

GERMAN GONZALEZ SILVA

# METODOLOGIA PARA APLICAR LES AO CRAQUEAMENTO CATALÍTICO FLUIDO EM UM REATOR *Riser* industrial

CAMPINAS, 2012



# UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS FACULDADE DE ENGENHARIA QUÍMICA

GERMAN GONZALEZ SILVA

## METODOLOGIA PARA APLICAR LES AO CRAQUEAMENTO CATALÍTICO FLUIDO EM UM REATOR *Riser* industrial

Tese de Doutorado apresentada à Faculdade de Engenharia Química da Universidade Estadual de Campinas para obtenção de título de Doutor em Engenharia Química.

## **Orientador: Prof. Dr. Milton Mori**

ESTE EXEMPLAR CORRESPONDE À VERSÃO FINAL DA TESE DEFENDIDA PELO MESTRE GERMAN GONZALEZ SILVA E ORIENTADA PELO PROF. DR. MILTON MORI

Prof. Dr. Milton Mori

## CAMPINAS, 2012

#### FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA BIBLIOTECA DA ÁREA DE ENGENHARIA E ARQUITETURA - BAE - UNICAMP

G589m	Gonzalez Silva, German Metodologia para aplicar LES ao craqueamento catalítico fluido em um reator riser industrial / Germán González Silva. Campinas, SP: [s.n.], 2012.
	Orientador: Milton Mori. Tese de Doutorado - Universidade Estadual de Campinas, Faculdade de Engenharia Química.
	1. Escoamento multifásico. 2. Fluidodinâmica computacional (CFD). 3. Craqueamento catalítico. 4. ANSYS (Software). 5. Leito fluidizado. I. Mori, Milton, 1947 II. Universidade Estadual de Campinas. Faculdade de Engenharia Química. III. Título.

Título em Inglês: Large eddy simulation application methodology to a fluid catalytic cracking industry reactor Palavras-chave em Inglês: Multiphase flow, Computational fluid dynamics (CFD), Catalytic cracking, ANSYS (Software), Fluidized bed Área de concentração: Desenvolvimento de Processos Químicos Titulação: Doutor em Engenharia Química Banca examinadora: Waldir Pedro Martignoni, Carlos Alberto Ubirajara Gontarski, Sávio Souza Venâncio Vianna, Marcos Akira d'Ávila Data da defesa: 14-09-2012 Programa de Pós Graduação: Engenharia Química Tese de Doutorado defendida pelo Mestre German Gonzalez Silva e aprovada em 14 de setembro de 2012 pela banca examinadora constituída pelos Doutores:

lee era Prof. Dr. Milton Mori (Orientador) Dr. Waldir Pedro Martignoni Prof. Dr. Carlos Alberto Ubirajara Gontarski e Prof. Dr. Marcos Akira d'Ávila Ole Prof. Dr. Sávio Souza Venâncio Vianna

Dedico este trabalho a meus pais, María Elena Silva de González e José Jesús González O.

### AGRADECIMENTOS

"Aqueles que passam por nós, não vão sós, não nos deixam sós. Deixam um pouco de si, levam um pouco de nós." Antoine de Saint-Exupéry

Meu maior agradecimento é dirigido a Deus e meus pais, por terem sido o contínuo apoio em todos estos anos, ensinando-me, principalmente, a importância da construção e coerência de meus próprios valores. Agradeço em especial a minha mãe, María Elena Silva de González, por ter me ensinado a arte da lealdade, honestidade, caridade e sobre tudo a disciplina, propiciandome a fundamentação básica, sem a qual este trabalho não teria sido escrito. Aos meus irmãos Ana Milena Oscar Uriel e José Javier; e as minhas lindas sobrinhas a Sophia e a Mariana.

Agradeço, de forma muito Especial ao Prof. Milton Mori que depositou em mim toda a sua confiança, e me apoio nos momentos difíceis, indubitavelmente, os elementos propulsores desta Tese.

Agradeço ao Dr. Ivan Georg e a MSc Ricardo Rezende, que com suas constantes e incisivas sugestões e críticas deram no começo deste trabalho um horizonte.

A MSc. Natalia Prieto J., minha companheira nesta trajetória, soube compreender, como ninguém, a fase pela qual eu estava passando. Durante a realização deste trabalho, sempre tentou entender minhas dificuldades e minhas ausências, procurando se aproximar de mim através da própria Tese, sempre com uma boa sugestão. Agradeço-lhe, carinhosamente, por tudo isto.

