentro do duto (IAEA, 2004, LEVENSPIEL, 2011, DANTAS *et al.*, 2014).

Pela definição de idade (DANCKWERTS, 1953), a função distribuição estatística de tempo de residência,  $E(t)$ , é dada pela Equação 2.7:

$$E(t) = \frac{C(t)}{\int_{t_i}^{t_f} C(t) dt} \quad (2.7)$$

Onde  $C(t)$  é contagem registrada pelo detector em um determinado tempo entre a entrada e a saída, e  $t_i$  e  $t_f$  os tempos de entrada e de saída, respectivamente.

O tempo médio de residência,  $\tau$ , é definido pelo primeiro momento da equação 2.8:

$$\tau = \int_{t_i}^{t_f} t \cdot E(t) dt \quad (2.8)$$

Sendo sua variância  $S^2$  calculada pelo segundo momento:

$$S^2 = \int_{t_i}^{t_f} (t - \tau)^2 \cdot E(t) dt \quad (2.9)$$

É mais apropriado comparar os resultados de diferentes detectores usando a variável adimensional  $\theta$  e a curva RTD  $E(\theta)$  e eles são calculados usando:

$$\theta = t / \tau \quad (2.10)$$

$$E(\theta) = \theta \cdot E(t) \quad (2.11)$$

#### 2.4.1. Modelos para escoamento turbulento

O comportamento de processos em reatores pode tornar-se complexo e de difícil, ou impossível, solução analítica. Nesse sentido, é conveniente idealizar reatores que apresentem características que permitam simplificações apropriadas que possibilitem, em primeira aproximação, buscar similaridade com reatores reais.

Para escoamentos de fluidos homogêneos, em regime estacionários e turbulento, dois modelos de reatores ideais são considerados como representativos dos reatores reais: escoamento pistão e escoamento com mistura perfeita (LEVENSPIEL, 2000).

No reator de escoamento de fluxo pistão (PFR), para todo elemento de volume do fluido não há a presença do fenômeno de dispersão longitudinal e todo elemento de volume apresenta um tempo de residência igual (com dispersão desprezível) e o escoamento pode ser representado com na Figura 16.

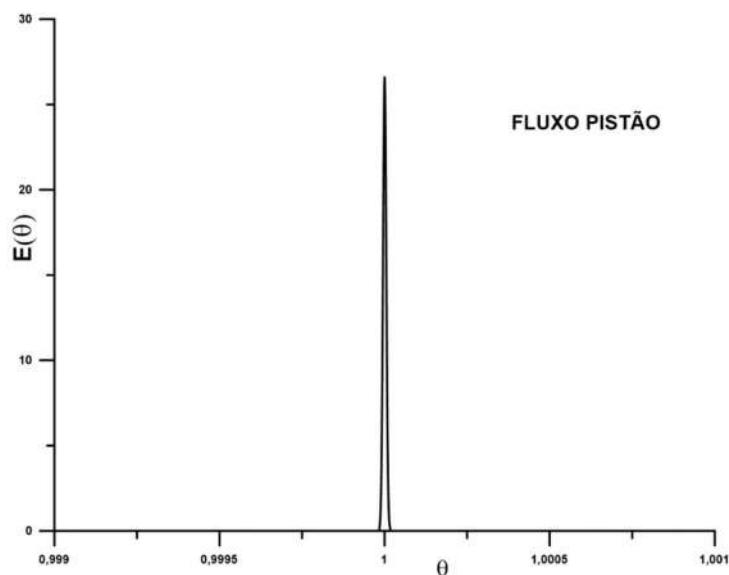


Figura 16. Representação gráfica do pulso de saída para o modelo fluxo pistão

No reator de escoamento de fluxo com mistura perfeita (CSTR), todo elemento de volume do fluido na saída da unidade apresenta a mesma concentração, portanto o escoamento da saída tem as mesmas características de qualquer elemento de volume dentro do equipamento (Figura 17).

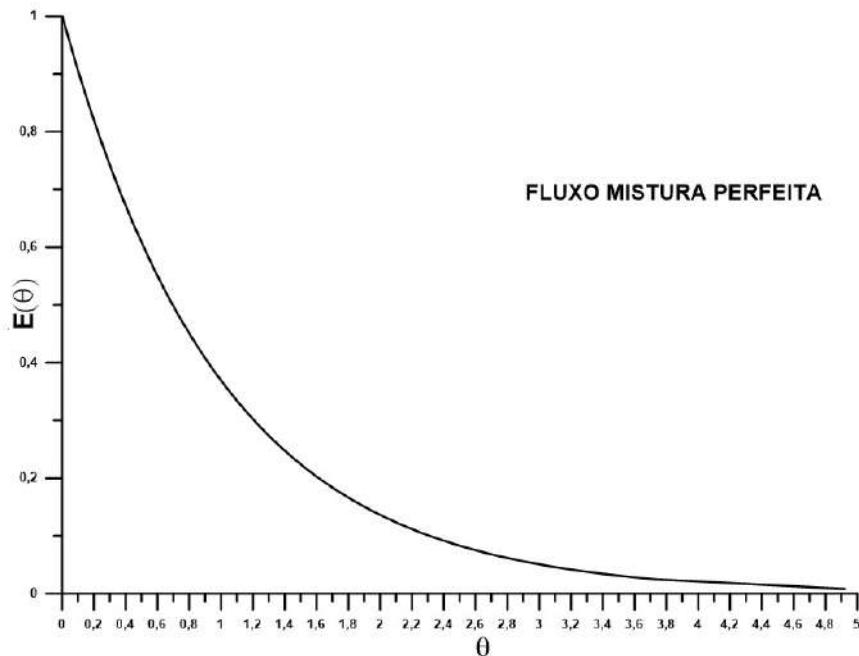


Figura 17. Representação gráfica do pulso de saída para modelo fluxo com mistura perfeita

Para medição de vazão, é possível considerar o escoamento em dutos como em um reator tubular com regime de fluxo turbulento e descrever esse sistema usando um modelo de fluxo pistão com dispersão, ou usando um modelo n misturadores perfeitos idênticos em serie. Entretanto, há de se colocar ressalvas no emprego desses modelos em escoamento laminar de fluidos viscosos, pois, a depender de seu perfil de velocidades do escoamento de formato parabólico, pode não ser adequado o uso do modelo de reator de escoamento pistão, principalmente em materiais de alta viscosidade (LEVENSPIEL, 2000).

Contudo, na prática, nenhum desses modelos matemáticos isolados consegue descrever o comportamento real de unidades industriais. Estas apresentam um comportamento entre escoamento tipo pistão perfeito e escoamento com mistura perfeita (SHEORAN *et al.*, 2018).

#### 2.4.1.1. Escoamento tipo pistão perfeito com dispersão

Como descrito na seção 2.1.1.1, a dispersão longitudinal está intrinsecamente ligada à viscosidade do fluido. A Figura 18 mostra um exemplo de dispersão longitudinal em um escoamento tipo pistão. Nela pode ser observado um espalhamento contínuo do traçador à medida que este escoa no duto, tornando, ao longo de seu deslocamento, o

formato da gaussiana mais achatado e com a base mais larga, contudo, preservando a simetria. Essa alteração do formato da gaussiana acarreta um aumento da largura meia-altura (FWHM), que provoca um incremento da incerteza no tempo médio de residência calculados pela RTD a medida que o ponto de medição onde está o detector se distancia do ponto de injeção do radiotraçador.

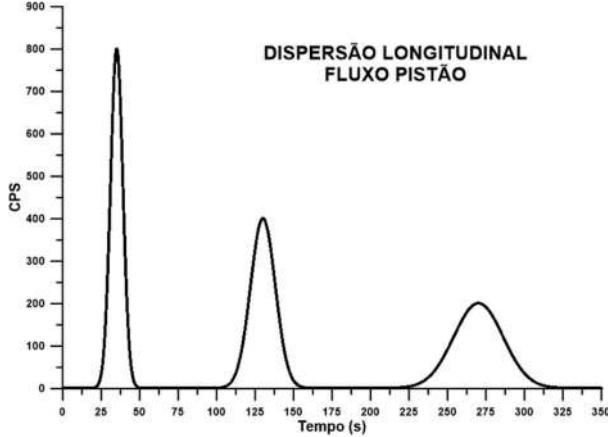


Figura 18. Representação gráfica de dispersão longitudinal ao lodo de um escoamento tipo pistão

O comportamento do escoamento de um fluido ao longo do duto pode ser determinado por um modelo de dispersão longitudinal considerando o parâmetro adimensional próprio às características do fenômeno de dispersão ( $D_L/uL$ ). Para valores de  $(D_L/uL) < 0,01$ , (escoamento com pequena dispersão) as funções que descrevem o escoamento obedecem à distribuição estatística Normal conforme as equações 2.12 e 2.13.

$$E(t) = \sqrt{\frac{u^3}{4\pi D_L L}} \exp\left[-\frac{(L - ut)^2}{4\left[\frac{D_L}{uL}\right]}\right] \quad (2.12)$$

$$(\theta) = \sqrt{\frac{1}{4\pi\left[\frac{D_L}{uL}\right]}} \exp\left[-\frac{(1 - \theta)^2}{4\left[\frac{D_L}{uL}\right]}\right] \quad (2.13)$$

Onde:  $D_L$  é o coeficiente de dispersão longitudinal ou axial;

$u$  é a velocidade média de escoamento do fluido;

$L$  é o comprimento da seção de estudo do duto.

À medida que  $(D_L/uL)$  assume valores menores, o modelo de dispersão longitudinal se aproxima ao modelo idealizado de escoamento tipo pistão perfeito, conforme pode ser observado na Figura 19.

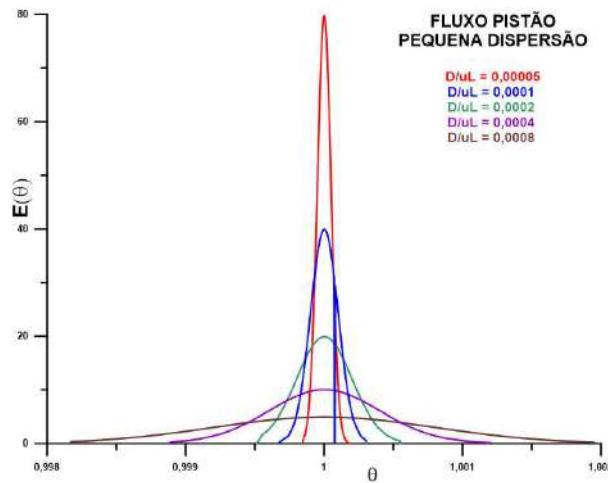


Figura 19. Representação gráfica de escoamento tipo fluxo pistão com pequena dispersão longitudinal

Para valores de  $(D_L/uL) > 0,01$ , (escoamento com grande dispersão) as curvas de saída são alteradas, e tem um comportamento , no limite, semelhante ao escoamento tipo misturador perfeito e são dadas segundo as equações 2.14 e 2.15.

$$E(t) = \frac{u}{\sqrt{4\pi D_L t}} \exp \left[ -\frac{(L - ut)^2}{4D_L t} \right] \quad (2.14)$$

$$(θ) = \frac{1}{\sqrt{4\pi \theta \left[ \frac{D_L}{uL} \right]}} \exp \left[ -\frac{(1 - \theta)^2}{4\theta \left[ \frac{D_L}{uL} \right]} \right] \quad (2.15)$$

A Figura 20 mostra o comportamento da curva de resposta para simulações de escoamento com alta dispersão.

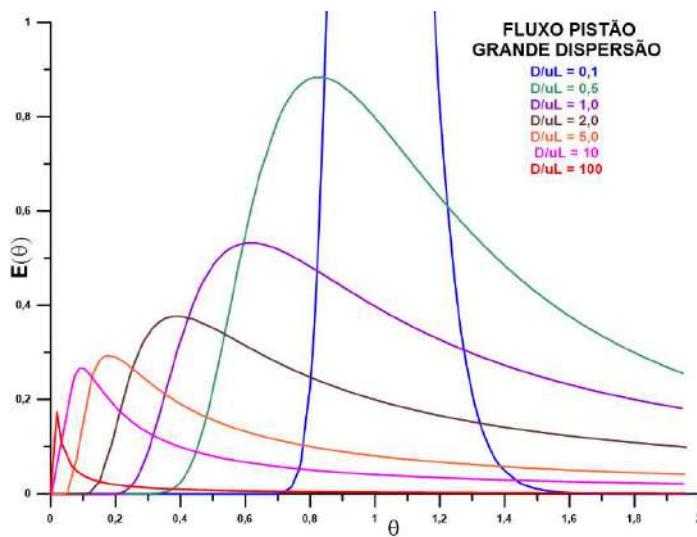


Figura 20. Representação gráfica de escoamento tipo fluxo pistão com grande dispersão longitudinal

#### 2.4.2. Modelo para escoamento laminar

Como afirmado por LEVENSPIEL (2000), para fluidos viscosos, o escoamento é predominantemente do tipo laminar, e a difusão radial sobrepuja o fenômeno de dispersão longitudinal e o perfil de velocidades assume um formato parabólico. Esta distribuição no perfil de velocidades do fluido dentro do duto provoca o incremento na incerteza no tempo médio de residência em decorrência da significativa variação da velocidade dos elementos de volume em relação a sua posição radial. A Figura 21 representa uma extração do comportamento de um fluido escoando de maneira laminar em um duto, e as equações 2.16 e 2.17 descrevem o seu comportamento.

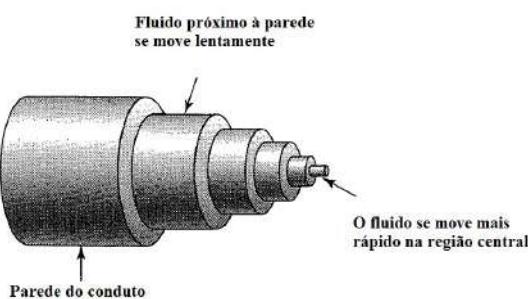


Figura 21. Variação da velocidade dos elementos de volume em relação a sua posição radial (LEVENSPIEL, 2000)

$$E(t) \begin{cases} = 0 & t < \frac{\tau}{2} \\ = \frac{\tau^2}{2t^3} & t \geq \frac{\tau}{2} \end{cases} \quad (2.16)$$

$$E(\theta) \begin{cases} = 0 & \theta < 0.5 \\ = \frac{1}{2\theta^3} & \theta \geq 0.5 \end{cases} \quad (2.17)$$

Na Figura 22, está apresentada uma representação gráfica da curva E(t) para o escoamento laminar.

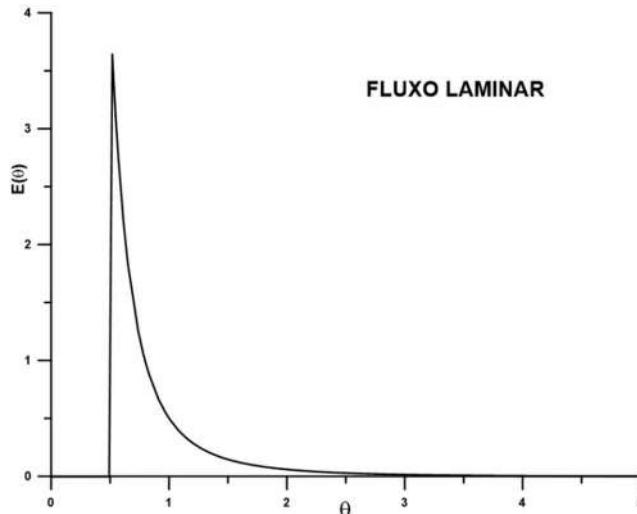


Figura 22. Representação gráfica RTD para o escoamento laminar

## 2.5. Técnicas de medidas de vazão usando radiotraçadores

Existem diversas técnicas para a medição de vazão por meio do uso de radiotraçadores. São técnicas reconhecidas por sua segurança, efetiva precisão, custos competitivos e tem seu emprego regido por certificações internacionais (IAEA, 2001), sendo três delas as mais recorrentes: Injeção Contínua, Contagem Total e Transiente de Tempo (GARDNER, DUNN, 1977). A técnica de Transiente de Tempo emprega funções estatísticas de distribuição do tempo de residência (RTD).

Em todas elas, é necessário que os detectores sejam posicionados na região de escoamento totalmente desenvolvido e em um ponto distante suficiente do ponto de

injeção, de modo a garantir que o radiotraçador esteja totalmente homogeneizado com o meio, conforme mostrado na Figura 23.

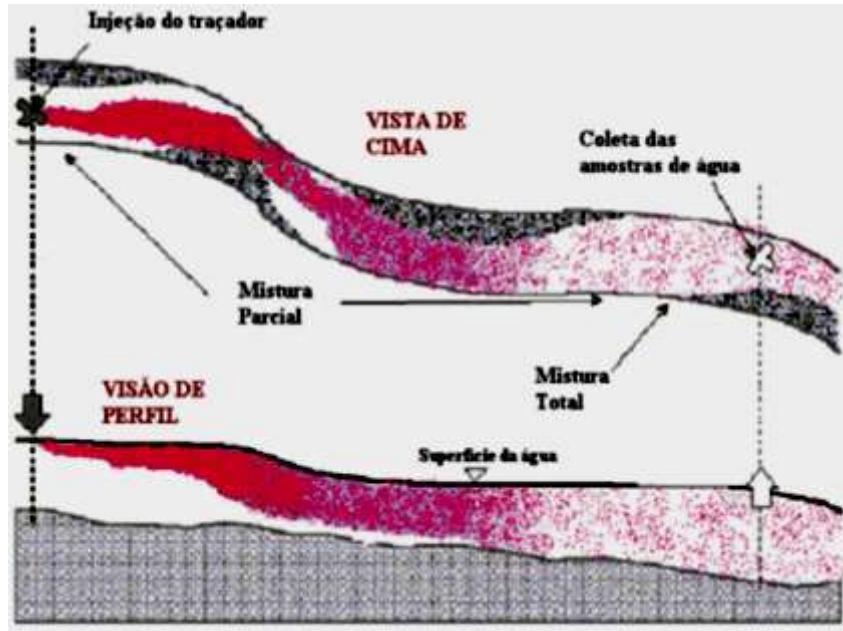


Figura 23. Localização adequada do ponto de medida a partir do ponto de injeção do radiotraçador (GONÇALVES, 2013)

### 2.5.1. Medida da vazão pela técnica da Injeção Contínua

A técnica de Injeção Contínua consiste em injetar um traçador no meio em estudo numa taxa constante  $q$  com uma concentração conhecida  $C_1$  e vazão  $Q$ . Partindo-se de uma concentração inicial  $C_0$ , coletar-se-á, após o deslocamento da mistura, amostras com concentração homogeneizada  $C_2$  (CLAYTON, 1965), cujo comportamento pode ser expresso pela equação 2.18 e observada na Figura 23.

$$qC_1 + QC_0 = (q + Q)C_2 \Rightarrow Q = q \frac{(C_1 + C_0)}{(C_2 + C_0)} \quad (2.18)$$

Em situações em que  $C_1 \gg C_2$  e  $C_2 \gg C_0$ , observa-se a equação 2.19:

$$Q = q \frac{C_1}{C_2} \quad (2.19)$$

### 2.5.2. Medida da vazão pela técnica do Transiente do Tempo

Na técnica de Transiente de Tempo, uma pequena quantidade de radiotraçador é injetada instantaneamente (injeção de pulso rápido) num duto de secção reta transversal definida e constante,  $S$ . Após a distância de homogeneização, dois detectores ( $D_1$  e  $D_2$ ) são dispostos externamente a uma distância  $x$  entre si, de maneira que a passagem da nuvem radioativa pela posição ocupada por um detector não interfira na detecção da nuvem pelo outro.

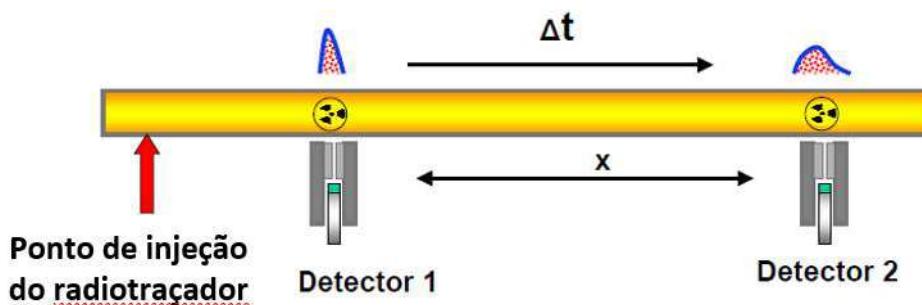


Figura 24. Diagrama esquemático para obtenção de medidas com a Técnica Transiente de Tempo (GONÇALVES, 2013)

Após a aquisição dos dados, faz-se uso da função de RTD,  $E(t)$ , e, do primeiro momento estatístico,  $M_1$ , obtém-se o tempo médio de residência,  $\tau$ , que corresponde ao transiente de tempo entre os sinais registrados por  $D_1$  e  $D_2$ , conforme mostrado na Figura 24.

A vazão  $Q$  é dada pela equação 2.20:

$$Q = \frac{S \cdot x}{t_1 - t_2} \quad (2.20)$$

Onde:  $S$  é a área da seção transversal da tubulação;  $x$ , a distância entre os detectores  $D_1$  e  $D_2$ ;  $t_1$  e  $t_2$ , são os tempos médios de residência da nuvem radioativa na

região de detecção pelos detectores D1 e D2, respectivamente, sendo sua incerteza dada por:

$$\delta Q = Q \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta S}{S}\right)^2 + \left(\frac{\delta x}{x}\right)^2 + \left(\frac{\sqrt{\delta t_2^2 + \delta t_1^2}}{t_2 - t_1}\right)^2} \quad (2.21)$$

Observando a equação 2.21, nota-se que as contribuições das incertezas relativas referentes às da área da seção reta transversal da tubulação,  $\frac{\delta S}{S}$ , e da distância entre os detectores,  $\frac{\delta x}{x}$ , são ínfimas, pois a primeira é medida com paquímetro de alta precisão e na outra, apesar da incerteza do instrumento de medida (trena) ser também pequena, devido aos dois detectores estarem distanciados por um valor  $x$  muito maior que a incerteza do dispositivo de medida.

Desta forma, a incerteza na medida da vazão é devida essencialmente à incerteza das medidas dos tempos médios,  $\frac{\sqrt{\delta t_2^2 + \delta t_1^2}}{t_2 - t_1}$ . Este fato deve-se principalmente a forma irregular do pulso injetado e ao aumento da dispersão da nuvem ao longo do seu percurso pelo duto, quanto maior o percurso, maior a dispersão, acarretando, assim, a duração de um tempo maior de passagem pela região sensível de detecção. Pela equação 2.9, observava-se que quanto maior for o intervalo de tempo de passagem da nuvem ( $t_f - t_i$ ), maior é a incerteza da medida. Uma maneira de diminuir a dispersão é posicionar os detectores antecedidos por retificadores de fluxo.

A técnica de Transiente de Tempo é muito utilizada na indústria, porém sua eficiência tem uma limitação importante: a necessidade do conhecimento da área da seção reta transversal, e, além disso, é necessário que esta seja constante ao longo do duto e o volume esteja totalmente preenchido pelo fluido.

### 2.5.3. Medida da vazão pela técnica da Contagem Total

A técnica de Contagem Total é reconhecida como uma técnica absoluta para aferição de vazão. HULL (1958) mediou o valor da vazão, numa linha de dutos entre os estados americanos do Colorado e Utah, com esta técnica. Na Figura 25, um diagrama esquemático para obtenção de medidas pela Técnica de Contagem Total é apresentado.

Na técnica de Contagem Total, uma pequena quantidade de radiotraçador com atividade conhecida,  $A$ , é detectada por um sistema de detecção, com geometria bem definida, que, posicionado após a distância de homogeneização, proporciona uma contagem total,  $N$ . A vazão,  $Q$ , pode ser obtida pela equação 2.22.

$$Q = \frac{A \cdot F}{N} \quad (2.22)$$

Onde  $F$  é o fator de calibração obtido em laboratório, sendo seu valor constante e específico para cada sistema de medição.



Figura 25. Diagrama esquemático para obtenção de medidas pela Técnica de Contagem Total (GONÇALVES, 2013)

Observa-se que, quanto maior for a vazão, menos tempo o elemento radiotraçador gastará para atravessar a região de detecção, ocasionando uma menor contagem. Assim, comparando-se duas vazões,  $Q_1$  e  $Q_2$ , com a mesma quantidade de radiotraçador, temos, em cada caso, as contagens totais, registradas nos detectores,  $N_1$  e  $N_2$ , fortemente dependente da velocidade de arraste da nuvem radioativa, e sendo a seguinte a relação observada na equação 2.23.

$$\frac{Q_1}{Q_2} \propto \frac{N_2}{N_1} \quad (2.23)$$

Decorre que as contagens totais registradas,  $N_1$  e  $N_2$ , são diretamente proporcionais as suas respectivas atividades,  $A_1$  e  $A_2$ ,

$$\frac{A_1}{N_1} = \frac{A_2}{N_2} \quad (2.24)$$

Segue então:

$$\frac{Q_1}{Q_2} = \frac{A_1 \cdot N_2}{A_2 \cdot N_1} \quad (2.25)$$

Ou de forma absoluta, tem-se a equação 2.26.

$$Q = \frac{A \cdot F}{N} \quad (2.26)$$

Com uma incerteza associada calculada pela equação 2.27.

$$\delta Q = Q \cdot \sqrt{\left(\frac{\delta A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\delta F}{F}\right)^2 + \left(\frac{\delta N}{N}\right)^2} \quad (2.27)$$

## **2.6. Funções RTD associadas à teoria dos momentos estatísticos para estudos do escoamento de fluidos em dutos**

Na indústria de óleo e gás, a modelagem matemática dos processos de transporte dos derivados de petróleo possibilita a construção de um modelo, denominado função de transferência, para descrever, observar e controlar o comportamento do escoamento dos fluidos nos dutos. Em alguns casos, o modelo pode ser especificado a partir de princípios

básicos, mas nas situações com pouca informação sobre o sistema, o modelo deve ser construído usando dados experimentais medidos diretamente na unidade.

O método mais utilizado para obter a função de transferência do escoamento em dutos e para ajustar um modelo é a técnica de impulso/resposta, com o sistema sendo estimulado por um sinal de entrada (o mais comum é o pulso imperfeito rápido) e o sinal de saída medido com a movimentação do fluido dentro do duto (BRANDÃO, 2003).

Seja uma determinada porção de um duto dentro do qual está escoando um fluido, este sistema pode ser representado por um operador definido na equação 2.28 de convolução:

$$Y(t) = H(t) \otimes X(t) \quad (2.28)$$

Onde:  $X(t)$  - função de entrada: registro do detector posicionado na entrada do sistema;

$H(t)$  - função de transferência depende dos processos internos do sistema;

$Y(t)$  - função de saída: registro do detector posicionado na saída da unidade.

Mudanças na concentração do traçador, conforme ele se move pelo duto, são causadas principalmente pela ação de diferentes processos físico descritos pela função  $H(t)$ , e a resposta,  $Y(t)$ , depende tanto da ação da função do sistema,  $H(t)$ , como do sinal  $X(t)$  registrado pelo detector na entrada. Este procedimento é mostrado na Figura 26.

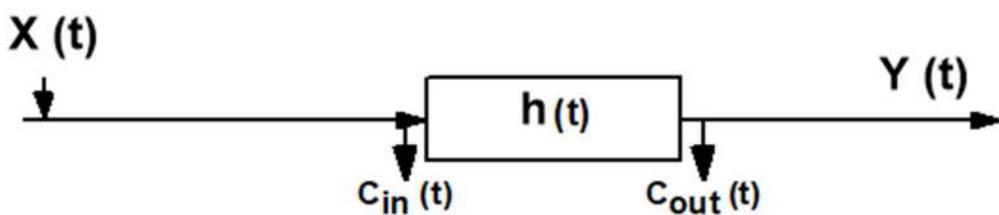


Figura 26. Representação dos métodos de estímulo e resposta usando dois detectores cintiladores em um duto submetido a uma injeção  $X(t)$  de traçador e monitorado com dois detectores posicionados na entrada e na saída

É essencial que o radiotraçador tenha sido injetado em uma seção localizada antes dos pontos destinados para registrar o sinal da movimentação da nuvem de radiotraçador,

um na entrada e outro na saída da região de medição, respeitando, ainda, a distância de homogeneização,. Nestas condições, a equação (2.29) de convolução pode ser escrita como:

$$C_{out}(t) = \int_0^t C_{in}(t-u) H(t-u) du \quad (2.29)$$

Onde:  $C_{out}(t)$  - curva normalizada registrada pelo detector na saída;

$C_{in}(t)$  - curva normalizada registrada pelo detector na entrada.

Aplicando a transformação de Laplace na equação, temos:

$$H(S) = \frac{Y(S)}{X(S)} = \frac{C_{out}(S)}{C_{in}(S)} \quad (2.30)$$

Onde:  $H(S)$  - função de transferência no espaço de Laplace;

$C_{in}(S)$  - função de entrada no espaço de Laplace;

$C_{out}(S)$  - função de saída no espaço de Laplace.

A equação acima (2.30) permite calcular a função resposta do sistema a partir da transformada de Laplace das curvas registradas na posição de entrada e na posição de saída do duto e, dessa maneira, ajustar, por meio de métodos de mínimos quadrados, um modelo específico para o escoamento dentro do duto, além de prever alguns parâmetros característicos do escoamento.

Da definição de momento estatístico de ordem  $k$ ,  $M_k$ , associado a uma função distribuição  $F(t)$ , é dado por:

$$M_k(S) = \int_0^\infty F(t) e^{-St} t^k dt \Rightarrow M_N(S) = L[t^k F(t)] \quad (2.31)$$

Onde  $L[ ]$  é o operador Transformada de Laplace.

Usando das propriedades da Transformada de Laplace, temos:

$$M_k(S) = (-1)^k \frac{d^k}{dS^k} [F(S)] \quad (2.32)$$

Para ordem 0:  $M_0(S = 0) = \text{area sob a curva de } F(t)$

Para ordem 1:  $M_1(S = 0) = \tau$  (Média)

Para ordem 2:  $M_2(S = 0) = s^2$  (Variança)

Considerando as curvas registradas pelos detectores cintiladores, a função resposta é dada por:

$$\text{ordem zero: } [M_0(s)]_H = \frac{[M_0(s)]_{out}}{[M_0(s)]_{in}} \quad (2.33)$$

$$\text{ordem 1: } \left[ \frac{M_1(s)}{M_0(s)} \right]_H = \left[ \frac{M_1(s)}{M_0(s)} \right]_{out} - \left[ \frac{M_1(s)}{M_0(s)} \right]_{in} \quad (2.34)$$

Para os modelos básicos o método dos momentos estatísticos associados resulta, em todos eles,  $\tau$  é o tempo médio de residência entre o ponto de entrada e o ponto de saída:

- Misturador perfeito:

$$H(S) = \frac{1}{1 + \tau S} \quad (2.35)$$

- Reator tipo pistão:

$$H(S) = e^{-\tau S} \quad (2.36)$$

- N Misturadores perfeitos em série:

$$H(S) = \frac{\alpha^N}{(S + \alpha)^N} \quad (2.37)$$

Onde  $\alpha = \frac{1}{\tau}$ .

Nos ajustes de modelo foi usado o programa ATOMUM\_MOMENTS cedido pela empresa ATOMUM Serviços Tecnológicos Ltda.

## 2.7. Medição de vazão de escoamento usando o método do transiente de tempo (MTT)

Como definido no Capítulo 1, o objetivo da pesquisa é desenvolver um sistema de medição de vazão usando radiotraçadores e uma metodologia do transiente de tempo para ser aplicada na aferição de medidores de vazão instalados em dutovias. O benefício de um sistema de medição está diretamente relacionado à qualidade dos dados medidos. E, para que os resultados medidos estejam dentro das condições impostas pela legislação vigente, é importante saber como o sistema de medição interage com seu ambiente.

Ao planejar o experimento de vazão, é fundamental que todas as fontes potenciais de erros sejam claramente definidas para que os procedimentos para controlar todos esses problemas possam ser implementados, pois um experimento deficiente acontece quando os planos iniciais omitem fatores relevantes. Há uma premissa fundamental que deve ser considerada: a análise estatística, por mais detalhada que seja, não poderá corrigir o resultado quando o experimento foi projetado incorretamente.

Na elaboração de um teste de medição de vazão, é essencial que as seguintes premissas sejam atendidas:

- como o movimento do radiotraçador dentro do duto depende do perfil de velocidade do escoamento, é fundamental a correta seleção da seção de medição para instalar os detectores e medir as funções do RTD. As posições são escolhidas considerando o ponto de injeção, a velocidade do fluido, a dispersão do traçador e o layout da tubulação;

- o processo ideal para a injeção do radiotraçador é o de pulso rápido, assim o radiotraçador deverá ser injetado na corrente em um pulso único e com o tempo de injeção o mais curto possível;
- qualquer tipo de estrutura dentro da tubulação (curvas, cotovelos, redutores, expansores, filtros, válvulas de controle e conexões em T) podem afetar o perfil de escoamento e afetar a medição do RTD;
- qualquer material depositado na parede da tubulação cria uma zona de estagnação e produz uma região de pressão ligeiramente negativa a jusante; porções de fluido podem se mover da região de maior velocidade para essa zona morta e criar vórtices modificando as curvas RTD;
- tipos distintos de distúrbios dentro da dutovia provocam alterações no perfil do escoamento e requerem distâncias relativamente prolongadas de duto reto para restabelecer o padrão de velocidade turbulento totalmente desenvolvido, simétrico e livre de redemoinhos;
- durante um experimento, é importante monitorar todo o processo para garantir que tudo esteja sendo feito conforme o planejado.

Com relação aos procedimentos estatísticos, é fundamental que:

- o sistema de medição seja estável e adequadamente planejado para satisfazer a qualidade desejada do resultado para a medição de vazão;
- as incertezas estatísticas das variáveis de entrada sejam consistentes e apropriadas para a faixa de medição esperada;
- se considere todas as fontes de incerteza e se avalie e propague tudo o que será significativo no resultado.

De acordo com a ISO 2975-7 (1977), a condição ideal para aplicar o método de transiente de tempo em meio aquoso é o escoamento uniforme em regime turbulento com Número de Reynolds maior que 5000 e o radiotraçador injetado no sistema como um pulso rápido. A vazão na dutovia é determinada usando dois detectores cintiladores separados por uma distância considerável para garantir um resultado com a acurácia adequada.

Nossa proposta foi desenvolver um sistema de medição de vazão e aferição de medidores de vazão instalados em dutovias que possa ser aplicado em ambientes com restrição de espaço, como é o caso das plataformas offshore. Para esses locais onde há limite de espaço para instalar os detectores e o sistema de medição de vazão, emprega-se

quatro detectores cintiladores separados de 0.30 m e posicionados em um trecho reto do duto e efetuam-se três injeções do radiotraçador em um ponto suficiente distante da região de medição para garantir a mistura completa do radiotraçador no meio que está escoando na dutovia. No sistema desenvolvido para medição de vazão, a combinação entre o número de detectores  $i$  ( $i=1,4$ ) e o número de injeções ( $j=1,3$ ) resulta em três conjuntos de seis valores para a velocidade de escoamento para cada dupla de detectores cintiladores  $v_{i,j}$  e o resultado da velocidade média do escoamento é calculado considerando o tratamento estatístico desses 18 valores dos  $v_{i,j}$ .

### **2.7.1. Teste estatístico para rejeição de dados espúrios da velocidade de escoamento**

Para cada injeção  $j$  ( $j=1,3$ ), após o cálculo da velocidade média do escoamento  $v_{i,j}$ , considerando-se cada par de detector cintilador, deve-se aplicar o Teste de Dixon (95%) (RORABACHER, 1991; EPA, 2006) para verificar se há um “outlier” a ser removido do conjunto de dados. Normalmente, um dado espúrio é definido como uma observação gerada a partir de uma distribuição diferente da distribuição de dados principal. Embora essa definição implique que um outlier possa ser encontrado em qualquer lugar dentro da faixa de observações, é natural suspeitar e examinar como outliers possíveis apenas os valores extremos. O teste indicado para localizar um dado espúrio é o teste de Dixon e é aplicado da seguinte forma:

- para cada injeção  $j$ , os valores que compõem o conjunto de  $v_{i,j}$  são dispostos em ordem crescente  $v_1, v_2, v_3, v_4, v_5$ , e  $v_6$ , com:  
 $v_1 = v_{\min}$  o menor valor registrado;  
 $v_6 = v_{\max}$  o maior valor registrado.

A estatística  $Q_{\text{Dixon}}$  é calculada para os limites superior e inferior usando:

Para o limite mínimo:

$$Q_{\text{Dixon}} = \frac{v_2 - v_1}{v_6 - v_1} \quad (2.38)$$

Para o limite máximo:

$$Q_{\text{Dixon}} = \frac{v_6 - v_5}{v_6 - v_1} \quad (2.39)$$

- o  $Q_{\text{Dixon}}$  obtido é comparado a um valor  $Q_{\text{crit}}$  encontrado nas tabelas ao nível de confiança igual a 95% e 6 elementos. Se  $Q_{\text{Dixon}} > Q_{\text{crit}}$ , então, o valor suspeito pode ser caracterizado como um outlier e deve ser rejeitado; caso contrário, o valor suspeito deve ser retido e usado em todos os cálculos subsequentes;
- em caso de detecção e rejeição de um outlier, o teste de Dixon não pode ser reaplicado no conjunto das demais observações. O novo teste só poderá ser efetuado no calculando-se os coeficientes  $Q_{\text{Dixon}}$  e  $Q_{\text{cri}}$  para o novo conjunto de dados.

### 2.7.2. Teste de normalidade dos dados experimentais

Muitos dos procedimentos estatísticos são testes paramétricos, que requerem que os dados sejam obtidos de uma população com distribuição normal. Para verificar se o conjunto de dados é proveniente de uma população de distribuição normal, é usado o teste de gráfico Q-Q mostrado na Figura 27. No entanto, esse gráfico não informa se a distribuição está próxima o suficiente do normal. Para apoiar essa análise gráfica, é usado o Teste Shapiro-Wilk (SW) para determinar quantitativamente se uma distribuição é normal ou não (OLIVEIRA *et al.*, 2013, EPA, 2006).

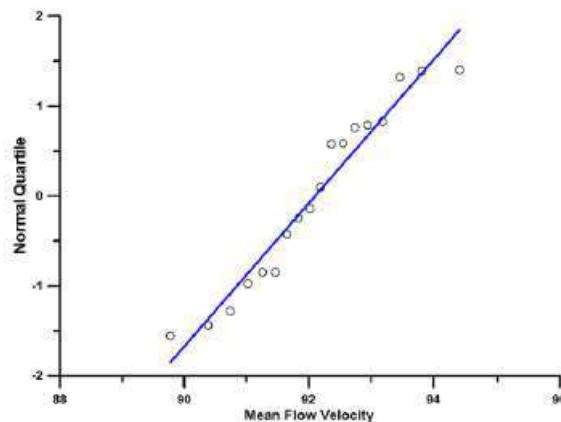


Figura 27. Exemplo de gráfico Q-Q e a linearidade dos dados sugere que eles são normalmente distribuídos

As etapas para construir um gráfico Q-Q são:

- para todas as injeções, calcule a média estatística  $\bar{v}$  e o desvio-padrão S dos dados e construa a curva da distribuição normal;
- os valores dos dados são organizados em ordem crescente para criar um novo conjunto de dados de  $v_i = 1, N$ ;
- para cada  $v_i$ , calcule a estatística f, dada por:

$$f_i = \frac{i - a}{N + 1 - 2a}, \begin{cases} a = \frac{3}{8} \text{ se } N \leq 10 \\ a = \frac{1}{2} \text{ se } N > 10 \end{cases} \quad (2.40)$$

- para cada  $f_i$ , calcule o quantil da distribuição normal p ( $f_i$ );
- construa o gráfico  $p(f_i) \times v_i$ .

Se os dados da amostra tiverem selecionados de uma população que segue a distribuição gaussiana, os pontos  $[v_i, p(f_i)]$  estarão alinhados perto da linha de normalidade.

### 2.7.3. Teste de normalidade Shapiro-Wilk

O teste de Shapiro-Wilk calcula uma estatística W que examina se uma amostra aleatória,  $x_1, x_2, \dots, x_N$  vem de uma distribuição normal (SHAPIRO, WILK, 1965, MONTGOMERY, 2013). Este teste de normalidade é o teste mais poderoso e pode ser aplicado na maioria das situações. Para o teste, a estatística W é calculada como:

$$W = \frac{b^2}{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2} \quad (2.41)$$

Onde  $x_i = 1, \dots, N$  é o conjunto de dados ordenado em ordem crescente e b é determinado da seguinte forma:

$$b = \begin{cases} \sum_{k=1}^{\frac{N}{2}} a_{N-k+1} [x_{N-k+1} - x_k] & \text{se } N \text{ é par} \\ \sum_{k=1}^{\frac{(N+1)}{2}} a_{N-k+1} [x_{N-k+1} - x_k] & \text{se } N \text{ é ímpar} \end{cases} \quad (2.42)$$

Onde  $a_i$  = coeficiente Shapiro-Wilk (Tabela 5).

Tabela 5. Coeficientes Shapiro-Wilk para N=6

k/N	2	3	4	5	6
1	0,7071	0,7071	0,6872	0,6646	0,6431
2			0,1677	0,2413	0,2808
3					0,0875

A hipótese nula para o Shapiro-Wilk é que os dados são de uma distribuição Normal. Para decidir sobre a normalidade dos dados testados, o valor de W é comparado com o valor tabulado para W (95%, N), a probabilidade de Shapiro-Wilk para 95% e N graus de liberdade. A hipótese de normalidade é rejeitada se o valor calculado for menor que o tabulado.

#### 2.7.4. Metodologia estatística para o cálculo de incerteza na medição de vazão usando MTT e radiotraçador por três injeções

Para o sistema de medição proposto, quatro detectores são usados para determinar as curvas RTD em cada uma das posições de medição, resultando em seis valores para a velocidade média do escoamento em uma única injeção. Esse procedimento é repetido para as três injeções independentes, resultando em dezoito valores para a velocidade de escoamento.

Em seguida, aplica-se o teste F para testar a hipótese de que não há diferença estatística entre as três injeções, e, sendo aceita a hipótese, todos os dezoito resultados podem ser usados para calcular a vazão Q.