Ao Prof. Dr. Antonio Carlos Luz Lisbôa sempre me escutando, entendendo e ajudando e em fim a todos os meus amigos em especial a Oscar Fabio Salazar, João Lameu e a todos os colegas do laboratório PQGe que, de uma forma ou de outra, contribuíram com sua amizade e com sugestões efetivas para a realização deste trabalho, gostaria de expressar minha profunda gratidão.

Agradeço ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico, CNPq, pela bolsa concedida durante os anos do Doutorado.

"A excelência afasta os medíocres, assim como a mediocridade afasta os competentes".

James C. Hunter

Vamos acumulando títulos e bens com o tempo, mas também, vamos esquecendo-nos do maior exemplo de Jesus Cristo, a compaixão pelo próximo e acreditamos ser melhores que os outros; sabendo que aos olhos de Deus, todos nós somos completamente iguais... Vamos construindo um coração de pedra... Que errado estamos! German Gonzalez Silva

#### RESUMO

O objetivo principal desta tese é propor uma metodologia para aplicar simulação de grandes escalas (LES) em uma unidade de craqueamento catalítico industrial. Para atingir este objetivo, iniciou-se propondo uma metodologia para a construção da malha, sendo uma malha quase-uniforme. As malhas propostas foram implementadas para minimizar o esforço computacional e procedimento para a refinação uniforme no domínio do sistema. Inicialmente, foi estudada a fluidodinâmica de um leito fluidizado gás-sólido na escala de laboratório sem reação química, utilizando Simulação de Grandes Escalas. Com base nos resultados numéricos obtidos a partir de resultados da escala de laboratório foi aplicado o modelo cinético de 4 lump em uma simulação CFD tridimensional para um reator industrial FCC, utilizando LES para a fase gasosa, e considerando o catalisador como uma fase contínua (Euleriana). Os pacotes de simulação utilizados foram Ansys ICEM versão 13 para a construção da malha e Ansys CFX versão 13 para o pós-processamento dos resultados. No pósprocessamento dos resultados foi proposta uma metodologia para determinar as médias azimutais das variáveis em planos perpendiculares ao escoamento e finalmente foram validadas as simulações com dados reportados na literatura. As principais conclusões do trabalho foram que foi possível diminuir o tamanho da malha e o tempo de processamento. Notou-se também que, ao usar malhas com discretização quase-uniforme não foi necessário fazer um refinamento de malha elevado, nem refinar perto da parede para o sistema gás-sólido.

Palavras-Chave: LES, Escoamento multifásico, Fluidodinâmica computacional (CFD), Craqueamento catalítico, ANSYS.

#### ABSTRACT

The main objective of this thesis is to propose a methodology in how to apply Large Eddy Simulation (LES) on a unit of catalytic cracking. In order to achieve this, it was proposed an alternative way of constructing the computational mesh, by using quasi-uniform meshes. The proposed meshes were implemented to minimize the computational effort and procedure for refining them in the entire domain of the system. Initially it was studied the fluid dynamics of a lab scale gas-solid system without chemical reaction, using Large Eddy Simulation. Based on the numerical results obtained from lab scale results it was implemented the 4 lump kinetic model in a three dimensional CFD simulation of an FCC industrial reactor, using LES for the gas phase and considering the catalyst as a continuous phase (Eulerian). The simulation packages used were Ansys ICEM, version 13 for mesh construction and Ansys CFX 13 for computation and postprocessing of the results. In the data post-processing it was proposed a methodology for calculating average values of fluctuating variables between two circular sections in the azimuthal direction. The results were compared with data reported in literature. The main conclusions of the results showed that it was possible to decrease the mesh size and the computational time. It was also noticed that by using quasi-uniform discretization it was not necessary to make a high mesh refinement near the wall for a gas-solid system.

Keywords: LES, Multiphase flow, Computational fluid dynamics (CFD), Catalytic cracking, ANSYS.