O teste considera que a variância é particionada em dois componentes: um que mede a variabilidade entre as injeções e outro que mede a variabilidade dentro de cada injeção. Quando a hipótese nula é comprovada, todos os dados são tratados juntos, como

se fossem uma amostra da mesma população. Esse sistema de medida pode ser visto na Figura 28, considerando as médias individuais para cada injeção e resultando em um valor médio mais representativo para a população completa.

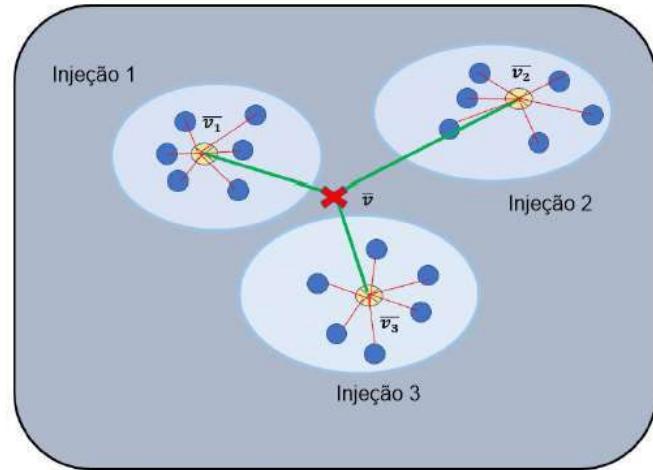


Figura 28. Ilustração do teste F aplicado a uma medição da velocidade média do escoamento em um duto considerando três injeções de radiotraçadores e quatro detectores cintiladores

Para cada injeção, há seis combinações possíveis para os pares de detectores (D1D2, D1D3, D1D4, D2D3, D2D4, D3D4), resultando em seis valores da velocidade média para o fluido. Utilizando três injeções do radiotraçador, temos dezoito valores  $\bar{v}_{i,j}$  ( $i = 1,6; j = 1,3$ ). O teste F nos permite analisar a variabilidade do sistema de medição e examinar se é possível combinar em um único valor os três resultados da velocidade média do fluido para cada injeção e assim calcular a média geral do experimento, denominada Grande Média. As principais premissas para a aplicação do teste F são:

- a população é normalmente distribuída;
- a população tem a mesma variância, mas, se as amostras têm o mesmo tamanho, esse princípio pode ser facilitado ao aceitar que o valor da maior variância seja até nove vezes o valor da menor;
- as amostras são aleatórias e mutuamente independentes. Isso significa que cada valor é amostrado independentemente um do outro valor.

O teste F é baseado na decomposição da variância total,  $S^2$ , em dois componentes distintos: o primeiro componente é conhecido como "variância intragrupo" (SSW), que envolve a variância das médias calculada em cada grupo independente, e o segundo

componente é a "variância intragrupo" (SSB), que é calculado considerando a variância usando todos os dados. O valor de SSB não é afetado por diferenças nas médias independente registrada em cada grupo. Para testar a hipótese e concluir que as três médias são de uma mesma população, calcula-se o valor do fator  $F_{cal}$ , que é então comparado com o F obtido na tabela F para nível de significância de 95%.

As hipóteses para o teste F são:

- $H_0 =$ todas as velocidades médias do escoamento são iguais -  $\bar{v}_{injeção1} = \bar{v}_{injeção2} = \bar{v}_{injeção3}$ ;
- $H_1 =$ nem todas as velocidades médias de fluxo são iguais, pelo menos uma das velocidades  $\bar{v}_j$  é diferente.

Se a hipótese nula for aceita, não há diferença entre as três velocidades médias do escoamento, e a velocidade média final, GM, é igual à média das três velocidades do escoamento  $\bar{v}_j = 1,2,3$ . A variância será aproximadamente igual à variância total considerando um nível de significância de 95%.

Se a hipótese nula for rejeitada, pode-se concluir que, pelo menos, uma das velocidades médias  $\bar{v}_j$  é estatisticamente diferente das demais, e os resultados devem ser analisados para identificar a fonte do erro. Na maioria dos casos, isso é causado por uma seleção incorreta da posição de medição ou calibração incorreta do detector (blindagem ou colimação).

Antes do teste F, todos os  $\bar{v}_i$  ( $i=1,6$ ) para cada injeção devem ser testados para identificar se há algum “outlier”, e isso é feito usando o critério de Dixon. Quando um outlier é identificado, esse valor é rejeitado, a nova velocidade média de fluxo  $\bar{v}$  para a injeção é calculada e o Teste de Dixon é repetido. Somente quando todos os valores são homogêneos, o teste F é realizado. Outliers também podem ser identificados usando a técnica de “boxplot” para todos os  $v_{i,j}$  medidos em cada injeção.

As etapas para o teste F são:

- calcular a velocidade média para os três grupos, chamada de grande média GM e a velocidade média  $\bar{v}_j$  para a injeção j;

$$GM = \frac{1}{N_{injection}} \sum_{j=1}^{N_{injection}} \bar{v}_j \quad (2.43)$$

$$\bar{v}_j = \frac{1}{N_{data}} \sum_{i=1}^{N_{data}} v_{i,j}, j = 1, \dots, N_{injection}$$

(2.44)

Onde:  $v_{i,j}$  - velocidade média do escoamento na posição i, j

$N_{injeção}$  - número de injeções

$N_{data}$  - Número total de valores de velocidade de escoamento por injeção

$N_{Total}$  - Número total de velocidades (considerando todas as injeções)

$N_{injeção} * N_{data}$

- calcular a soma quadrática intragrupos, SSB, e a média quadrática intragrupos, MSW:

$$SSB = \sum_{j=1}^{N_{injection}} N_j (\bar{v}_j - GM)^2$$

$$MSB = \frac{SSB}{N_{data} - 1}$$

(2.45)

- calcular a variância  $S_j$  para cada grupo e a soma quadrática da variância dentro do grupo, SSW:

$$S_j = \sum_{i=1}^{N_{data}} (v_{i,j} - \bar{v}_j)^2$$

$$SSW = \sum_{j=1}^{N_{injection}} S_j$$

(2.46)

- calcular a média quadrática MSW dada por:

$$MSW = \frac{SSW}{N_{Total} - N_{injection}}$$

(2.47)

- calcular o valor da estatística de teste F:

$$F_{Cal} = \frac{MSB}{MSW}$$

(2.48)

Teste da hipótese nula  $H_0$  do método:

- rejeitar  $H_0$  quando  $F_{Cal} > F$  (para 95,0%): há evidências suficientes para concluir que pelo menos uma das médias é diferente das outras;
- aceitar  $H_0$  quando  $F_{Cal} \leq F$  (para 95,0%): há evidências suficientes para concluir que as velocidades médias do escoamento para todas as injeções são de uma mesma população.

Nos experimentos nos quais a hipótese  $H_0$  é aceita, a variância,  $S^2$ , é composta por duas porções correspondentes à variação entre grupos e variação intragrupo:

$$S^2 = MSB + MSW$$

(2.49)

O resultado para a velocidade média fina do escoamento,  $\bar{v}$ , e a incerteza associada  $u(\bar{v})$ , considerando todos os dados válidos, são:

$$\begin{aligned}\bar{v} &= \left[ GM \pm \frac{\sqrt{S^2}}{2} \right] \\ u(\bar{v}) &= \frac{\sqrt{S^2}}{2}\end{aligned}$$

(2.50)

A incerteza associada  $u(\bar{v})$  é geralmente determinada para as circunstâncias específicas nas quais as medições foram feitas. O coeficiente de variação, CV, é útil para comparar o grau de variação de uma série de dados para outra.

$$CV = 100 \frac{u(\bar{v})}{\bar{v}}$$

(2.51)

Valores altos para CV indicam problemas com as medições. O resultado com a melhor acurácia ocorre nos casos em que CV decresce.

## CAPÍTULO 3

### Materias e métodos

#### 3.1. Montagem das linhas de transporte

Para execução da pesquisa, foram necessários o projeto e a montagem de estruturas metálicas que acomodassem o sistema de condutos de transporte de fluido orgânico. Esse sistema sofreu alterações para atender às especificidades com a evolução da pesquisa.

O sistema de transporte de fluido orgânico foi modificado de maneira a propiciar os ensaios de escoamentos de fluido com perfil de velocidades tipicamente apresentados em regime laminar e turbulento e estudar a interferência do Número de Reynolds na medição de vazão. Nessa configuração, foram empregadas duas linhas de tubo de PVC, uma com diâmetros de 2” e outra com diâmetro de 3/4”, interconectadas por válvulas de manobra que permitem que a injeção de radiotraçador seja efetuada no mesmo ponto para as duas linhas. Cada linha tem um comprimento total de 13.0 m, sendo 12.0 m (dois ramos de 6.0 m) na posição horizontal e 1,0 m na vertical, uma plataforma apropriada para servir de base de apoio para os detectores, blindagens e colimadores. Em cada linha, foi introduzido um artefato retificador de fluxo. As linhas de transporte são mostradas na Figura 29.

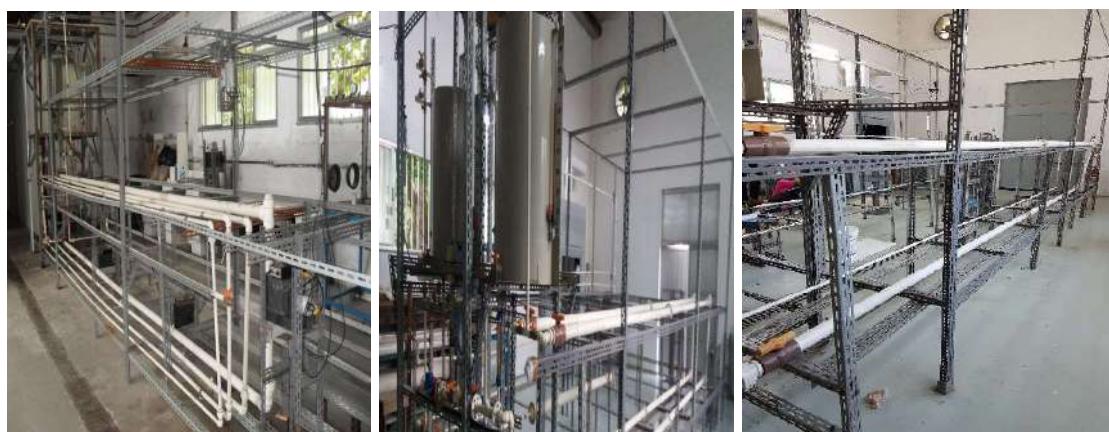


Figura 29. Linha de transporte de derivado de petróleo líquido

### 3.1.1. Sistema de pressurização e controle de vazão da linha de transporte

Na Figura 30, está apresentado o medidor de vazão comparador com seu filtro acoplado, específico para fluidos viscosos. Esse modelo eletrônico permite medir vazão instantânea em litros por minuto ou por hora e segue às especificações constantes na Tabela 6.

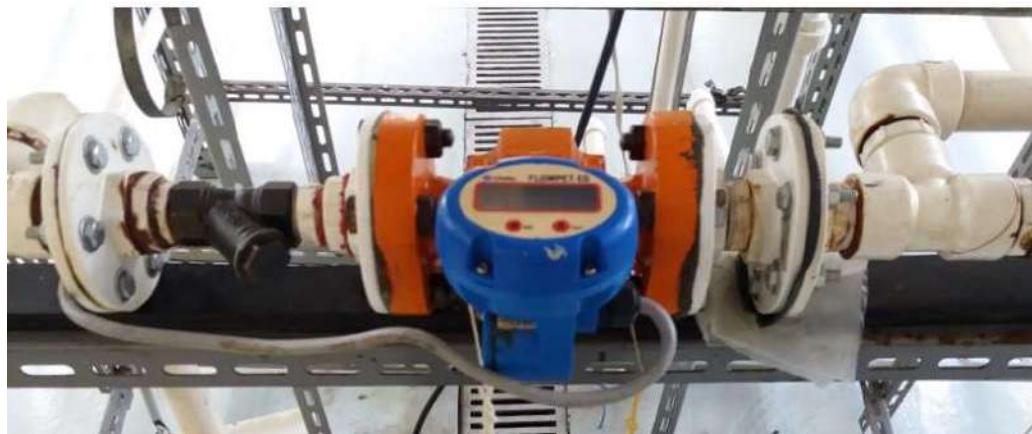


Figura 30. Medidor de vazão digital

Tabela 6. Características do medidor digital OVAL FLOWPET-EG LS4976-400A

Tamanho	NBS 20mm
Escala de operação	10-1000 litros/h
Temperatura de Operação Max.	120º C
Precisão (linearidade)	±0,35% da leitura
Viscosidade máxima admitida	200 cP

A movimentação do fluido é promovida por uma bomba modelo WEG de 1 HP, pressão diferencial de 3 bar e rotação máxima de 850 rpm, adequada para o fluido utilizado nos experimentos. Para regulação da vazão do fluido transportado no conjunto de linhas, foi instalado um dispositivo eletrônico que permite o controle da frequência de rotação do eixo da bomba. Na Figura 31., é mostrada a bomba e o sistema de controle eletrônico de vazão.



Figura 31. Bomba modelo WEB 1 HP e controlador de frequência de rotação da bomba

### 3.1.2. Sistema de injeção

Para a utilização da técnica proposta neste trabalho, é necessário que a injeção seja instantânea, na forma de pulso pistão. Nesse sentido, foi projetado, montado e instalado, após o medidor de vazão, um sistema de injeção do tipo *by pass* controlado por válvulas com um reservatório para deposição do fluido marcado com o radiotraçador a ser injetado na linha de transporte, como mostrado na Figura 32.

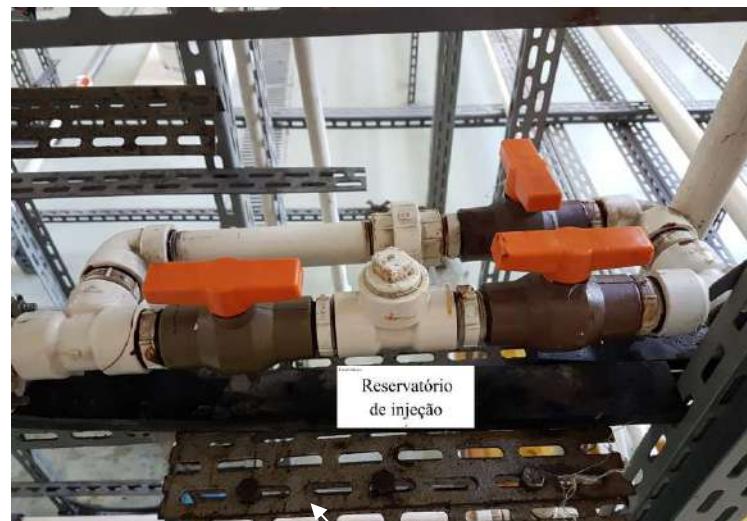


Figura 32. Sistema de injeção do radiotraçador na linha de transporte

Em condições normais de escoamento, as válvulas 1 e 2 trabalham abertas e o desvio é obstruído com a válvula 3 permanecendo fechada. Para efetuar a injeção, a válvula 3 é aberta e, em seguida, as válvulas 1 e 2 são fechadas. Após introduzir o fluido

marcado com o radiotraçador no reservatório, em média ( $20,00 \pm 0,05$ ) ml, esse é fechado e, na sequência, concomitantemente, abrem-se as duas válvulas, 1 e 2, e fecha-se a válvula 3 do desvio da linha de transporte, de forma sincronizada manualmente.

### 3.1.3. Dispositivo Retificador de fluxo

Pela natureza do fluido, para escoamentos de materiais viscosos em dutos fechados, o regime de escoamento, de modo geral, é laminar com perfil de velocidades estratificado. Essas características impõem às medições de vazão incertezas relativamente grandes que, em grande parte, inviabilizam a medição para fins fiscais e de controle. Para dirimir essas distorções, é instalado um retificador de fluxo no início do primeiro ramo horizontal da linha de transporte de maneira a uniformizar o perfil de velocidades do escoamento do material transportado. A Figura 33 mostra o dispositivo. Ele é constituído por duas conexões e preenchida por esferas de acrílico de 1.0 cm de diâmetro e limita por telas de aço inox.



Figura 33. Dispositivo retificador de fluxo

Com o desenvolvimento do trabalho, esse dispositivo mostrou-se fundamental. Verificou-se que, sem a instalação de retificador de fluxo, os resultados alcançados pela pesquisa referentes à incerteza não seriam possíveis.

### **3.1.4. Material transportado**

A proposta principal deste trabalho de pesquisa é desenvolver metodologia que permita qualificar tipos de escoamentos em dutos de derivados de petróleo e medir a vazão em unidades da indústria de óleo e gás natural atendendo aos padrões da norma da ANP. O material escolhido para a realização do estudo foi óleo lubrificante de motor por ser um fluido orgânico de alta temperatura de combustão, viscosidade apropriada e de fácil aquisição e armazenamento. Para a execução da pesquisa, foram utilizados 300 litros de óleo Lubrax Essencial® SJ-20W50 API/SJ ANP. 0139. Na Tabela 7, são mostradas as propriedades físico-químicas do óleo.

Tabela 7. Características do óleo utilizado no experimento (PETROBRAS, 2011)

Densidade a 20/4°C	0,8846 g · cm <sup>-3</sup>
Ponto de fulgor (VA)	240°C
Ponto de fluidez	-24°C
Viscosidade à 40°C	183,7 cSt*
Viscosidade à 100°C	20,8 cSt*
Índice de viscosidade	134
Cinzas sulfatadas	0,50 % peso

\*Viscosidade Cinemática (cSt) = viscosidade absoluta (cP) / densidade (gcm<sup>-3</sup>). 1 cSt = 1 mm<sup>2</sup> s<sup>-1</sup>

### **3.2. Sistema de Detecção da Radiação e aquisição de dados**

Ao ser injetado na linha de transporte, o radiotraçador tem o comportamento semelhante a uma fonte de forma e de dimensões indefinidas que emite radiação de maneira anisotrópicas e, ao atingir o corpo de detector, pode interagir de maneira específica.

Na execução da pesquisa, foram empregados dois sistemas distintos de detecção e aquisição de dados: um para medir a atividade de radiotraçador injetado e outro para detectar a “nuvem” de radiotraçador injetado na linha de transporte.

### 3.3. Sistema de aquisição para medir atividade

Para medir a atividade das amostras, foi empregado um detector cintilador NaI 2”x2” interligado a um conjunto eletrônico padronizado de módulos de instrumentos nucleares (NIM – Nuclear Instrument Module) por meio de cabos coaxiais conforme o esquema da Figura 34.

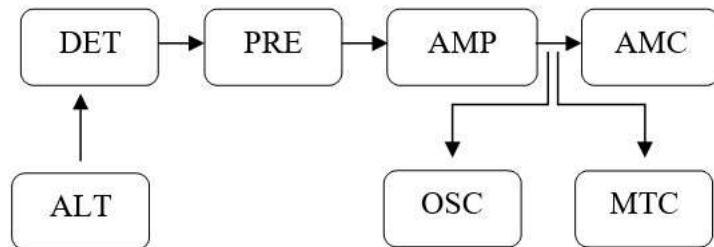


Figura 34. Diagrama esquemático do conjunto eletrônico de módulos de instrumentos utilizados na detecção das atividades das amostras

Onde:

- DET – Detector cintilador NaI 2”x2” HARSHAL, modelo Integral Line (integrado a uma fotomultiplicadora);
- PRE – Pré-amplificado ORTEC, modelo 113;
- AMP – Amplificador ORTEC, modelo 435 A;
- AMC – Analisador mono canal MICRONAL, modelo 4010;
- ALT – Fonte de alta tensão MICRONAL, modelo 1023 A;
- OSC – Osciloscópio digital RIGOL, modelo DS1202CA
- MTC – Analisador multicanal – ORTEG-EASY-MCA-8K™

O arranjo de blindagem e colimação desenvolvido por RAMOS (2006) e GONÇALVES (2013), mostrado na Figura 35, proporciona uma geometria bem definida entre o detector cintilador NaI 2”x2” acoplado e uma amostra pipetada de 5,0  $\mu\text{L}$ . O conhecimento desse fator geométrico é de importância fundamental para o cálculo da atividade.

A tensão de operação dos detectores cintiladores e a curva de eficiência do detector 2”x2” empregado para medir atividade foram obtidos por meio dos procedimentos descritos em GONÇALVES (2013).



Figura 35. Arranjo de blindagem e colimação

### 3.4. Sistema de aquisição para detectar o radiotraçador injetado na linha de transporte

Para detectar a passagem do radiotraçador injetado na linha, foram utilizados detectores cintiladores NaI 1”x1” interligados a um módulo de instrumentação nuclear LUDLUM por meio de cabos coaxiais conforme o esquema da Figura 36 e da Figura 37.



Figura 36. Módulo de aquisição de dados LUDLUM.



Figura 37. Detectores conectados cintiladores NaI 1"x1" por cabos coaxiais

No processo de aquisição de dados, manter a relação sinal/ruído eletrônico em níveis apropriados, para que seja possível a discriminação das contagens referentes à radiação detectada, é extremamente necessário. Assim, antes de realizar os procedimentos relativos à aquisição de dados pelos sistemas, foi feita a revisão das condições de uso dos cabos e conexões em prol de atenuar os efeitos de interferências eletrônicas.