# 1 ADAPTAÇÃO E APROXIMAÇÃO

Em virtude do valor agregado da gasolina é imperativo estudar o comportamento fluidodinâmico e químico do craqueamento catalítico do petróleo, com fins de projeto ou optimização do processo ou equipamentos. O uso da fluidodinâmica computacional (CFD) tem sido ferramenta útil. Desta forma, é importante escolher adequadamente a abordagem e metodologias a ser utilizadas; junto com os modelos matemáticos e fisicos. Neste sentido, a Simulação de Grandes Escalas (LES) se mostra como uma promissora metodologia numérica para a boa captura de fenômenos físicos que estão presentes no escoamento multifásico em um reator do tipo Riser voltado a refino de petróleo. O LES teve as suas origens em estudos atmosféricos, caracterizados por escoamentos gasosos sobre uma superfície sólida. Esse tipo de escoamento apresenta pequenos vórtices próximos à superfície, é por esta razão que é recomendado discretizar a malha computacional finamente na região próxima da parede. No entanto, para um escoamento gás-sólido em leito fluidizado, estes pequenos vórtices estão presentes em todo o domínio de controle. A abordagem LES para escoamentos gasosos deve se adequar, para ser aplicada satisfatoriamente em escoamentos multifásicos e ainda mais para reatores de craqueamento catalítico fluido em Riser a nível industrial.

# **SUMÁRIO**

1	ADAPTAÇÃO E APROXIMAÇÃO	XIII
2	INTRODUÇÃO - EVOLUÇÃO HISTÓRICA DOS REATORES	GÁS-SÓLIDO1
3	MODELAGEM MATEMÁTICA PARA A SIMULAÇÃO DE GR	ANDES ESCALAS (LES)7
3.1	Filtragem	
3.2	Modelos de sub-malha	
3	3.2.1 Modelo de Smagorinsky	
3	3.2.2 Modelo WALE	
3	3.2.3 Modelo Dinâmico Smagorinsky – Lilly	
3	3.2.4 Simulação De Escala Adaptativa-SAS	
3	3.2.5 DES (Detached-Eddy Simulation)	
4	MÉTODOS NUMÉRICOS	25
4.1	Método de Volumes Finitos (MVF)	
4.2	Linearização do Termo Fonte	
4.3	Discretização Temporal (Termo Transiente)	
5	CRAQUEAMENTO CATALÍTICO	
5	5.1.1 Modelo Cinético	
5	5.1.2 Modelo de desativação do catalisador	
6	METODOLOGIA APLICADA	
6.1	Geometria para Estudo da fluidodinâmica tridimensional	
6.2	Estruturas a serem estudadas - Meso-escalas – na Fluidodinâmica	41

7	RES	SULTADOS
7.1	R	Resultados da Fluidodinâmica (Samuelsberg et. al. 1996)51
,	7.1.1	Algoritmo da média azimutal
,	7.1.2	Topologia- Identificação de Vórtices
7.2	E	Estudo computacional dinâmica do Craqueamento Catalítico em reatores riser de fcc
,	7.2.1	Geometria para estudo do Craqueamento Catalítico
,	7.2.2	Independência Linear das Reações Químicas (REKLAITIS, 1983)
,	7.2.3	Modelo Unidimensional Para testar o modelo cinético
	7.2.4	Resultados da modelagem tridimensional do craqueamento catalítico fluido em reatores industriais
		riser 102
8	CO	NCLUSÕES123
9	TRA	ABALHOS FUTUROS127
10	TRA	ABALHOS PUBLICADOS
11	REI	FERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS131

# LISTA DE FIGURAS

Figura 1 Diagrama esquemático do processo FCC (Fluid Catalytic Cracking). Fonte adaptada:
OSHA (1992)5
Figura 2 Configuração de estruturas turbulentas para um avião. (esquerda) - SST-URANS,
(direita) SST-SAS. Adotado de (EGOROV et al. 2010b)20
Figura 3 Configuração de estruturas turbulentas na câmara de combustão ITS (esquerda) sem
reação, (direita) Reação de combustão. Adotado de (EGOROV et al. 2010)21
Figura 4. Representação de um volume finito bidimensional27
Figura 5. Diferentes mecanismos de reação para o modelo 4-lump: A) Yen et. al., (1988); B) Lee
at al., (1989); C) Oliveira e Biscaia (1989)
Figura 6. Modelo 4- <i>lump</i>
Figura 7 Procedimento geral para resolver um problema de CFD. Adaptada de RANADE (2002).
Figura 8. Geometria do leito fluidizado de Samuelsberg et. al. (1996)41
Figura 9 Perfil de velocidade de sólidos de partículas de FCC com diâmetro de 75µm. Adotado
de (Miller e Gidaspow, 1992)42
de (Miller e Gidaspow, 1992)42 Figura 10. Diagrama esquemático do reator FCC (esquerda para a direita): equipamento
<ul> <li>de (Miller e Gidaspow, 1992)</li></ul>
de (Miller e Gidaspow, 1992)
<ul> <li>de (Miller e Gidaspow, 1992)</li></ul>
de (Miller e Gidaspow, 1992)
de (Miller e Gidaspow, 1992)

Figura 13. Distribuição de blocos e localização do O-grid (Aproximação para uma distribuição de
cubos)53
Figura 14 Vista lateral da estrutura das malhas descritas na Tabela 755
Figura 15. Planos XY e linhas traçadas a 0,16 m, 0,32 m e 0,48 m no <i>riser</i> , para o cálculo das
médias56
Figura 16. Desenho das coordenadas do plano XZ
Figura 17. Traço de circunferências concêntricas no plano XZ analisado
Figura 18. Perfis da velocidade de partícula simulada como função do raio adimensional para
uma velocidade de 1,42 m s <sup>-1</sup> , no plano XY a uma altura do <i>riser</i> de 0.48 m58
Figura 19. Perfis da velocidade média de partícula simulada como função do raio adimensional
para uma velocidade de 1,42 m s <sup>-1</sup> , no plano XY a uma altura do <i>riser</i> de 0.48 m59
Figura 20. Algoritmo para determinar as coordenadas dos perfis de velocidade61
Figura 21. Comparação da média temporal azimutal () e valor temporal em uma linha (-x-)
traçada no plano (XZ) a diferentes alturas do <i>riser</i> , para uma velocidade do gás de 1,42 m s <sup>-1.</sup>
• Experimental62
Figura 22. Comparação da média temporal (-×-) e valor instantâneo (-▲-) determinadas em uma
linha traçada no plano (XZ) a diferentes alturas do riser, para uma velocidade do gás de 1,42
m s <sup>-1</sup> 63
Figura 23. Perfis de velocidade da fase particulada para velocidade superficial de 1,42 m s <sup>-1</sup> , para
as alturas de 0,48 m; 0,32 m e 0,16 m. Caracteres • Experimental; RANS-Hodapp
(2009); - ▲ - No Slip; -Δ- Free slip
Figura 24 Comparação dos perfis obtidos na (Esquerda) simulação Ug = 1,42 ms <sup>-1</sup> (- $\blacktriangle$ -), dados
experimentais (•) com (Direita) perfil esquemático apresentado por Miller e Gidaspow
(1992)

Figura 25. Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no
Centro do riser, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m;
0,16 m (Direita, acima/abaixo). Condição No Slip e velocidade superficial de 1,42 m s-167
Figura 26 Campo da média temporal da velocidade da fase sólida normal ao plano ZX nas alturas
de 0,16; 0,32 e 0,48 m do Riser. ). Condição No Slip e velocidade superficial de 1,42 m s-1
Figura 27 Perfis de velocidade da fase particulada para velocidade superficial de 0,71 m s- <sup>1</sup> , para
as alturas de 0,48 m; 0,32 m e 0,16 m. Caracteres • Experimental; RANS-Hodapp (2009);
-▲- No Slip; -Δ- Free slip69
Figura 28 Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no
Centro do riser, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m;
0,16 m (Centro, acima/abaixo). Vetores de velocidade da fase sólida (Direita). Condição No
<i>Slip</i> e velocidade superficial do gasv de 0.71 m s <sup>-1</sup> 70
Figura 29 Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no
Centro do riser, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m;
0,16 m (Centro, acima/abaixo). Vetores de velocidade da fase sólida (Direita). Condição
<i>Free slip</i> e velocidade superficial de 0,71 m s <sup>-1</sup> 71
Figura 30 Perfis de velocidade da fase particulada para velocidade superficial de 0,36 m s- <sup>1</sup> , para
as alturas de 0,48 m; 0,32 m e 0,16 m. Caracteres • Experimental; RANS-Hodapp
(2009); - <b>▲</b> - <i>No Slip</i> ; -Δ- <i>Free slip</i>
Figura 31 Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no
Centro do riser, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m;
0,16 m (Centro, acima/abaixo). Vetores de velocidade da fase sólida (Direita). Condição No
Slip e velocidade superficial de 0,36 m s $^{-1}$ 73