### 3.5. Radiotraçador

#### 3.5.1. Escolha do radioisótopo

Foram estudados três radioisótopos como traçadores,  $^{198}\text{Au}$ ,  $^{82}\text{Br}$  e  $^{123}\text{I}$ . O Ouro e o Bromo são ativados no reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear (IEN) e o Iodo no Ciclotron, também nesse instituto. O  $^{123}\text{I}$  foi escolhido por apresentar um conjunto de vantagens que mais se adequava à proposta do trabalho em relação aos outros radioisótopos:

- fácil aquisição – o IEN tem produção regular de  $^{123}\text{I}$  para fins de medicina nuclear, propiciando o fornecimento para pesquisa, seja por encomenda ou por excesso de produção;
- meia-vida e energia do fotópico – a meia-vida do  $^{123}\text{I}$  é de 13,6 horas. Cada experimento teve duração média de 10 minutos, tornando a meia-vida do  $^{123}\text{I}$  totalmente compatível com às necessidades da pesquisa. Além disso, principalmente do ponto de vista de proteção radiológica, a meia-vida do  $^{123}\text{I}$  é menor em relação ao  $^{198}\text{Au}$  e ao  $^{82}\text{Br}$ , 2,7 dias e 35,5 horas respectivamente;

- energia do fotópico – outra característica que favoreceu a escolha do  $^{123}\text{I}$  foi a energia de fotópico. Por emitir radiação gama com energia de 159 keV, a eficiência de detecção é superior em comparação aos outros radioisótopos estudados na pesquisa e, por ser bem descremado, propicia o emprego de uma janela de operação do sistema de detecção mais restrita e bem definida, que corrobora para a qualidade das medições. Vale ressaltar que o  $^{82}\text{Br}$  tem no espectro de emissão de radiação gama três fotópicos com energias muito próximas (554,3keV; 619,1keV; 776,5keV);
- marcação do óleo – o processo de marcação do óleo com  $^{123}\text{I}$  foi executado segundo GONÇALVES *et al.* (2021).

### **3.5.2. Estabilidade do radiotraçador**

A característica principal de um traçador é que ele tenha comportamento semelhante ao meio em que ele é inserido, pois, se o movimento do traçador não for semelhante ao do meio, toda informação registrada será ao do deslocamento do próprio radiotraçador e não ao escoamento do fluido em estudo. No sentido de certificar que o radiotraçador apresente propriedades físico-química idênticas ao meio de estudo, o óleo Lubrax Essencial®, foram realizados testes quanto à estabilidade de temperatura e à possibilidade de ocorrerem reações com as paredes do duto ou até mesmo que o radiotraçador precipite e se deposite na parte inferior do duto.

#### **3.5.2.1. Estabilidade do radiotraçador quanto à temperatura**

Buscou-se verificar o comportamento da estabilidade do radiotraçador quanto à alteração de temperatura, pois, se o radioiodo se dissociasse da molécula de óleo, seriam formados compostos iônicos com comportamento hidrodinâmico diferente ao do óleo e os detectores cintiladores iriam registrar a movimentação desses novos compostos. Neste sentido, foi efetuado um ensaio com o óleo marcado submetido a diferentes temperaturas.

O procedimento do ensaio foi feito utilizando um banho térmico imposto a 500mL de óleo não marcado contido em um Erlenmeyer homogeneizado com 50,0 ml de óleo marcado  $^{123}\text{I}$  com atividade de  $1,85 \cdot 10^7$  Bq. A este arranjo foi posicionado um detector blindado e colimado ao ângulo sólido restrito ao Erlenmeyer e foi feita a variação da

temperatura em um intervalo que compreende de 20°C a 130°C. Em face da meia-vida do  $^{123}\text{I}$  de 13,6h e do tempo do teste, 3,0 horas, foi necessária a correção de decaimento do radioisótopo.

### **3.5.2.2. Estabilidade do radiotraçador quanto à reação com as paredes do duto e precipitação**

Um aparado experimental foi desenvolvido para a verificação da possibilidade de reação do radiotraçador com as paredes do duto, que consiste em uma sessão longitudinal de um tubo de 0,80 m de comprimento, do mesmo material dos condutos usados na linha de transporte de fluido orgânico, fechado na base e no topo, onde foi aclopado um tampão removível usado para abastecer a unidade com o fluido em estudo e marcado com o radiotraçador.

Três detectores cintiladores, blindados e colimados foram utilizados para registrar o sinal dos fotons gama durante duas horas. Na Figura 38, é apresentado o aparato experimental. Com o detector cintilador D1 registrando o sinal na posição inferior, na base do dispositivo, o segundo (D2) no meio e o terceiro detector no topo da unidade (D3).



Figura 38. Aparato experimental foi desenvolvido para a verificação da possibilidade de precipitação, volatização e reação do radiotraçador com as paredes do duto

Para realizar o teste, 5,0 ml de óleo marcado com  $^{123}\text{I}$ , com atividade de  $7,4 \cdot 10^7$  Bq, e 235,0 ml do óleo empregado como meio de estudo foram adicionados em um becker de 500,0 ml e agitados por 10 minutos em um misturador magnético, mantendo um movimento lento do agitador magnético para evitar bolhas de ar. Após o período de homogeneização, o óleo foi introduzido no tubo do aparato.

### **3.6. Determinação da presença de vazio (bolhas de ar) ou material depositado na parede interna do duto da linha de escoamento de óleo**

Para certificar as condições internas dos dutos nas posições de medição, um dispositivo foi desenvolvido para escanear a sessão de medição da linha. Ele é constituído de um detector cintilador 1x1" e uma fonte selada de  $^{241}\text{Am}$  acomodados diametralmente opostos no duto por meio de uma base. A Figura 39a mostra o dispositivo, e a Figura 39b mostra o dispositivo de dispersão instalado no equipamento de fluxo de óleo experimental.

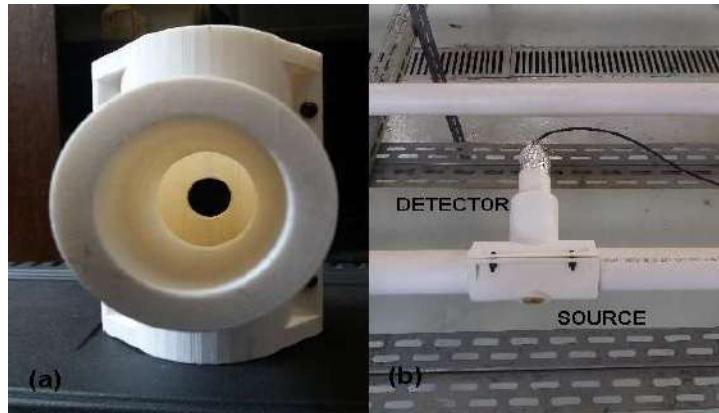


Figura 39. O dispositivo de dispersão é usado para analisar a parede interna do cachimbo e identificar depósitos sólidos ou bolhas de ar

### **3.7. Verificação de escoamento estratificado**

Como exposto no item 2.4.2, fluidos viscosos escoam internamente em dutos com regime laminar e com perfil de velocidades dependente da posição radial do elemento de volume, com deslocamento mais veloz na região central e sofrendo decréscimo da velocidade ao passo que se aproxima das paredes do conduto, como apresentado na figura

5. Esse comportamento provoca um efeito cauda nas curvas RTD que afeta drasticamente a incerteza dos cálculos do tempo médio de residência.

Com objetivo de verificar a presença de escoamentos estratificados, foi desenvolvido e confeccionado em impressão 3D um dispositivo constituído de três partes: um estojo capaz de acomodar até seis detectores cintiladores 1x1”, uma câmara na qual é inserido um bloco de chumbo com a função de colimar os detectores — nesse bloco, foram feitos seis orifícios de 0,005 m de diâmetro posicionados solidários ao centro de cada detector e, completando o dispositivo, uma base para fixar na linha de transporte o conjunto estojo-câmara. A seguir, a Figura 40 mostra o dispositivo.



Figura 40. Dispositivo para verificação de escoamento estratificado

## CAPÍTULO 4

### Resultados e discussões

#### 4.1. Curva característica dos detectores cintiladores

O sinal de resposta à interação da radiação é intrinsecamente ligado às características do detector cintilador NaI (conjunto formado pelo cristal/fotomultiplicador). Quando em um ensaio experimental, usando-se mais de um detector para registrar a movimentação da nuvem radioativa pelo interior do duto, é essencial que todos os detectores sejam calibrados corretamente. O objetivo da metodologia desenvolvida neste trabalho é estabelecer condições para que o resultado da medição de vazão em um duto de escoamento de petróleo e derivados apresente uma incerteza inferior a 1.0%. Para que esse objetivo seja alcançado, a primeira atividade necessária é o levantamento das curvas características de todos os detectores cintiladores envolvidos, pois o desempenho da fotomultiplicadora é extremamente dependente da tensão elétrica aplicada nos catodos.

Seguindo os procedimentos descritos em (MAFRA, 1973; TSOLFANIDES, 1983), foram construídos gráficos da contagem total registrada em função da tensão de operação para cada detector. Foi empregada uma fonte de radiação gama (Cs-137) na geometria  $2\pi$  com os detectores usando blindagem de chumbo na face lateral (3.5 cm de espessura). Recomendamos que esse procedimento seja realizado a cada seis meses. Na Figura 41 e na Tabela 8, estão apresentados os dados referentes às curvas de operação dos detectores conectados ao módulo de aquisição de dados LUDLUM. Pelo gráfico, observa-se um comportamento significativamente uniforme nos detectores 1"x1" conectados ao sistema de aquisição LUDLUM.

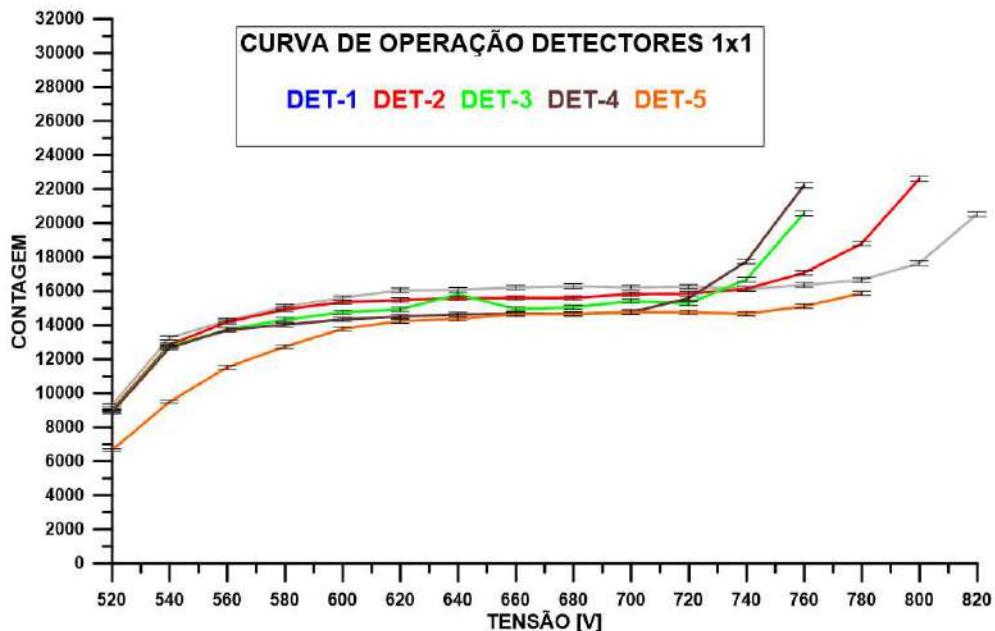


Figura 41. Curva de operação dos detectores cintiladores 1x1” do sistema Ludlum

Tabela 8. Tensão de operação dos detectores cintiladores NaI 1x1

DETECTOR	PLATÔ [V]	TENSÃO [V]	INCLINAÇÃO [% / 100V]
DET1	620	780	2.4
DET2	580	740	5.0
DET3	620	740	5.5
DET4	560	700	5.4
DET5	620	740	3.8

O mesmo procedimento foi repetido para o detector instalado no módulo do contador de atividade total. Na Tabela 9, estão apresentados os dados referentes à curva de operação do detector e na Figura 42, é mostrada a curva de operação do módulo. Nela pode ser observada a presença de uma inclinação mais acentuada na região que compõe o platô no gráfico. Essa inclinação, proporcionada pelo incremento nas contagens em torno de 6% por 100V, pode ser tolerada (KNOLL, 1989; MAFRA, 1973).

Tabela 9. Tensão de operação do detector cintilador NaI 2x2

DETECTOR	PLATÔ [V]	TENSÃO [V]	INCLINAÇÃO [% / 100V]
ATIVIDADE	1120	1300	6,4

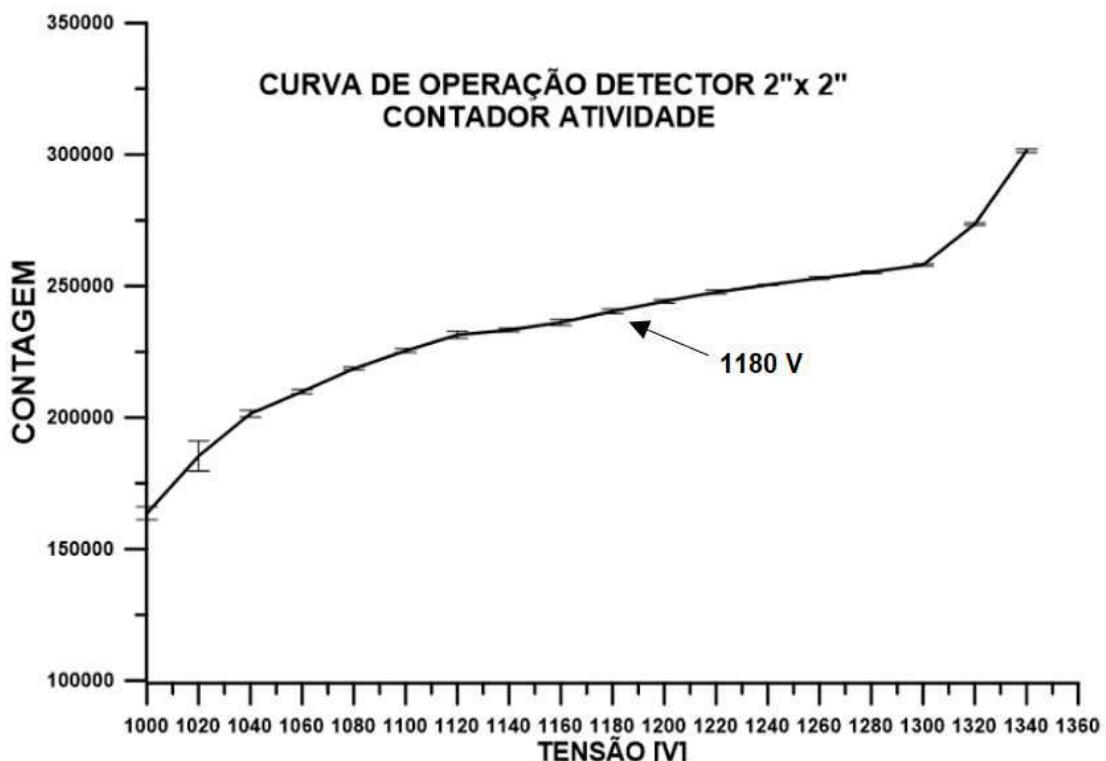


Figura 42. Curva de operação do detectores cintiladore 2x2" do sistema empregado para medir atividade

#### 4.2. Eficiência do detector do módulo de contagem de atividade total

O detector cintilador do módulo de contagem de atividade total já teve a curva de eficiência levantada para uma serie de fontes calibradas (GONÇALVES, 2013) e, como o sistema será empregado para quantificar a atividade das amostras de óleo marcado com radioiodo, foi necessário fazermos uma calibração comparativa usando a mesma geometria, mas usando somente as energias de 59,5 keV ( $^{241}\text{Am}$ ) e 661,7 keV ( $^{137}\text{Cs}$ ). Os valores para comparação constam na Tabela 10.

Tabela 10. Comparaçao de eficiências

ISÓTOPO/ANO	EFICIÊNCIA (%)	INCERTEZA (%)
$^{127}\text{Cs}/2013$	19.80	0.30
$^{127}\text{Cs}/2019$	20.04	0.39
$^{241}\text{Am}/2013$	57.4	1.3
$^{241}\text{Am}/2019$	56.7	1.1

Como mostrado, os dados da eficiência calculados em 2019, quando comparados com os dados de 2013 (GONÇALVES, 2013), apresentam alterações insignificantes e, dessa forma, a equação estabelecida por este para o cálculo da eficiência para diferentes energias gama permanece válida.

#### 4.3. Radiotratador

O  $^{123}\text{I}$  foi o radioisótopo selecionado para ser empregado na pesquisa em função das suas propriedades físico/químicas e da sua disponibilidade, já que o radiofármaco NaI marcado com o  $^{123}\text{I}$  é produzido rotineiramente no IEN pelo grupo de radiofarmácia. A Figura 43 mostra o gráfico referente ao espectro de emissão do  $^{123}\text{I}$ . Nele pode ser observado o Raio-X característico de 27,5 keV e o fotópico bem discriminado referente à emissão de radiação gama de 159 keV.

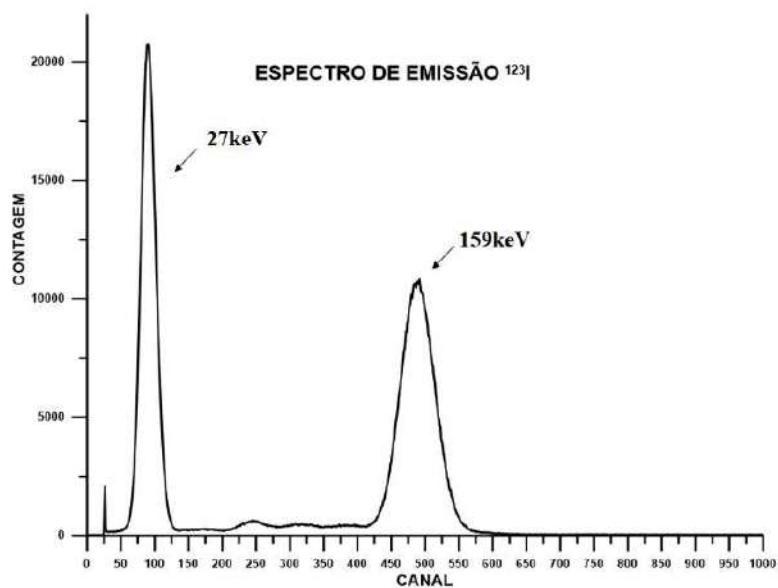


Figura 43. Espectro de emissão do  $^{123}\text{I}$

O processo marcação usa o monocloreto de iodo (ICl) como carreador para ligar o iodo radioativo nas ligações duplas das moléculas de óleo. Esse processo foi desenvolvido pela equipe técnica do laboratório de radiotraçadores. A molécula ICl é polarizada para que possa ser usada para substituição aromática eletrolítica e, por ser facilmente ionizável e reativa, é mais eficaz nessa reação de substituição do que outros

compostos de iodo. Uma grande vantagem de usar ICl para marcar o óleo é que ele pode ser preparado diretamente no sistema usado para rotulagem (BRANDÃO *et al.*, 2009).

#### 4.3.1. Estabilidade do radiotraçador quanto à temperatura

No ensaio para verificar a estabilidade do radiotraçador quanto à variação de temperatura, um arranjo de detecção foi montado frontalmente a um Erlenmeyer submetido a um banho térmico contendo 500mL de óleo não marcado, ao qual foi adicionado 50,0 ml de óleo marcado  $^{123}\text{I}$  e, após homogeneizado, iniciou-se a aquisição dos dados continuamente ao passo que a temperatura era elevada sistematicamente. Os resultados estão apresentados na Figura 44.

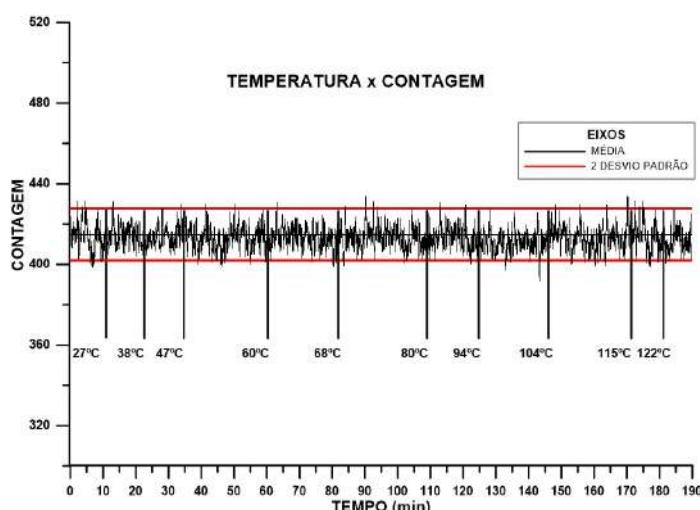


Figura 44. Gráfico referente à variação de temperatura

O gráfico mostra que os dados estão compreendidos dentro do intervalo de dois desvios-padrão, demonstrando que não houve a dissociação do  $^{123}\text{I}$  da molécula do óleo e, assim, provando a estabilidade do radiotraçador quanto à temperatura. O intervalo de temperaturas a que foi submetido o radiotraçador nesse teste, [20 , 122] °C é significativamente maior que a temperatura na qual os trabalhos foram realizados no laboratório, [30 , 40] °C, atestando a total compatibilidade do radiotraçador, quanto à temperatura, com os experimentos propostos nesta pesquisa.

#### **4.3.2. Estabilidade quanto à reação do radiotraçador com as paredes do duto e a possibilidade de que ocorra uma precipitação do óleo marcado durante o escoamento**

O ensaio com o aparato experimental com detectores cintiladores mostrado na Figura 38 foi realizado para verificar duas condições importantes para o radiotraçador: a primeira se o radiotraçador apresentaria movimentação dentro do tubo, principalmente se haveria precipitação dele, evidenciando que o óleo marcado com o radioiodo poderia ser mais denso que o óleo empregado no escoamento; e a segunda se existe interação do radiotraçador com as paredes do duto, verificado quando, do esvaziamento do dispositivo de teste, ainda restar atividade residual nas paredes

Os dados referentes aos três sinais detectados por D1, D2, D3 nos permitem avaliar a qualidade do processo de marcação do óleo. Se o sinal captado por D1 na base do tubo aumentar, será indício da presença de precipitação, indicando que o óleo marcado é consideravelmente mais denso do que o óleo empregado na pesquisa. Se o sinal de D3, que está posicionado na parte superior, aumentar, apontará para a ocorrência de volatilização de  $^{123}\text{I}$  livre, causada pela liberação de iodo radioativo da molécula de óleo marcado, demonstrando que o radiotraçador é instável. Se todos os sinais permanecerem constantes durante o teste, é uma garantia de que o óleo marcado mantém as mesmas propriedades do óleo Lubrax Essencial® .

O resultado do ensaio é mostrado na Figura 45. Verifica-se que, durante o tempo em que o ensaio foi realizado, a taxa de contagem nos três detectores se manteve constante. Essas curvas permitem afirmar que não ocorreu nenhum processo de precipitação do óleo marcado ou mudança de fase (radioiodo sendo liberado da molécula de óleo e passando para a fase gasosa de  $\text{I}_2$ ), pois as taxas de contagem aquisitadas pelos três detectores evidenciam que não houve variação da atividade nas três secções do dispositivo, base, meio e topo.

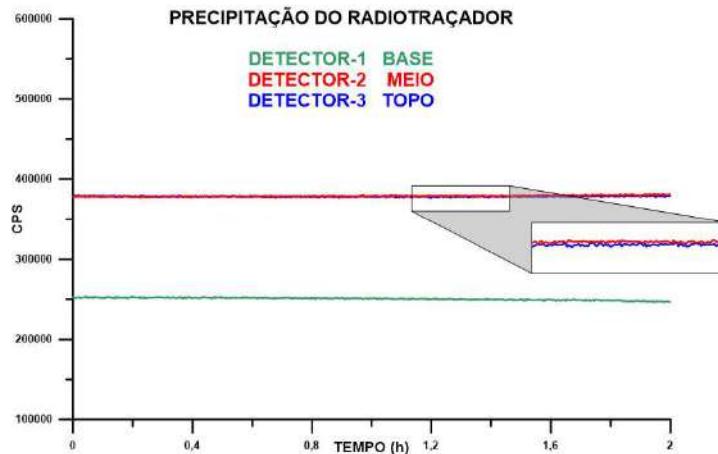


Figura 45. Estabilidade quanto à reação do radiotraçador com as paredes do duto e a possibilidade de que ocorra uma precipitação do óleo marcado

A substancial diferença na intensidade da contagem do detector posicionado na base em relação às contagens dos demais é devido à diferença do ângulo sólido (relação geométrica entre detector e dispositivo de testes).

Após a realização do primeiro ensaio, todo o óleo do dispositivo foi removido e este foi deixado escorrendo por meia hora. Então, 50 ml de óleo não marcado foram introduzidos e agitados vigorosamente, para remover possível resíduo de óleo marcado que tenha ficado aderido às paredes, e uma alíquota de 20  $\mu\text{l}$  foi retirada e levada para o contador de atividade total. Esse procedimento foi repetido três vezes, e, entre cada uma delas, o dispositivo foi posicionado novamente na frente dos três detectores cintiladores e a taxa de contagem registrada. Em todos os ensaios, a atividade residual registrada pelos três detectores estava no nível da radiação de fundo, evidenciando que não havia óleo residual nas paredes do duto. O mesmo resultado foi obtido com as amostras no contador de atividade total. Em todas as análises, a atividade registrada estava abaixo do limite da radiação de fundo.

#### **4.4. Determinação da presença de vazio (bolhas de ar) ou material depositado na parede interna do duto da linha de escoamento de óleo**

A metodologia de medição de vazão pela técnica do transiente de tempo implica que o volume total da região compreendida entre os dois detectores usados para o registro da passagem da nuvem radioativa esteja completamente preenchido por óleo, sem a

presença de bolhas, bolsões de ar e material sólido depositado. Para garantir essa condição, foi feita uma varredura no setor da linha, na qual foram dispostos os detectores cintiladores para medição de vazão, posicionando o dispositivo mostrado na Figura 39 de forma que a radiação gama transmitida fosse medida em duas direções. Foram tomadas 5 contagens nas posições horizontal e vertical ao longo do setor de medição, espaçadas a cada 10.0 cm da linha de escoamento para fluidos orgânicos. A discrepância entre as medições, se houver, implica que a presença de depósito acarretou espalhamento da radiação gama emitida pela fonte de  $^{241}\text{Am}$ . A presença de bolhas de ar, material menos denso que o óleo, faria com que a taxa de contagem registrada fosse maior do que a taxa de contagem de referência ( $8196 \pm 47$ ), medida em uma posição na qual foi comprovada a ausência de qualquer tipo de material. Caso contrário, se as contagens se mostrarem coerentes, indica que a região onde foi feita a varredura está livre de bolhas, bolsões de ar e material estagnado.

A análise dos dados mostrou que o volume interno do duto está livre de depósitos de ar ou material estagnado. Na Tabela 11, estão apresentadas as contagens e suas respectivas incertezas, calculadas pela distribuição estatística T-student com 95% de nível de confiança, referentes aos pontos de instalação dos quatro detectores na linha de transporte para tomadas de medidas de vazão.

Tabela 11. Varredura da linha nas posições de medida usando uma fonte  $^{241}\text{Am}$

Total de contagens de radiação gama				
	Posição D1	Posição D2	Posição D3	Posição D4
<b>Horizontal</b>	(8019±57)	(8068± 63)	(8044 ± 62)	(8141± 57)
<b>Vertical</b>	(8103± 45)	(8071± 43)	(8098± 51)	(8086± 55)

#### 4.5. Medida de vazão pela técnica de velocidades médias

Neste trabalho, na metodologia proposta para medição de vazão, quatro detectores cintiladores NaI(Tl) são montados em posições apropriadas (P1, P2, P3, P4) na linha de transporte para registrar a passagem da nuvem radioativa e, por meio dos dados aquisitados, gerar as curvas RTD que possibilitam calcular o tempo transiente  $\tau$ , a variância  $S^2$  e a velocidade média do escoamento para cada par de sondas cintiladoras. Esse arranjo experimental resulta em seis valores de velocidade de escoamento por meio da combinação D1D2, D1D3, D1D4, D2D3, D2D4, D3D4. Para cada injeção, após o

cálculo das seis velocidades médias de fluxo, o Teste de Dixon (95%) (RORABACHER, 1991) foi aplicado para verificar se há a presença de um outliers.

#### **4.5.1. Verificação de tipos de escoamentos**

Parâmetro importante e que caracteriza o tipo de escoamento, o perfil de velocidades do escoamento está intrinsecamente ligado à qualidade da medição de vazão. Portanto, é de suma importância o seu conhecimento. A depender do formato do perfil de velocidades, o escoamento pode ser classificado como laminar, transição e turbulento. O comportamento do perfil de velocidades também determina o comprimento de região de entrada fluidodinâmica e o ponto de pleno desenvolvimento do escoamento. A partir desse ponto do duto, é a região mais apropriada para instalação dos medidores de vazão e, no caso de emprego de radiotraçador, o posicionamento correto dos detectores. Neste setor do duto, o escoamento está totalmente desenvolvido, com o perfil de velocidade do fluxo praticamente constante.

##### **4.5.1.1. Escoamento turbulento**

Para manter o perfil de velocidades mais uniforme, o escoamento foi submetido a condições que propiciassem a elevação do Número de Reynolds a níveis da ordem de  $10^4$  e ao emprego de retificador de fluxo. Desta maneira, foram feitos experimento com vazões que alcançaram Números de Reynolds iguais a 8085, 9600 e 10107 e o comportamento desses escoamentos estão representados por meio da curva RTD  $E(\theta)$  respectivamente na Figura 46 e na Figura 47.

Nos gráficos, as curvas RTD se sobrepõem, evidenciando que os perfis de velocidades permanecem constante e, como poderá ser observado na próxima sessão, permitiram que a aplicação da metodologia da Técnica de Velocidades Médias proposta neste trabalho alcançasse níveis de incertezas de medidas de vazão que atendam às normas da ANP.

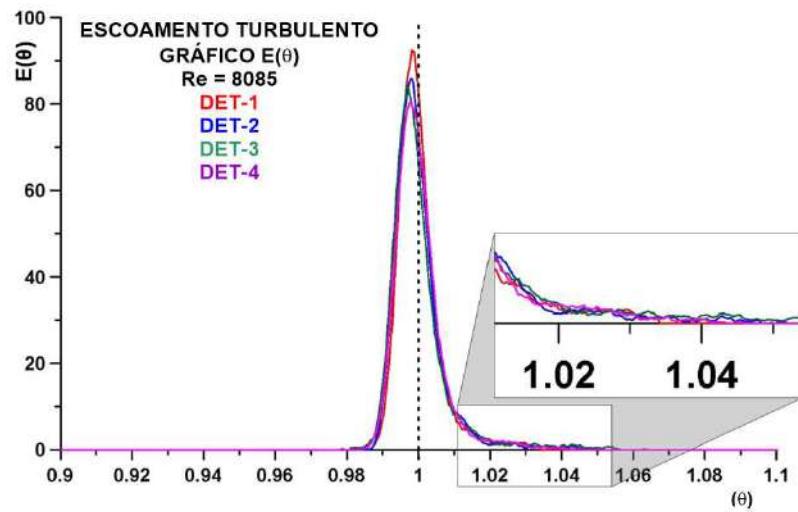


Figura 46. Curva RTD  $E(\theta)$  de escoamento turbulento  $Re = 8085$

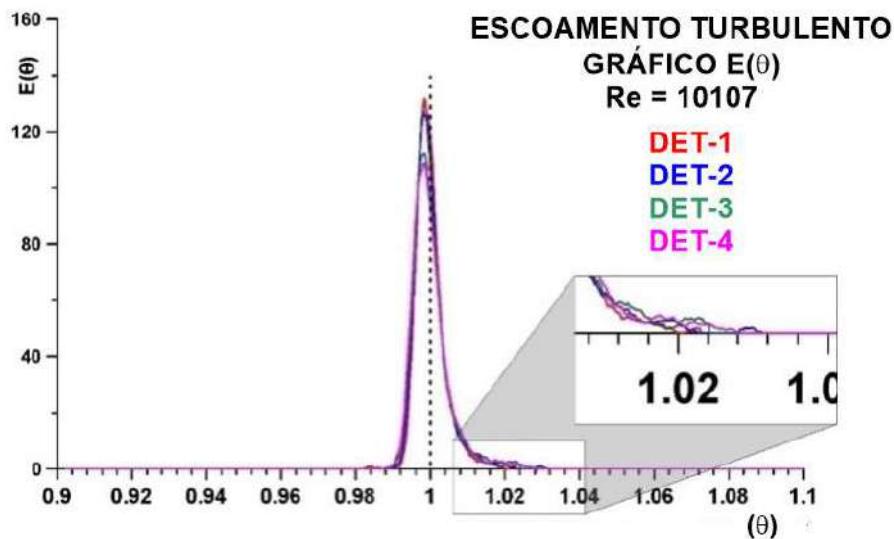


Figura 47. Curva RTD  $E(\theta)$  de escoamento turbulento  $Re = 10107$

As curvas apresentam uma pequena cauda, entre  $\theta = 1,015$  e  $\theta = 1,030$ , e, de acordo com Levenspiel (LEVENSPIEL, 2000), estas são curvas RTD típicas para um modelo de dispersão axial com baixo coeficiente de dispersão. O tempo de residência foi calculado para cada detector posicionado, e as curvas mostram que o máximo é um pouco diferente de  $\theta = 1,0$ . Isso é consequência da contribuição do efeito de cauda proporcionado pela queda na velocidade de escoamento na região próxima à parede do duto, deslocando o tempo de residência  $\tau$  para a direita.

#### 4.5.1.2. Medição de vazão para perfil de escoamento turbulento

Apesar de fluxos de fluidos viscosos sejam caracterizados por escoamento laminar, em situações de elevado Número de Reynolds e emprego de retificadores de fluxo, pode-se atingir condições, pelo menos localmente, em que o escoamento apresente perfil de velocidades típico de escoamentos turbulentos e em que a velocidade de deslocamento do fluido internamente ao duto possa ser considerada constante na seção transversal do duto.

Para verificar a aplicabilidade da metodologia da técnica de velocidades médias, foram bombeados inicialmente três escoamentos distintos com vazões iguais a 800 L/h, 950 L/h e 1000 L/h e com Números de Reynolds de 8085, 9600 e 10107, respectivamente. De posse dos dados aquisitados pelos sistemas de detecção, foram calculadas as velocidades médias de deslocamento do fluxo entre as posições dos detectores. Os resultados para os valores são mostrados na Tabela 12, na Tabela 13 e na Tabela 14.

Tabela 12. Velocidades médias (em cm/s) para injeções T1, T2 and T3 VR = 800 L/h  
(Re = 8085)

<b>Injection</b>	<b>D1D2</b>	<b>D1D3</b>	<b>D1D4</b>	<b>D2D3</b>	<b>D2D4</b>	<b>D3D4</b>	<b>V<sub>Mj</sub></b>
<b>T1</b>	76.95	78.36	77.53	77.59	76.87	77.87	77.53
<b>T2</b>	76.89	77.99	78.09	77.87	78.22	77.96	77.84
<b>T3</b>	76.83	78.39	77.6	77.99	78.14	78.19	77.86

Tabela 13. Velocidades médias (em cm/s) para injeções T1, T2, and T3 VR = 950 L/h  
(Re = 9600)

<b>Injection</b>	<b>D1D2</b>	<b>D1D3</b>	<b>D1D4</b>	<b>D2D3</b>	<b>D2D4</b>	<b>D3D4</b>	<b>V<sub>Mj</sub></b>
<b>T1</b>	93.16	90.07	92.24	91.85	93.87	91.12	92.04
<b>T2</b>	93.11	91.02	91.79	91.12	92.23	92.85	92.01
<b>T3</b>	93.07	90.47	91.92	93.09	93.89	90.86	92.50

Tabela 14. Velocidades médias (em cm/s) para injeções T1, T2, and T3 RV= 1000 L/h  
(Re = 10107)

<b>Injection</b>	<b>D1D2</b>	<b>D1D3</b>	<b>D1D4</b>	<b>D2D3</b>	<b>D2D4</b>	<b>D3D4</b>	<b>V<sub>Mj</sub></b>
<b>T1</b>	97.26	96.95	98.89	97.14	97.78	97.08	97.52
<b>T2</b>	96.86	98.22	97.13	96.99	98.08	97.68	97.49
<b>T3</b>	98.46	97.21	98.09	97.39	97.01	97.95	97.69

A metodologia de Técnica de Velocidades Médias é uma situação típica para aplicação do método de Análise de Variâncias com um fator (a velocidade do escoamento) e três grupos (injeções 1, 2, 3) resultando em seis réplicas para cada injeção. A análise de variância nos permite analisar a variabilidade do sistema de medição e examinar as interações entre as três injeções de radiotraçador. Caso os dados estejam homogêneos, conclui-se que eles representam o mesmo fenômeno, ou melhor, se a hipótese nula for satisfeita, temos:

$$H_0 = \bar{v}_{\text{injeção}1} = \bar{v}_{\text{injeção}2} = \bar{v}_{\text{injeção}3} \quad (4.1)$$

A principal condição necessária para o teste de Distribuição de Fisher é que toda a velocidade de escoamento calculada para cada par de detector de cintilador deve seguir uma distribuição normal. Para confirmar essa condição, todos os dados das três injeções devem passar por um teste de normalidade de acordo com o teste de Shapiro-Wilk (SHAPIRO, WILK, 1965, MONTGOMERY, 2013). Os testes comprovaram que os valores das velocidades foram retirados de uma população com distribuição normal. A Figura 48 mostra os gráficos referentes aos testes de normalidade dos valores das velocidades médias relativas às vazões de referência 1000L/h e 800 L/h.

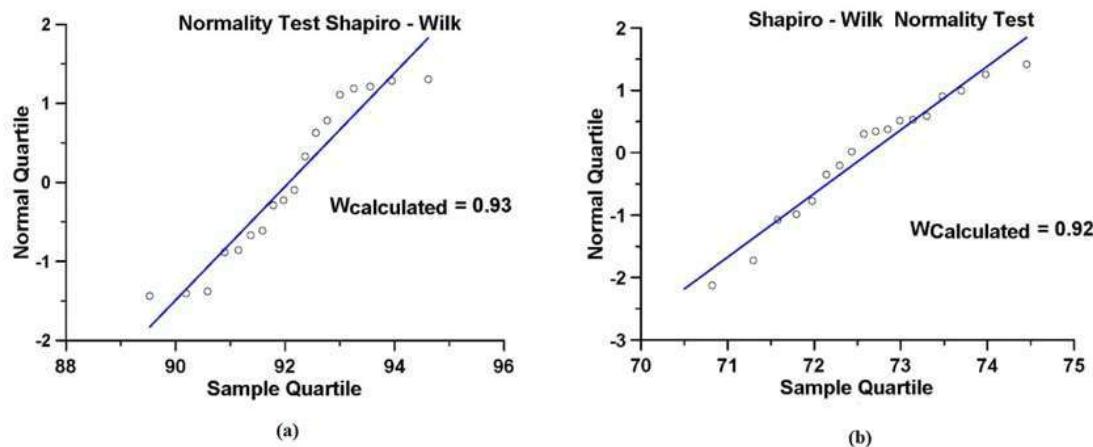


Figura 48. Testes de normalidade para vazão 1000 L/h (a) e 800 L/h (b).

Após a certificação de que os dados obedecem à Distribuição Normal, os valores das velocidades relativas a cada vazão foram submetidos à análise de variância por meio do teste de Distribuição de Fisher. Se a hipótese nula for aceita, não há diferença estatística, entre as três velocidades médias de fluxo, a velocidade média final de fluxo é igual à grande média, GM, da velocidade de fluxo  $v_{Mj} = 1,2,3$  e a variância final será igual à variância total, considerando um nível de significância igual a 95%. O resultado dos cálculos estão dispostos nas Tabela 15, Tabela 16 e Tabela 17.

Tabela 15. Análise de variância para vazão de referência 800L/h

Experimento <b>Q = 797.72 L/h</b>					
	<b>SQ</b>	<b>GL</b>	<b>MQ</b>	<b>F<sub>0</sub></b>	<b>f<sub>tabelado</sub></b>
<b>Entre Grupos</b>	0.4065444	2	0.2032722	0.7024324	3.68
<b>Dentro Grupos</b>	4.34075	15	0.2893833		
<b>TOTAL</b>	4.7472944	17			

Tabela 16. Análise de variância para vazão de referência 950L/h

Experimento <b>Q = 944.84 L/h</b>					
	<b>SQ</b>	<b>GL</b>	<b>MQ</b>	<b>F<sub>0</sub></b>	<b>f<sub>tabelado</sub></b>
<b>Entre Grupos</b>	0.1338111	2	0.0669056	0.0446827	3.68
<b>Dentro Grupos</b>	22.460217	15	1.4973478		
<b>TOTAL</b>	22.594028	17			

Tabela 17. Análise de variância para vazão de referência 1000L/h

Experimento <b>Q = 1001.14 L/h</b>					
	<b>SQ</b>	<b>GL</b>	<b>MQ</b>	<b>F<sub>0</sub></b>	<b>f<sub>tabelado</sub></b>
<b>Entre Grupos</b>	0.1312333	2	0.0656167	0.1648214	3.68
<b>Dentro Grupos</b>	5.9716167	15	0.3981078		
<b>TOTAL</b>	6.10285	17			

Como pode ser observado, os valores calculados ( $F_0$ ) para as três vazões ficaram bem abaixo do  $f_{tabelado}$  para  $\alpha = 0.05$ , demonstrando a consistência dos dados para aceitação da hipótese nula. Dessa forma, podemos afirmar que os valores das velocidades médias para cada vazão podem ser considerados iguais.

A Tabela 18 mostra, para cada valor de referência (VR), a vazão medida (Q), a incerteza relativa (rv%) e o erro calculado, comparando a vazão medida com o valor de referência medido, usando o medidor de vazão calibrado instalado na plataforma de escoamento de óleo.

Tabela 18. Relação entre dados de medidas de fluxo turbulento

<b>(VR <math>\pm 0.35\%</math>) (L/h)</b>	<b>Q (L/h)</b>	<b>rv (%)</b>	<b>Erro Percentual (%)</b>
800 Re = 8085	796.8 $\pm$ 5.9	0.74	0.4
950 Re = 9600	944.0 $\pm$ 8.0	0.85	0.6
1000 Re = 10107	1000.0 $\pm$ 6.9	0.69	0.005

#### 4.5.1.3. Escoamento laminar e de transição

Fluidos viscosos fluem internamente em dutos em regime laminar, com perfil de velocidades em formato tipicamente parabólico, devido ao escoamento ser estratificado radialmente, mais rápido na região central e mais lento próximo à parede do duto. Esse comportamento do perfil de velocidades provoca um efeito cauda no gráfico que representa os dados aquisitados pela passagem da nuvem do radiotraçador em frente ao detector, como pode ser observado na Figura 49 e consequentemente nas curvas E(t) e E( $\theta$ ), Figura 50 e Figura 51, provocando um incremento na incerteza da medida que, de modo geral, impossibilita sua aceitação para seu uso na indústria.

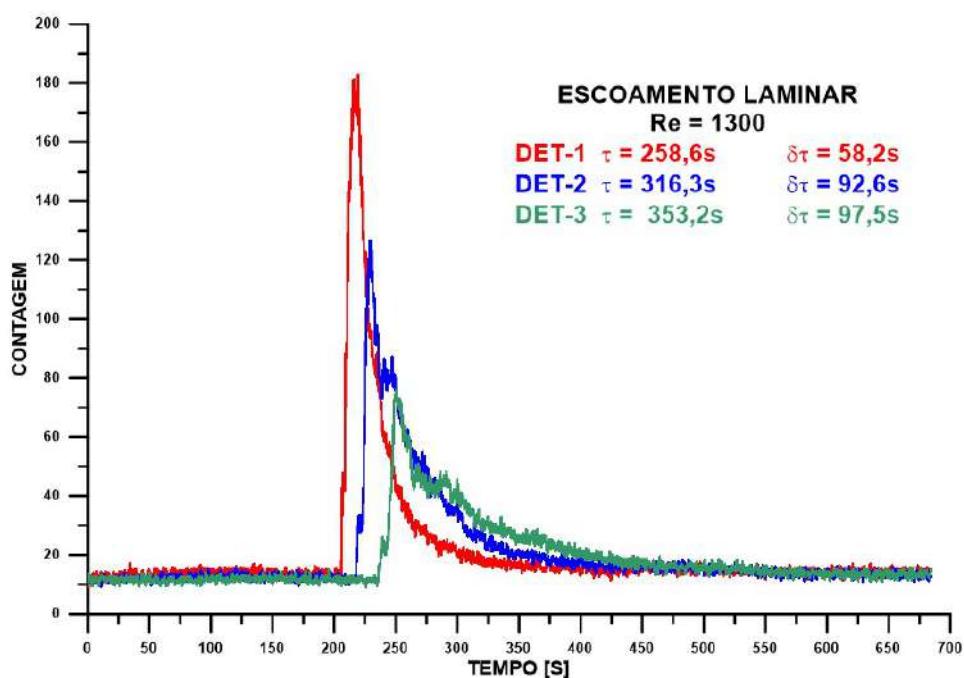


Figura 49. Escoamento de óleo Re = 1300

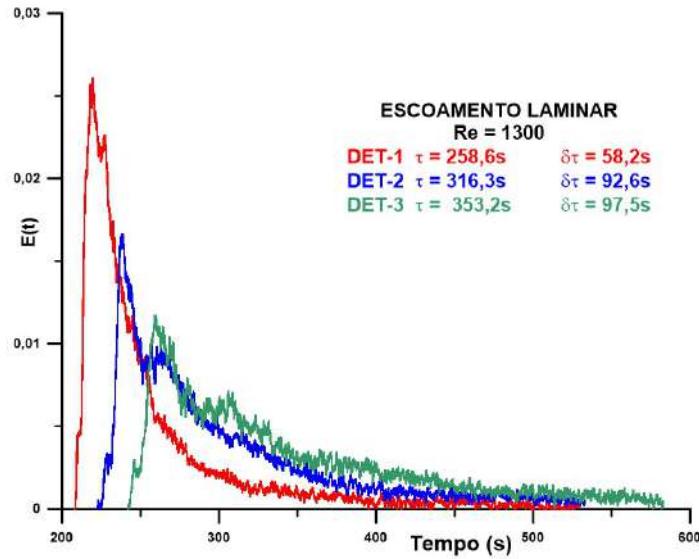


Figura 50. Curva RTD  $E(t)$  de escoamento laminar de óleo  $Re = 1300$

Na Figura 50, pode ser observado que, na posição do detector-1, grande parte do fluido escoa com a mesma velocidade e uma parte se desloca mais lenta, formando a cauda no gráfico. Contudo, à medida que o fluido flui no duto, o perfil de velocidades do escoamento sofre alteração e a porção de volume mais lento cresce em detrimento da mais veloz até atingir o estado de pleno desenvolvimento do escoamento, como pode ser melhor observado no gráfico  $E(\theta)$ , representado na Figura 51.

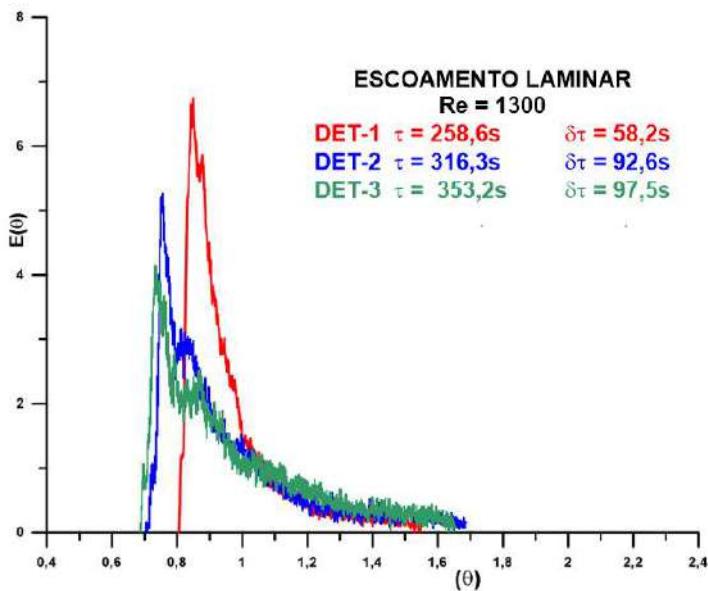


Figura 51. Curva RTD  $E(\theta)$  de escoamento laminar de óleo  $Re = 1300$

Para certificar a presença de escoamentos estratificados na linha de transporte do laboratório, foi utilizado o dispositivo descrito na seção 3.7, mostrado na figura 53 e, por meio do programa ATOMUM\_MOMENTS, cedido pela empresa ATOMUM Serviços Tecnológicos Ltda, empregou-se a teoria de momentos estatísticos para calcular a RTD para cada par de detector. A Tabela 19 descreve os valores dos intervalos de tempo de passagem do radiotraçador entre o par detectores de cada camada verificada pelos conjuntos de detectores acoplados à linha de transporte a 4,0m a jusante do retificador de fluxo, seguindo a disposição do esquema mostrado na Figura .



Figura 52. Diagrama de posicionamento dos detectores no dispositivo experimental



Figura 53. Dispositivo experimental instalado na linha de transporte

Tabela 19. Velocidades de cada camada estratificada

CONJUNTOS	$\tau$	$\sigma\tau$
DETECTORES-12	5,31	0,04
DETECTORES-34	6,75	0,02
DETECTORES-56	6,10	0,05

Conforme pode ser observado na Tabela 19, os valores indicam a presença de escoamento estratificado.

O comportamento do perfil de velocidades, para escoamento no limiar da mudança de regime laminar para de transição,  $Re = 2300$ , também não permite calcular medidas de vazão com incertezas aceitas pela ANP, como será demonstrado na próxima seção, pois ainda há grande alteração do perfil de velocidades do escoamento na seção do duto destinado para medição de vazão como pode ser observado nas curvas  $E(\theta)$  mostradas na Figura 53.

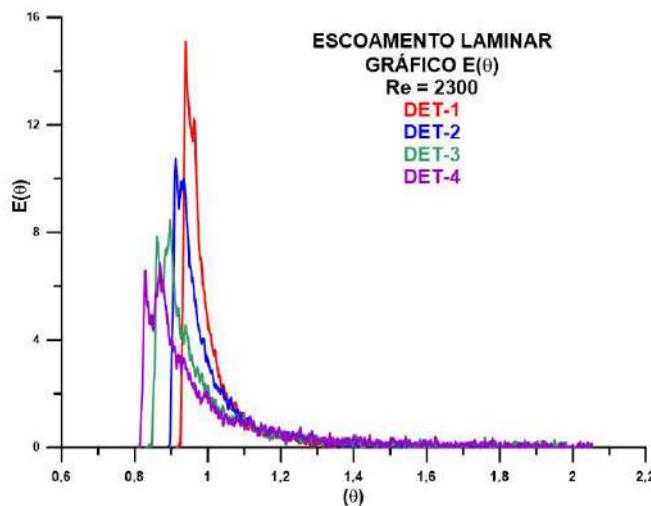


Figura 53. Curva RTD  $E(\theta)$  de escoamento laminar de óleo  $Re = 2300$

O escoamento com Número de Reynolds na faixa 5000 pode ser caracterizado como um escoamento em regime de transição. Ele também produziu alteração no perfil de velocidades enquanto se deslocava no trecho do duto no qual foram feitas as medições de vazão. Ao passar por detectores posicionados mais distante do retificador de fluxo, nota-se um incremento no efeito cauda no gráfico que representa a RTD semelhante aos reproduzidos nos gráficos referentes ao escoamento em regime laminar, como pode ser observado na Figura 54, que mostra as curvas  $E(\theta)$  dos quatro detectores.

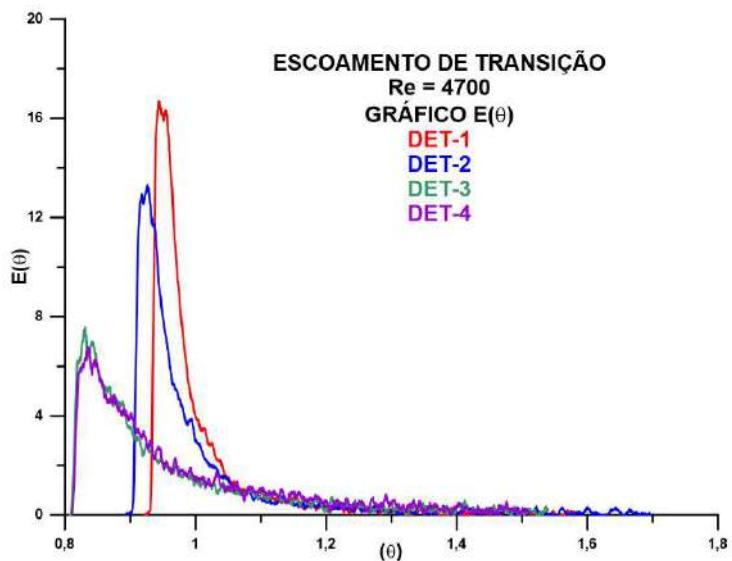


Figura 54. Escoamento de óleo em regime de transição  $Re = 4700$

Fato interessante a ser notado nesse gráfico é que o escoamento está plenamente desenvolvido ao passar pela posição em que o detector-3 está instalado, pois não há mudança no comportamento da curva referentes ao detector-4 em relação a do detector-3, caracterizando, assim, o comprimento de entrada do escoamento.

#### 4.5.1.4. Medição de taxa de vazão para perfil de escoamento laminar

Diferente dos experimentos de escoamentos com Número de Reynolds da ordem de  $10^4$ , no escoamento laminar, não existe velocidade de escoamento constante na seção transversal do duto. Como a concentração do radiotraçador no óleo depende do perfil de velocidades do escoamento dentro do duto, no fluxo laminar, a distribuição estratificada de velocidades causa a existência de picos e caudas nas curvas de RTD devido às contagens registradas para as frações do radiotraçador que se movem em velocidades diferentes. Isso pode ser visto nas curvas RTD para uma vazão de referência de 600L/h e Número de Reynolds 2300 plotadas na Figura 55.

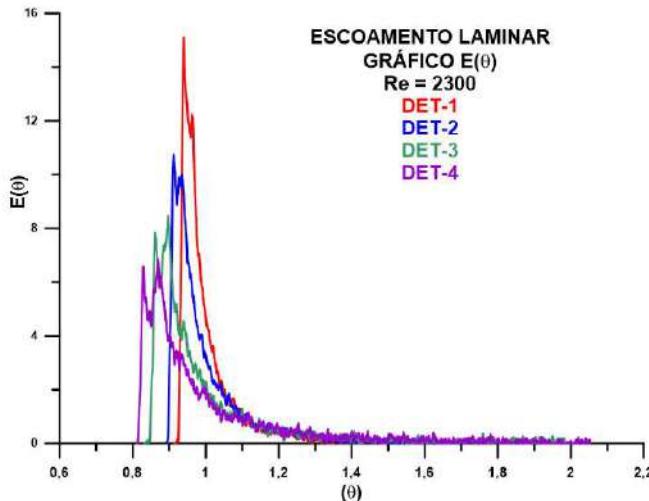


Figura 55. Curva RTD  $E(\theta)$  de escoamento laminar de óleo  $Re = 2300$

As curvas são diferentes das registradas para os casos de escoamentos com características de turbulento. No escoamento laminar, as curvas RTD apresentam algumas estruturas de picos muito mais afastadas da posição  $\theta = 1,0$  em relação aos casos de escoamentos tipicamente turbulentos, que correspondem às camadas de óleo mais rápidas que são registradas em primeiro lugar. Após, o sinal é decrescente, causado pela distribuição do radiotraçador nas camadas lentas, que movem cada uma delas com uma velocidade menor do que a camada anterior. Esse amortecimento cria uma cauda longa na RTD, e, por causa dessa cauda, as variâncias  $S^2$  nos fluxos laminares são muito maiores do que no caso dos escoamentos turbulentos. A curva RTD retorna apenas ao valor de fundo para  $\theta > 1,6$ .

A Tabela 20 mostra o resultado da análise de variância para os dados após passar pelo Teste de Dixon, quando um dado foi rejeitado. Observa-se que os dados levam à aprovação da hipótese nula pelo teste de distribuição estatística de Fisher, isto é, os dados são homogêneos quanto ao comportamento estatístico.

Tabela 20. Análise de variância para vazão de referência 600L/h

Experimento $Q = 426.62 \text{ L/h}$					
	SQ	GL	MQ	$F_0$	f tabelado
<b>Entre Grupos</b>	7.605	2	3.803	1.651	3.74
<b>Dentro Grupos</b>	27.639	14	2.303		
<b>TOTAL</b>	154.001	16			

A Tabela 21 mostra, para cada valor de referência (VR), a vazão medida (Q), a incerteza relativa (rv%) e o erro calculado, comparando a vazão medida com o valor de referência medido, usando o medidor de vazão calibrado instalado na plataforma de escoamento de óleo.

Tabela 21. Relação entre dados de medidas de fluxo laminar

<b>(VR ± 0.35%) (L/h)</b>	<b>Q (L/h)</b>	<b>rv (%)</b>	<b>Erro Percentual (%)</b>
600 Re = 2300	426 ± 26	6.1	29

Os resultados mostram uma discrepância considerável entre o valor de referência da vazão de 600L/h, medida pelo medidor instalado na linha de transporte, e o valor calculado pela metodologia de Técnica de Velocidades Médias, demonstrando a impossibilidade do emprego da metodologia apresentada neste trabalho em escoamentos com perfil de velocidades tipicamente de escoamentos laminar. Contudo, para escoamentos com Número de Reynolds da ordem de  $10^4$ , conforme a Tabela 18, a metodologia proposta ofereceu resultados altamente consistentes, inferiores a 1,0 %.

## CAPÍTULO 5

### Conclusões

Como exposto no Capítulo 1, são raras as publicações que descrevem o emprego de radiotraçadores em medição de vazão em derivados de petróleo na fase líquida. Embora existam normas ISO para medida de vazão com técnicas que fazem uso de radiotraçadores para escoamento em dutos de água e de gás, não há regulamentação específica para medida de vazão em escoamento de óleo bruto e derivados líquidos de petróleo. É neste cenário que foi concebida esta pesquisa de desenvolvimento de metodologia, e, ao término dela, chega-se às conclusões descritas a seguir.

Foram projetadas e montadas linhas de transporte de fluidos orgânicos que atenderam, de maneira adequada, às especificidades para a realizações dos ensaios experimentais necessários para o desenvolvimento do presente trabalho. Destacamos também que, para controlarmos a qualidade dos resultados, foi necessária a instalação de dois dispositivos: o primeiro deles foi o inversor de frequência, que possibilitou regular a vazão de forma precisa; e o segundo, o regulador de fluxo, que propiciou a adequação do perfil de velocidades do escoamento às condições necessárias para alcançar o nível de precisão proposto neste trabalho.

Quanto ao radiotraçador, a decisão de escolhermos o radioiodo foi por este ser um radiofármaco disponível em todo o país nas quantidades necessárias e por possuir energia de emissão de radiação gama e meia-vida adequadas à execução do trabalho. Outro ponto importante que ressalta a decisão de usarmos um radioiodo está na eficiência do processo de síntese que proporcionou atividade compatível às necessidades requeridas para os testes e experimentos. O teste em que foi submetido para verificação de seu comportamento quanto à estabilidade química-física e a possibilidade de ocorrerem reações com as paredes internas do duto comprovaram sua estabilidade quando este é homogeneizado com o óleo utilizado como fluido na linha de transporte. No teste de banho térmico, em que foi submetido à variação de temperatura, o radiotraçador mostrou-se estável, mesmo para temperaturas significativamente acima das quais foram feitos os experimentos.

A ausência de volumes vazios e depósitos de materiais junto às paredes de dutos é condição imprescindível para o emprego da metodologia de medida de vazão realizada nesta pesquisa. Sendo assim, a metodologia e o dispositivo de varredura desenvolvidos mostraram-se totalmente eficazes na verificação da presença de tais anomalias.

O escoamento com perfil de velocidades estratificado, típico em fluidos viscosos, acarreta distorções significativas na medição de vazão. O emprego do dispositivo desenvolvido neste trabalho, para verificar a presença de escoamentos com esse comportamento, apresentou resultado bastante consistente.

A ANP exige que as medições de movimentações de petróleo e seus derivados obedeçam a normas rígidas quanto às incertezas dessas medições. Assim, a metodologia proposta neste trabalho foi desenvolvida com o intuito de atender aos padrões de medidas de vazão regulamentados por esta agência, e, ao final deste trabalho, concluiu-se que parte dos objetivos foi alcançado, como descrito a seguir:

A metodologia da técnica de velocidades médias foi aplicada em escoamentos que apresentavam regimes com características laminar, de transição e turbulento. Para os escoamentos com comportamento laminar e de transição, a metodologia proposta se mostrou não aplicável. O perfil de velocidades nesses tipos de escoamentos, mesmo com retificador de fluxo instalado a montante, produz uma dispersão na nuvem do radiotraçador injetado no sistema que provoca um efeito cauda nas curvas de RTD, o que leva a resultados imprecisos e inexatos, como pode ser observado no experimento referente à vazão de 600L/h ( $Re = 2300$ ).

O emprego da metodologia da técnica de velocidades médias em escoamentos com características tipicamente de regimes turbulentos, apresentando Número de Reynolds próximos a  $10^4$ , demonstrou resultados com consistente reprodutibilidade, em consonância com os valores de referência fornecido pelo medidor digital classificado como padrão e excelente precisão, em torno de 0,8%. Esse valor de incerteza é bem próximo ao alcançado no exemplo demonstrativo em água contido na norma ISO-2975-7 (0,5%), e, com esse nível de incerteza, dentro da Classe 1,0%, a ANP autoriza o uso do sistema de medição de vazão para apropriação em dutos ou em sistema para carregamentos de navios.

## Trabalhos futuros

Como trabalhos futuros proponho:

- desenvolver metodologia que permita medir vazão de petróleo e seus derivados líquidos em regime de escoamento laminar;
- buscar melhorias nos níveis de incertezas para medição de vazão por meio da metodologia da técnica de velocidades médias em escoamentos de petróleo e seus

derivados líquidos com a otimização das geometrias das blindagens, colimação e do posicionamento dos detectores;

- realizar experimentos em escoamentos aquosos no interesse de inferir a qualidade de medidas de vazão nesse meio com a metodologia aqui apresentada.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICA

- ABNT, INMETRO, 2003. *Guia para a Expressão da Incerteza de Medição (GUM)*. Rio de Janeiro, ABNT/ INMETRO.
- AFONSO, J. R., CASTRO, K. P., 2011, “Carga Tributária sobre petróleo no Brasil: evidências e opções”, Portal de Economia do José Roberto Afonso.
- ANP, 2000, *Portaria Conjunta nº 01, de 19 de junho de 2000*. Rio de Janeiro, ANP/INMETRO.
- ANP, 2010, *Resolução Conjunta ANP/INMETRO, nº 01, de 23 de junho de 2010*. Rio de Janeiro, ANP/INMETRO.
- ANP, 2013, *Resolução Conjunta ANP/INMETRO, nº 01, de 10 de junho de 2013*. Rio de Janeiro, ANP/INMETRO.
- ANP, 2019, *Anuário estatístico brasileiro do petróleo, gás natural e biocombustíveis*. Rio de Janeiro, ANP.
- AKERMAN, K., SZUCHNIK A., 1964. “Some Aspect of the possibilities of Application of Labelled Organic-Metallic Compounds to Investigate Material Movement in the Refining and Petrochemical Industry”. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, v.15, pp 319-324.
- AL-DAHHAN, M. 2008, “Radioisotope Applications in the Petrochemical Industry: An Overview”, *Radioisotopes Applications*, v. 10, n. 1, pp. 1-10.
- ARADHYA, S., TAOFEEQ, H., AL-DAHHAN, M., 2017, “Flow regime identification in spouted beds using gamma-ray densitometry”, *Flow Measurement and Instrumentation*, v. 55, pp.67-72.
- AUDUBON COMPANIES. 2016. *The importance of flow meter accuracy in gathering operations*.
- AVÍLA, M., 2019, “Tributação do petróleo: da exploração ao refino”, *Cenários Petróleo*.
- AYADI, A., NASRAOUI, H., BOUABIDI, A. et al., 2018, “Effect of the turbulence model on the simulation of the air flow in a solar chimney”. *International Journal of Thermal Sciences*, v. 130, pp. 423-424.
- BALIÑO, J. L., 2020. *Escoamento em dutos*. Rio de Janeiro, USP.
- BARRY, B. J., 1978, “Flow Measurement by the Dilution Method with Incomplete Mixing”. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, v.29, pp 525-529.
- BENEDICT, R. P., 1980, *Fundamentals of pipe flow*, New York, Willey.
- BOWMAN, N., 2019, “The importance of accurate flow measurement in industrial process”, *Flow Control*, pp. 1-11.

BRANDÃO, L. E. B., 2003, “Análise de Unidades Industriais pela Técnica de Traçadores Radioativos – Função Distribuição do Tempo de Residência”. *Relatório Técnico – IEN*, n. 17. Instituto de Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro.

BRANDÃO, L. E. B., MIRANDA, R. E. C., OLIVEIRA, R. L., 2009, “Methodology for Labeling Oil Products with  $^{123}\text{I}$ ”. In: *International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2009*, pp. 1-5

BRASIL, 1997, *Lei nº 9.478, de 6 de agosto de 1977*. Brasília, Presidência da República.

CAMPBELL, B. L., ELLIS, W. R., 1965. “The Development of Oil-Soluble Gold-198 Compounds for Industrial Radiotracing”, *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, v.16, pp 257-259.

CAMPOS, M. C., 2018. *Medição de velocidade e vazão em fluidos*. Curitiba, UFPR.

CFD SUPPORT, 2021. Laminar vs. Turbulent flow, Sokolovská. Disponível em: <<https://www.cfdsupport.com/OpenFOAM-Training-by-CFD-Support/node334.html>>. Acesso em: 21 set. 2021.

CLAYTON, C. G., 1965, “The measurement of flow of liquids and gases using radioactive isotopes”. In: *Meeting at the Institution of Civil Engineers*, London, SW1, 20 Jan 1965.

CLAYTON, C. G., WEBB, J. W., WHITTAKER, J. B., 1963. “The dispersion of gas during turbulent flow in a pip”, *British Journal of Applied Physics*, v. 14, pp. 790.

CANDEIRO, R. E. M., 2008. *Unidade Compacta para Produção de Radiotraçador or Gasoso CH382BR e Desenvolvimento de Metodologia para Inspeção em Instalações Industriais*. Tese de D.Sc., COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

CHENG, D. C., HEYWOOD, N. I., 1984. “Flow in pipes. I. Flow of homogeneous fluids”. In: *Physics in Technology*, v. 15, n. 5, pp. 244.

CRABTREE, M. A., 2009, *Industrial flow measurement*. Master’s thesis, University of Huddersfield, Huddersfield, West Yorkshire, England, UK.

DANCKWERTS, P. V., 1953, “Continuous Flow Systems. Distribution of residence Times”, *Chemistry. Engineers. Society*, v. 2, n. 2, pp. 1-13.

DANTAS, J. A. T. A., PEGORARO, P. R., GUT, J. A. W., 2014, “Determination of the effective radial mass diffusivity in tubular reactors under non-Newtonian laminar flow using residence time distribution data”, *International Journal of Heat Mass Transfer*, v. 71, pp. 18-25.

DUPUIS, E. J., 2014, “Oil and Gas Custody Transfer – when money changes hands, flow measurement accuracy matters”, *Petroleum Africa*, pp. 24-29.

- EBENEZER, S. A., 2006, *Tracer Behavior in Pipelines with Deposits and Analysis of Natural Gas Pressure Functions*. Thesis D. Sc., Norwegian University of Science and Technology, Trondheim, Norway.
- EKAMBARA, K.; JOSHI, J. B, 2003, “Axial mixing in pipe flows: turbulent and transition regions”, *Chemical Engineering Science*, v. 58, n. 12, pp. 2715-2724.
- EPA, 2006. *Data Quality Assessment: Statistical Methods for Practitioners*, EPA QA/G-9S. Washington/Dc, EPA.
- EVANS, R. A., ELY, R. L., 1964. “Derivation of the Tracer Balance Equation for Flow Measurements”. *Research Triangle Institute*, v. 15, n. 5, pp. 309-310.
- FRIES, B. A., 1961, “Radiative Tracers”. *United States Patent Office*. Patent No 3,014,054.
- FOX, R. W., MCDONALDS, A. T., 1988, *Introdução à mecânica dos fluidos*, 3 ed., Rio de Janeiro, Editora Guanabara.
- GARDNER, R. P., DUNN, T. S., 1977, “The development of Radiotracer Methods for Laminar flow Measurements in Small Channels-I”. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, v.28, pp 347-354.
- GASPAR, E., ONCESCU, M., 1972, *Developments in Hydrology: Radioactive Tracers in Hydrology*, Romênia, Ed. Academiei Republicii Socialiste România.
- GHORBANI, H., WOOD, D. A., CHOUBINEHM, A. et. al., 2018, “Prediction of oil flow rate through an orifice flow meter: artificial intelligence artifices compared”, *Petroleum*, v. 6, n. 2020, p. 404-414.
- GODLEY, A., 2002, “Flow measurement in partially filled closed conduits”. *Flow Measurement and Instrumentation*, v. 13, pp 197-201.
- GONÇALVES, E. R., 2013, *Desenvolvimento de Metodologia para Medidas de Atividade Total de Amostras de Óleo Marcado com <sup>198</sup>Au*. Dissertação de M. Sc., COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.
- GONÇALVES, E. R., BRANDÃO, L. E. B., BRAZ, D., 2021, “Validation of transiente time method to calibrate oil flow meters in closed conduits using <sup>123</sup>I as the Radiotracer”. *Nukleonika*, v. 66, pp 69-74.
- GRACZYK, J., ILLER, E., 1976, “The Applicability of Radiotracers for the Investigation of the distillation”. *Journal of Radioanalytical Chemistry*, v. 33, pp 175-185.
- GÜNER, METIN, 2016. *Fluid Mechanics*, Ankara, Ankara University. Disponível em: [https://acikders.ankara.edu.tr/pluginfile.php/16643/mod\\_resource/content/1/WEEK%202011%20OF%20AQS110%20FLUID%20MECHANICS.pdf](https://acikders.ankara.edu.tr/pluginfile.php/16643/mod_resource/content/1/WEEK%202011%20OF%20AQS110%20FLUID%20MECHANICS.pdf). Acesso em: 21 set. 2021.

- HART, J. R., 2013, *Longitudinal Dispersion in Steady and Unsteady Pipe Flow*. Thesis de D. Sc., The University of Warwick, Coventry, England, UK.
- HART, J. R. GUYMER, I., SONNENALD, F. et al., 2016, “Residence Time Distribution for Turbulent, Critical, and Laminar Pipe Flow”, *Journal of Hydraulic Engineering*, v. 42, n. 9, pp. 1-16.
- HULL, D. E., 1958, “The Total-Count Technique: A New Principle in Flow Measurement”, *International Journal of Applied Radiations and Isotopes*, v. 4, n. 1-2, pp. 1-15.
- IAEA, 1990, *Guidebook on Radioisotope Tracers in Industry: Technical Reports Series No. 316*, Viena, IAEA.
- IAEA, 2004, *Radiotracer applications in industry: a guidebook*.
- IAEA, 2001, *Radiotracer Technology as Applied to Industry-Tecdoc-1262*. Viena, IAEA.
- IAEA, 2008, *Radiotracer Residence Time Distribution Method for Industrial and Environmental Applications: Training Course Series No 31*, Viena. IAEA.
- INCROPERA, F. P., DEWITT, D. P., 2003. *Fundamentos de Transferência de Calor e de Massa*. 5 ed. Rio de Janeiro, LTC editora.
- INMETRO, 2003, *Portaria Inmetro nº 064, de 11 de abril de 2003*. Duque de Caxias, DIMEL.
- ISO, 1977, *ISO 2975-7 Measurement of water flow in closed conduits – tracer methods – part 7: transit time method using radioactive tracers*, ISO.
- ISO, 1978, *ISO 4053 Measurement of gas flow in conduits – tracer methods – part 4: transit time method using radioactive tracers*, ISO.
- ISO, 1994, *ISO 5724-2 Accuracy (trueness and precision) of measurement methods and results — Part 2: Basic method for the determination of repeatability and reproducibility of a standard measurement method*, ISO.
- ISO, 1997, *ISO 5479 Statistical interpretation of data — Tests for departure from the normal distribution.*, ISO.
- ITUFLUX, c1998. *Retificadores de Fluxo*, São Paulo, Ituflux. Disponível em: <https://www.ituflux.com.br/retificadores-fluxo>. Acesso em: 21 set. 2021.
- JACOBSON, H., 1952, “Preparation of Radioactive Bromine”. *United States Patent Office*. Patent nº 2, 605, 219.
- JCGM, 2008, *Avaliação de dados de medição – guia para a expressão de incerteza de medição*. Sèvres, JCGM.

JCGM, 2012. *International vocabulary of metrology – Basic and general concepts and associated terms (VIM)*. 3 ed. Sèvres, JCGM.

KASBAN, H., ZAHRAN, O., EL-SAMIE, F., 2010, “New Trends for On-Line Troubleshooting in Industrial Problems Using Radioisotopes”, *The Online Journal on Electronics and Electrical Engineering (OJEEE)*, v. 2, n. 3, pp 284-292.

KENNY, C. N., THWAITES, G. R., 1971, “Axial dispersion in a drag reducing fluid in turbulent flow”, *Chemical Engineering Science*, v. 26, pp. 503-508.

KNOLL, G. F., 1989. *Radiation Detection and Measurement*, 2 ed, John Wiley & Sons Ed.

LANE, D. A., PATEL, I. C., SIRS, J. A., 1975, “The Variation of indicator Dilution Curves with Velocity Profile”, *Physics im Medicine Biology*, v. 20, pp. 613-623.

LEE, J. C., 1960, “Tracer measurements on a large diameter pipe”, *Chemical Engineering Science*, v. 12, pp. 191-197.

LEVENSPIEL, O, 2000, *Engenharia das reações químicas*. 3 ed. São Paulo, Blucher.

LEVENSPIEL, O., 2011, *Tracer Technology - Modeling the Flow of Fluids*. New York: Springer.

MAFRA, O. Y., 1973. *Técnicas e Medidas nucleares*. São Paulo, Ed. Edgard Blücher.

MARSHALL, C., 2013, *Calibration of oil & gas flow meters*, Control Engineering Europe.

MARTIM, A. L. S. S., 2005, *Avaliação do desempenho de um medidor de vazão eletromagnético em situações práticas reais de instalação*, Dissertação de M.Sc., UNICAMP, Campinas, SP, Brasil.

MONTGOMERY, D. C., 2016, *Design and Analysis of Experiments*. New Jersey, John Wiley & Sons, Inc.

NMS, 2017, *Good Practice Guide – The calibration of flow meters*.

OLIVEIRA, C. C., GRANATO, D., CARUSO, M. S. F. et. al., 2013, *Manual para elaboração de cartas de controle para monitoramento de processos de medição quantitativos em laboratórios de ensai*. São Paulo, Instituto Adolfo Lutz.

PAN, J., 2006, “Evaluating the Gauge Repeatability and Reproducibility for Different Industries”. *Quality & Quantity*, v. 40, n. 4, pp. 499–518.

PARK, C. M., GOMEZPLATA, A., 1971, “Axial Dispersion in a Tubular Flow Vessel with Bends”, *Canadian Journal of Chemical Engineering*, v. 49.

PEGORARO, P. R., MARANGONI, M., GUT, J. A. W., 2012, "Residence Time Distribution Models Derived from Non-Ideal Laminar Velocity Profiles in Tubes", *Chemical Engineering Technology*, v. 35, n. 9, pp. 1593-1603.

PETROBRAS, 2011. *Informações Técnica: Lubrax Essencial SJ*. Disponível em: <http://www.comprascooperadas.com.br/arqsist/conteudo/3520121134214.pdf>. Acesso em: 15 dez. 2012.

RAMOS, V. S., 2006, *Uso das Técnicas de Radiotraçadores e de Contagem Total em Medidas de Vazão de Sistemas Abertos*. Dissertação de M. Sc., COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

RDS SMART WELDING, 2021. *Retificador de fluxo tipo 19 tubos*. Socoraba, RDS. Disponível em: <http://www.rds.ind.br/produtos/retificador-de-fluxo-tipo-19-tubos>. Acesso em: 21 set. 2021.

REYNOLDS, O., 1883, "An experimental investigation of the circumstances which determine whether the motion of water in parallel channels shall be direct or sinuous and the law of resistance in parallel channels", *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, v. 174, 935-982.

RIBEIRO, M. A., 2003, *Medição de Petróleo e Gás Natural*, 2 ed. Salvador: Tek.

RORABACHER, D. B., 1991, "Statistical treatment for rejection of deviant values: critical values of Dixon's 'Q' parameter and related subrange ratios at the 95% confidence level", *Anal. Chem.*, v. 63, n. 2, pp. 139-146.

ROSSI, D., GARGIULO, L., VALITOV, G. et al., 2017, "Experimental characterization of axial dispersion in coiled flow inverters", *Chemical Engineering Research and Design*, v. 120, pp. 159-170.

ROUSSEAU, R. W., GARDNER, R. P., FELDER, R. M., 1973, "Flow modeling and parameter estimation using radiotracers", *Chemical Engineering Education*, v. 7, pp. 132-135.

SANTOS, T. L. A., 2019, *Modelagem Linear e Não-Linear para o Tensor de Reynolds em Escoamentos Turbulentos em Dutos*. Dissertação de M. Sc., COPPE/UFRJ, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.

SERAJ, H. et al, 2010, "Review of Wet Gas Flow Measurement Using Venturi Tubes and Radio Active Materials". *International Journal on Smart Sensing and Intelligent Systems*, v. 3, n. 4, pp. 672-689.

SHAPIRO, S. S., WILK, M. B., 1965, "An Analysis of Variance Test for Normality (Complete Samples)", *Biometrika*, v. 52, n. 3 and 4, pp. 591.

SHAPIRO, S. S., FRANCIA, R. S., 1972, "An Approximate Analysis of Variance Test for Normality". *Journal of the American Statistical Association*, v. 67, n. 337, pp. 215-216.

- SHARMA, M., KUMAR, V., KUMAWAT, H. *et al.*, 2007. "Measurement of Neutron-Induced Activation Cross-Sections Using Spallation Source at JINR and Neutronic Validation of the Dubna Code". *Pramana Journal of Physics*, v. 68, n. 2, pp 307-313.
- SHEORAN, M., CHANDRA, A., BHUNIA, H. *et al.*, 2018, "Residence time distribution studies using radiotracers in chemical industry – A review". *Chemical Engineering Communications*, p. 739-758.
- SHOWALTER, W. E., GOLGISH, E., LUKASIEWICZ, R. J., 1988, "Oil Tracing Method." *United States Patent Office*. Patent No 4,755 ,469.
- SILVA FILHO, J. A. P. *et al.*, 2010, "Importância da Avaliação das Incertezas na Medição dos Volumes de Petróleo e Gás Natural", *Revista Produto & Produção*, ed. Metrologia, v. 11, n. 1, p. 99-112.
- SIRELKHATIMI, D. A. *et al*, 2008. "Radiotracer Study for Process Optimization in Petrochemical Industry" In: *1st African Conference on Radioisotope Applications for Troubleshooting & Optimizing Industrial Processes*, Accra, Ghana, pp. 16-17.
- SKJÆVELAND, S. M., KLEPPE, J., 1992, *Recent advances in improved oil recovery methods for North Sea Sandstone Reservoirs*, Stavanger, Norwegian Petroleum Directorate.
- SPITZER, D. W., 2010, "Accuracy vs Repeatability – What's the Difference, and Why It is Important", *Flow Control*, pp. 1-5.
- STEVEN, R., HARMAN, E., COUSINS, T., 2017, *Lies, Damned Lies, and the Statistics of Data Fitting*. NFOGM
- SVEIN, M. S., JON, K, 1992, *Recent Advances in Improved Oil Recovery Methods for North Sea Sandstone Reservoirs*. Spor Monograph, Norwegian Petroleum Directorate, Stavanger, Norway.
- TAKEUCHI, T., OHKUBO J., YONEZAWA, N. *et al.*, 2016, "Oil mist transport process in a long pipeline on turbulent flow transition region", *International Journal of Multiphase Flow*, v. 87, pp. 45-53.
- TAYLOR, G. I., 1922, "Diffusion by continuous movements", *Proceedings of the London Mathematical Society*, v. s2-20, n. 1, p. 196–212.
- TAYLOR, G. I., 1953, "Dispersion of soluble matter in solvent flowing slowly through a tube", *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, v. 219, n. 1137, p. 186-203.
- TSOLFANIDES, N., 1983. *Measurement and Detection of Radiation*. 2 ed, USA, McGraw-Hill Int. Edit.
- VETTERLING, W. T. *et al.*, 1992, *Numerical Recipes in Fortran – The Art of Scientific Computing*. 2 ed, USA, Cambridge University Press.

VICTOR, J. 2019. *Número de Reynolds: entenda tudo!* Guia de engenharia. Disponível em: <https://www.guiadaengenharia.com/numero-reynolds-entenda/>. Acesso em: 21 set. 2021.

WAHID, Z., LATIFF, A. I., AHMAD, K., 2017, “Application of one-way ANOVA in completely randomized experiments”, *IOP Conf. Series: Journal of Physics*, v. 949, n. 1, pp. 1-7.

ZVIRIN, Y., SHINNAR, R., 1976, “Interpretation of internal tracer experiments and local sojourn time distributions”, *International Journal of Multiphase Flow*, v. 2, n. 5-6, pp. 495-520.

# ANEXO A – Validation of transient time method to calibrate oil flow meters in closed conduits using $^{123}\text{I}$ as the radiotracer

NUKLEONIKA 2021;66(2):69–74  
doi: 10.2478/nuka-2021-0009

ORIGINAL PAPER



## Validation of transient time method to calibrate oil flow meters in closed conduits using $^{123}\text{I}$ as the radiotracer

Eduardo R. Gonçalves,  
Luís E. B. Brandão,  
Delson Braz

**Abstract.** To assure the credibility of commodity transfer operations in the oil and gas industry, calibrated flow meters are used to quantify the movement of fluids in the pipelines. The purpose of this paper is to validate the transient time method (TTM) to calibrate oil flow meters installed in restricted areas, using the  $^{123}\text{I}$ -labelled oil as a radiotracer. Traditionally, as proposed by the standard ISO 2975-7:1977 [1] for experiments in an aqueous medium, the TTM is employed by positioning two detectors at separate locations. However, in industrial plants, it is not always possible to install detectors at the distances recommended by the ISO 2975-7. The method proposed in this paper uses four scintillator detectors separated one from each other by 0.30 m and three injections containing 5.0 ml of  $^{123}\text{I}$ -labelled oil. The experiments were carried out in an oil flow rig with a turbulent flow profile. The results have reached an uncertainty which is lower than 1.0%.

**Keywords:** Calibration flow meters • Oil flow rates • Iodine-123 • Transient time method

### Introduction

The oil industry production chain is extensive and complex, and in most of the stages, the transportation of oil and oil products is carried out using pipelines. The royalties and taxes are calculated by measuring the oil volumes using certified flow meters, and these devices must be periodically calibrated. The result of these measurements must comply with the specific quality standards [2–4] and should be according to the guidelines specified by the official governance [5–7]. In Brazil, it is necessary to comply with regulations [8–10] that have been established by the National Petroleum Agency (ANP), which imposes uncertainty levels lower than 1.0% in the measurements.

For aqueous fluid flow in pipelines, the flow measurement is regulated by the ISO 2975-7:1977 [1] standard, which recommends the transient time method (TTM) [11–15] to calibrate the flow meters installed in pipelines, because this method is accurate and less invasive. The objective of this work was to validate the TTM to calibrate oil flow meters installed in closed conduits using  $^{123}\text{I}$ -labelled oil as the radiotracer. The TTM is designed to be applied in locations with restricted space, as in the off-shore oil platforms.

Traditionally, the use of radiotracers is based on three fundamental aspects [16]: simplicity, low

E. R. Gonçalves<sup>✉</sup>, D. Braz  
Nuclear Engineering Program  
Federal University of Rio de Janeiro (COPPE/UFRJ)  
2030 Horácio Macedo Ave.  
Building G, Room 206, University City  
Rio de Janeiro, RJ 21941-914, Brazil  
E-mail: eduardoprofisica@yahoo.com.br

L. E. B. Brandão  
Nuclear Engineering Institute  
National Nuclear Energy Commission  
P. O. Box 68550, Rio de Janeiro, RJ 21941-974, Brazil

Received: 20 March 2020

Accepted: 19 November 2020

0029-5922 © 2021 The Author(s). Published by the Institute of Nuclear Chemistry and Technology.  
This is an open access article under the CC BY-NC-ND 4.0 licence (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

cost, and accuracy [17], and according to Clayton [18], the right radiotracer should have the following characteristics:

- i. Solubility and hydrodynamic characteristics compatible with those of the primary fluid;
- ii. Short half-life coherent with time to be measured; and
- iii. Since the volume of radiotracer injected is small, the gamma energy must be high enough to be detected outside the duct.

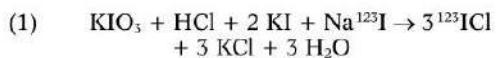
The experiments were carried out in an oil flow rig built with PVC ducts (3/4 in internal diameter). It consists of two sections: the first one contains the oil reservoir, the pumping system, a calibrated flow meter, the injection system, and the second part is the measure section used to install the detectors. It is 16.0 m long. The fluid used in the study was the Lubrax Essential 20W50 API SJ/SJ oil and an electronic system regulates and keeps the oil flow constant during the experiments.

#### Oil labelling with iodine-123

The labelling process begins with an aqueous solution of sodium iodide (2.0 ml, 74 MBq) labelled with  $^{123}\text{I}$  ( $E = 159$  keV and  $T_{1/2} = 13.2$  h). It uses iodine monochloride (ICl) as the radioiodine carrier [19, 20]. ICl is a polarized molecule which is used in electrophilic substitution reactions to attach the radioactive iodine to the double bonds present in the oil molecule. ICl is more effective in those substitution reactions than other iodine compounds because it is easily ionizable and highly reactive.

A sample (100.0  $\mu\text{L}$ ) of the initial  $\text{Na}^{123}\text{I}$  was collected (labelling stage LS-0) to monitor the labelling process. Its activity was measured and used as a reference value. In each labelling stage, samples were collected (100.0  $\mu\text{L}$ ), and the gamma activity was measured using a dosage calibrator.

The labelling process starts with the production of ICl with the reduction of potassium iodate ( $\text{KIO}_3$ ) in an acid medium. In a separation funnel, 5.0 ml of KI (0.1 N) was mixed with water (5.0 ml) and 10.0 ml of concentrated HCl acid (4 N). After this, the  $\text{Na}^{123}\text{I}$  radioactive solution (LS-0 labelling step) is added to the system, and  $\text{KIO}_3$  (0.1 N) is gradually added. In the concentrated HCl medium, the iodate is reduced to iodine monochloride, as in the equation:



The balance of the Eq. (1) is controlled using 1.0 ml of carbon tetrachloride ( $\text{CCl}_4$ ) as the colour indicator. There are two phases in the separation funnel: an aqueous phase, which is slightly yellow, and a purple  $\text{CCl}_4$  phase. This  $\text{CCl}_4$  colour indicates

that there is still iodine in the solution, and the stoichiometric balance was not achieved.

When the stoichiometric balance of the Eq. (1) is reached, the ICl is extracted from by adding 2.0 ml of ethyl ether and vigorously shaking the system for 5 min. After that, maintain the system in rest until the separation of the two phases occurs. This procedure is repeated twice (LS-1A and LS-1B labelling stage) to ensure that the radioiodine is extracted.

The organic phase is transferred to a new container with 5.0 ml of regular oil and shaken for 2 min. After that, the oil is heated at 40°C for 30 min to remove the ethyl ether (LS-2 labelling stage).

To ensure that radioactive iodine is bonded to the oil molecules and not free in the medium, the labelled oil is washed with water: 5.0 ml of labelled oil is introduced by slowly shaking in 50.0 ml of water for 5.0 min, and the two-phase mixture was separated by centrifugation. This operation was repeated twice, and the gamma activity was measured (LS-3A and LS-3B labelling step).

The gamma activity was measured using a dosage calibrator (Capintec CRC-15W), and the results for the different label steps are in Table 1. The aqueous samples are identified by W and the oil samples by O.

The residual activity at WLS-1B shows that 95.0% of the initial activity was transferred to the organic phase because, after two extraction steps, only 5.0% of radioiodine was measured in the aqueous phase. The activity measured at stages OLS-3A and OLS-3B reinforce the inference that the radioiodine was bonded to the oil molecule, because if there were any free radioiodine in the oil, it would be transferred to the aqueous phase.

The oil labelling process is better assessed by measuring the iodine number [21, 22] that determines the number of existing double bonds in the oil molecules. After the labelling process, the number of double bonds between carbon atoms in the oil molecules is reduced, and this value is certified by the change in the iodine number [18, 19].

Before the labelling process, the number of iodine measured was equal  $66.37 \pm 0.43$ ; after the labelling step 2, the number of iodine of OLS-2 was measured again, and the result was  $6.75 \pm 0.62$ . This reduction proves that the iodine is bonded to the oil.

Due to the high yield of the labelling, 85%, the method can be used not only in lab tests, but also in providing services in industrial plants. To apply it in experiments that require high activity, it is necessary only to vary the activity of the initial  $\text{Na}^{123}\text{I}$  sample without changing the concentrations of the reagents used in every labelling stage. Another favourable characteristic is that the radiotracer used is produced especially for medical purposes, and this condition allows many groups of radiotracers in countries that import this radiopharmaceutical to use this method to label oil products to use them for industrial applications.

**Table 1.** The yield of  $^{123}\text{I}$  oil labelling process

Sample	WLS-1A	WLS-1B	OLS-2	WLS-3A	WLS-3B	OLS-3A	OLS-3B
Yield (%)	7.81	5.12	88.74	0.44	0.38	85.46	84.92

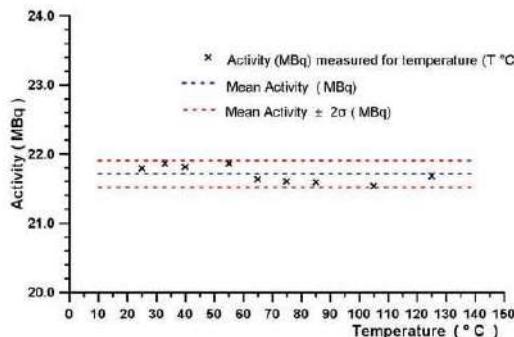


Fig. 1. Influence of temperature on the labelled oil stability.

One important aspect is the stability of the radiotracer in different conditions. An experiment was done to evaluate the temperature effect on the labelled oil: an Erlenmeyer with 50.0 ml of labelled oil was gradually heated, and dry air was pumped to remove any free volatilized iodine. During the test, the temperature varied from 20°C to 130°C, and for each temperature value, 100.0 µl of labelled oil was removed, and the activity was measured. Figure 1 shows the results, and it is clear that the labelled oil is not affected by the temperature increase since the activity remains stable.

Further, to accurately measure the flow rate, it is essential to prove that labelled oil reacts neither with the walls of the pipeline nor with the decants inside the pipeline. A device was built to confirm that the labelled oil maintains the same characteristic as regular oil. This device is a cylinder with 0.80 m of the same duct used in the pipeline, which is closed at the base and covered with a removable plug in the top used to fill the unit with oil. Figure 2 shows the device mounted with three collimated NaI scintillating detectors (1 inch × 1 inch) to register the radiotracer signals at the upper, middle, and base of the device.



Fig. 2. The apparatus used to study the radiotracer stability.

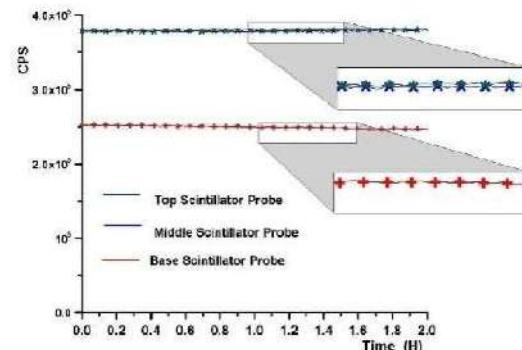


Fig. 3. Three scintillator probes registering the gamma count at the base, middle, and top sector of the test device with 74 MBq of labelled oil.

In a 500 ml glass Becker, 235.0 ml of regular oil and 5.0 ml of labelled oil were slowly shaken for 10 min to avoid air bubbles, and then transferred to the measuring device; thereafter, the cap is closed. The three detectors registered the number of gamma photons for 2 h. If any precipitation occurred, the base counts would increase, or if the labelled oil moved toward the surface, the top counts would increase. However, if the counts remain stable during the test, it is guaranteed that the labelled oil maintains the same properties as regular oil. Figure 3 shows the results measuring the gamma activity for 2 h.

In Fig. 3, the top signal is the same as the middle one, and the base signal is smaller than the others because the solid angle was different in that position. The result confirms that labelled oil presents the same characteristics as the fluid used in this flow measurement study.

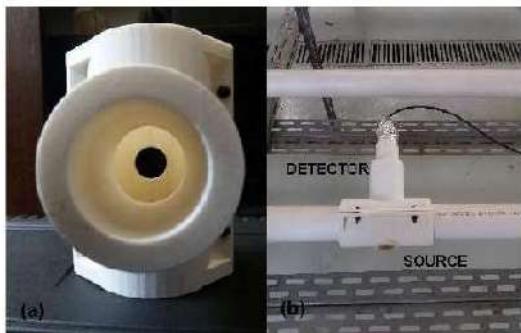
#### Flow meter calibration in oil tubes using the transient time method

According to ISO 2975-7:1977, the recommended condition to apply TTM to measure water flow in closed conduits is that the flow should be uniform and in a turbulent regime, with Reynolds number higher than 5000 [1], the radiotracer injected as a fast pulse, and the two detectors which are used separated by a considerable distance.

However, in space-restricted areas, the amount of space which is available to install detectors is limited. The developed method proposes to install four detectors in a straight portion of the pipeline; each one is separated from the other by 0.30 m, and three radiotracer injections are used for a single flow rate measurement (fast pulse). For each set of two scintillator detectors, the oil flow  $Q$  is calculated by:

$$(2) \quad Q = A \cdot \frac{L}{\tau_{AU}} = A \cdot v = \frac{\pi D^2}{4} \cdot v$$

where:  $A$  – area of pipeline cross section,  $L$  – the distance between two scintillator detectors,  $\tau_{AU}$  – transient time,  $v$  – mean flow velocity,  $D$  – internal diameter of the pipe.



**Fig. 4.** A top view of the scattering device in (a) and (b) is used to analyse the internal pipe wall.

TTM requires that the pipeline must be full. Thus, it can only be applied in a measure section where there are no dense material deposits or air bubbles inside.

A scattering device was built to scan the measure section. It is a scintillator detector, and an  $^{241}\text{Am}$  source is mounted each one in one side of the duct and used to measure the gamma transmitted radiation in two directions: vertically and horizontally, perpendicular to the flow direction. Figure 4a shows the device, and Fig. 4b shows the scattering device installed on the experimental oil flow rig.

Table 2 shows the counts for scanned measure positions, and the results have shown that there is no evidence of dense material or air bubbles. There is a 2.0% difference between the transmitted radiation registered in vertical and horizontal directions; this difference is due to the back-scattering contribution because, in this position, the pipeline was mounted near a solid metal structure.

Using TTM to measure a flow rate is relatively simple: it is done by installing the detectors, injecting an ideal radiotracer, and calculating the TAU between the two measuring points. The difficulty increases when it is necessary to measure the flow rate according to the official limits [1], especially in industrial plants, where restrictions to install the detectors exist.

Since the radiotracer movement inside the duct depends on the flow velocity profile, the correct positions to install the detectors give the best result.

**Table 2.** Pipeline scan in the measurement positions using a  $^{241}\text{Am}$  gamma source

	Total gamma-ray counts			
	Position D1	Position D2	Position D3	Position D4
Vertical	$8188 \pm 90$	$8194 \pm 90$	$8209 \pm 91$	$8175 \pm 90$
Horizontal	$8002 \pm 89$	$8000 \pm 89$	$8001 \pm 90$	$7990 \pm 89$

**Table 3.** Mean flow velocity (in cm/s) for injections T1, T2, and T3, and  $RV = 800 \text{ L/h}$  (Reynolds number = 8085)

Injection	D1D2	D1D3	D1D4	D2D3	D2D4	D3D4	$V_M$
T1	76.95	78.36	77.53	77.59	76.87	77.87	77.53
T2	76.89	77.99	78.09	77.87	78.22	77.96	77.84
T3	76.83	78.39	77.60	77.99	78.14	78.19	77.86
				Mean velocity	$77.74 \pm 0.27 \text{ cm/s}$		
				Oil flow rate	$797.72 \pm 6.57 \text{ L/h}$		

$V_M$  – mean value.

These positions are selected based on the injection point, the fluid velocity, tracer dispersion, and the pipeline layout.

The method uses four detectors and measures the TAU in each position. This configuration results in six independent values for the flow velocity. Thus, after repeating the procedure for the three injections, we will have eighteen values that must be combined using a proper statistical method to calculate the flow rate.

In all injections, the radiotracer solution (5.0 ml,  $1.5 \cdot 10^8 \text{ Bq}$ ) was injected as fast pulse using a bypass system at 5.0 m upstream of the measurement section to minimize any tail contribution.

In all measurements, a lead collimator with a rectangular slit (1.0 cm) was used to block the frontal face of each scintillator detector, and the lateral face was shielded using lead bricks (5.0 cm). The data acquisition system was programmed to register the radiotracer signal with a sample rate equal to 20 Hz.

## Results

For each injection, after calculating the six mean flow velocities, the Dixon test (95%) [23] was applied to verify if there is an outlier and to remove any significant different value from the data set. When the data set is homogeneous, the mean  $V_M$  and the associated uncertainty  $u(V_M)$  are calculated.

The same procedure is repeated for the other injections, and the F-test for multiple comparison procedures was applied to determine whether there exists a significant difference among the three injections. If there is no difference among the treatments, the flow rate  $Q$ , and the uncertainty  $u(Q)$  are calculated considering the three injections [24]. The results for the reference values,  $RV$ , equal to 800 LPH, 950 LPH, and 1000 LPH are shown, respectively, in Tables 3–5.

Table 6 shows for each reference value ( $RV$ ), the measured flow rate ( $Q$ ), the relative uncertainty ( $rv\%$ ), and the error calculated comparing the measured flow rate with the reference value measured using the calibrated flow meter installed in the oil flow rig.

**Table 4.** Mean flow velocity (in cm/s) for injections T1, T2, and T3, and  $\text{RV} = 950 \text{ L/h}$  (Reynolds number = 9600)

Injection	D1D2	D1D3	D1D4	D2D3	D2D4	D3D4	$V_M$
T1	93.16	90.07	92.24	91.85	93.87	91.12	92.04
T2	93.11	91.02	91.02	91.12	92.23	92.85	92.01
T3	93.07	90.47	91.92	93.09	93.89	90.86	92.50
				Mean velocity	$92.18 \pm 0.26 \text{ cm/s}$		
				Oil flow rate	$944.84 \pm 7.56 \text{ L/h}$		

 $V_M$  – mean value.**Table 5.** Mean flow velocity (in cm/s) for injections T1, T2, and T3, and  $\text{RV} = 1000 \text{ L/h}$  (Reynolds number = 10 107)

Injection	D1D2	D1D3	D1D4	D2D3	D2D4	D3D4	$V_M$
T1	97.26	96.95	98.89	97.14	97.78	97.08	97.52
T2	96.86	98.22	97.13	96.99	98.08	97.68	97.49
T3	98.46	97.21	98.09	97.39	97.01	97.95	97.69
				Mean velocity	$97.57 \pm 0.31 \text{ cm/s}$		
				Oil flow rate	$1001.14 \pm 8.16 \text{ L/h}$		

 $V_M$  – mean value.**Table 6.** Relationship between flow measurement data

$\text{RV} \pm 0.25\% \text{ (L/h)}$	$Q \text{ (L/h)}$	rv%	Percent error
800	$797.72 \pm 6.57$	0.824	0.28
950	$944.84 \pm 7.56$	0.800	0.54
1000	$1001.14 \pm 8.16$	0.815	0.11

## Conclusions

By using the iodine-labelling method, it was possible to produce the radiotracer labelled with  $^{125}\text{I}$  with high yield (85%) without changing the labelled oil characteristics. The tests show that the radiotracer produced remains stable for oil temperatures between 20°C and 120°C.

For the three experiments, the flow rate results correspond to a relative standard uncertainty which equals 0.8%. According to Metrological Technical Regulation INMETRO 64/2003 [10], the method corresponds to Class 1 and can be applied for calibrating the flow meters in purchase/sale transactions.

**Acknowledgments.** This work has the support of the International Atomic Energy Agency and was designed with data which were measured in the training course ARCAL TN-RLA1016-1807551 (Rio de Janeiro, Brazil, 20–31 May 2019).

## References

- International Organization for Standardization. (1977). Measurement of water flow in closed conduits – Tracer methods – Part 7: Transit time method using radioactive tracers. ISO 2975-7:1977.
- International Organization for Standardization. (2005). Measurement of fluid flow – Procedures for the evaluation of uncertainties. ISO 5168:2005.
- British Standard. (1980). Methods for measurement of fluid flow in closed conduits, using tracers. Measurement of water flow: Transit time method using radioactive tracers. BS 5857-1.5:1980.
- Alberta Energy Regulator. (2018). Measurement requirements for oil and gas operations. Directive 017.
- Genesis Oil & Gas Consultants Ltd. (2007). *Uncertainty assessment of quality measurements in relation to EU ETS requirements – guidance for offshore oil and gas production facilities – proposals for flow meter uncertainty values*. Aberdeen. (GENESIS JOB NUMBER: J-70695/A).
- International Organization for Standardization. (1995). Petroleum and liquid petroleum products – Calculation of oil quantities – Part 2: Dynamic measurement. ISO 4267-2:1995.
- UK Oil & Gas Authority. (2015). *Guidance notes for petroleum measurement*. Issue 9.2. London, UK.
- ANP/INMETRO. (2013). *Joint Resolution ANP/INMETRO No. 1. Technical regulation of oil and natural gas measurement*. Brasilia: DOU.
- Ministry of Industry, Trade, and Tourism. (1997). Regulation. INMETRO, 113/97.
- Ministry of Industry, Trade, and Tourism. (2003). Metrolological technical regulation. INMETRO, 64.
- International Atomic Energy Agency. (2004). *Radiotracer applications in industry – a guidebook*. Vienna: IAEA. (Technical Reports Series no. 423).
- International Atomic Energy Agency. (2008). *Radiotracer residence time distribution method for industrial and environmental applications*. Vienna: IAEA. (Training Course Series no. 31).
- Kuoppamäki, R. (2006). Flow measurement field calibrations by radioisotope tracers in the off-shore, oil and gas industry. In 24th International North Sea Flow Measurement Workshop, 2006. IndMeas Industrial Measurements.
- Yunos, M. A. S. M., Hussain, S. A., & Sipaun, S. M. (2019). Industrial radiotracer application in flow rate measurement and flowmeter calibration using  $^{99m}\text{Tc}$  and  $^{198}\text{Au}$  nanoparticles radioisotope. *Appl.*

- Radiat. Isot.*, 143, 24–28. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2018.10.008>
- 15. Kasban, H., Ali, E. H., & Arafa, H. (2017). Diagnosing plant pipeline system performance using radiotracer techniques. *Nucl. Eng. Technol.*, 49(1), 196–208. <https://doi.org/10.1016/j.net.2016.08.011>.
  - 16. Barbour, E. (1969). *Potential economic benefits from the use of radioisotopes in flow measurements through high-head turbines and pumps*. Washington: US Government Printing Office.
  - 17. International Organization for Standardization. (1994). Accuracy (trueness and precision) of measurement methods and results – Part 1: General principles and definitions. ISO 5725-1:1994(E).
  - 18. Clayton, C. G. (1965). The measurement of flow of liquids and gases using radioactive isotopes. In Meeting at the Institution of Civil Engineers, London: SW1.
  - 19. Argentini, M. (1982). *Labelling with iodine – A review of the literature*. Switzerland: Federal Institute for Reactor Research.
  - 20. Anghileri, L. J. (1965). A new method for the preparation of labeled I131 oleic acid and triolein. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 16, 53. DOI:10.1016/0020-708x(65)90168-7.
  - 21. Norma Brasileira. (1945). Determinação do índice de iodo em óleos e gorduras vegetais. ABNT MB 77. Associação Brasileira de Normas Técnicas.
  - 22. ASTM International. (2015). Standard test method for determination of iodine value of fat and oils. ASTM D 5554-15. West Conshohocken, PA.
  - 23. ASTM International. (2016). Standard practice for dealing with outlying observations. ASTM E178. West Conshohocken, PA.
  - 24. Montgomery, D. C., & Runge, G. C. (2002). *Applied statistics and probability for engineer* (3rd ed.). Arizona, US: John Wiley & Sons, Inc.