Figura 32 Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no
Centro do riser, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m;
0,16 m (Centro, acima/abaixo). Vetores de velocidade da fase sólida (Direita). Condição
<i>Free slip</i> e velocidade superficial de 0,36 m s <sup>-1</sup> 74
Figura 33 Perfis do Número de Courant médio no leito, para as velocidades superficiais de gás
1,42 m s <sup>-1</sup> ; 0,71 m s <sup>-1</sup> ; 0,36 m s <sup>-1</sup> . Condição <i>No Slip</i>
Figura 34 . Perfis do RMS da velocidade: Caso velocidade superficial do gás de 1,42 m s <sup>-1</sup> .
Condição <i>No Slip</i> 77
Figura 35 Comparativo das Isosuperfícies para diferentes valores de $Q=S^2-\Omega^2$ para a fase gasosa.
Velocidade do gás de 1,42 m s-1. (Superior) Simulações com LES, (inferior) simulações com
<i>k-ɛ</i> . Mapa de <i>core</i> s corresponde a vorticidade do gas. Condição <i>No Slip</i> 85
Figura 36 Comparativo das Isosuperfícies para diferentes valores de $Q=S^2-\Omega^2$ para o catalisador
Velocidade da fase gasosa de 1,42 m s- <sup>1</sup> . (Superior) Simulações com LES, (inferior)
simulações com <i>k-ɛ</i> . Mapa de <i>core</i> s corresponde a vorticidade do catalisador. Condição <i>No</i>
<i>Slip</i> 86
Figura 37 Comparativo das Isosuperfícies para diferentes valores de $Q=S^2-\Omega^2$ para a fase gasosa
(acima) e para catalisador (inferior). Mapa de cores corresponde a vorticidade. Condição No
<i>Slip</i>
Figura 38. Detalhes das malha. (acima) Malha de 250 mil volumes; (abaixo) Malha de 750 mil
volumes
Figura 39. Geometria do Reator desenhada90
Figura 40. Geometria do Reator construída por Lopes <i>et. al.</i> (2011)

Figura 41. Detalhes das malha. (acima) Malha de 750 mil volumes neste trabalho; (abaixo) Malha
de 750 mil volumes construída por Lopes <i>et. al.</i> (2011)
Figura 42 Perfil de fração mássica do craqueamento catalítico no reator riser para o primeiro
caso
Figura 43 Perfil de fração mássica do craqueamento catalítico no reator riser para o segundo caso
Figura 44 Resultados da simulação do reator industrial ao longo da altura, no centro do reator
com LES Smagorinsky. (abaixo). Perfis no tempo do rendimento da gasolina; (centro)
Comparativo entre as duas malhas estudadas para o rendimento da gasolina, (acima)
Contraste das simulações de conversão da gasolina para ambas as malhas e a simulação de
Lopes et. al. (2011)
Figura 45 Resultados da simulação do reator industrial ao longo da altura, no centro do reator e
comparativo com a simulação LES com malha de 250 mil elementos (esquerda para direita)
Perfis no tempo conversão da gasolina e rendimento da gasolina para ambas as malhas.
(acima para abaixo).LES Dinâmico e LES WALE respectivamente106
Figura 46 Perfis do rendimento da gasolina. Simulação do reator industrial ao longo da altura, no
centro do reator. Comparativo entre as metodologias LES Smagorinsky, SST-SAS e DES
para a malha de 250 mil volumes107
Figura 47 Perfis da conversão da gasolina. Simulação do reator industrial ao longo da altura, no
centro do reator. Comparativo entre as metodologias LES Smagorinsky, SST-SAS e DES
para a malha de 250 mil volumes107
Figura 48 Campos da fração mássica da gasolina instantâneos, no reator industrial, plano ZX no
centro do reator. Comparativo entre: (esquerda para direita ) SST-RANS, LES Smagorinsky,
LES Dinâmico, LES WALE, SST-SAS e DES para a malha de 250 mil volumes109

Figura 49 Campos da fração volumétrica de Catalisador no reator industrial no plano ZX no
centro do reator. Comparativo entre: (esquerda para direita ) SST-RANS, LES Smagorinsky,
LES Dinâmico, LES WALE, SST-SAS e DES para a malha de 250 mil volumes110
Figura 50 Comparativo das Isosuperfícies para diferentes valores de $Q=S^2-\Omega^2$ . (Acima) Modelo
RANS e Simulações com LES, (abaixo) simulações DES e SAS. Mapa de cores corresponde
a taxa de deformação da fase gasosa reativa devida ao cisalhamento. Condição No Slip111
Figura 51 Diagrama de linhas de corrente para o escoamento do catalisador ao longo do reator
(acima) e na entrada na interseção entre as duas entradas do reator (abaixo). Mapa de cores
corresponde a velocidade do catalisador em m s <sup>-1</sup> (Esquerda para direita) SST-RANS, LES
Smagorinsky e DES
Figura 52b. Perfis do RMS da velocidade: para as simulações LES Smagorinsky e DES114
Figura 53Contraste dos perfis de fração volumétrica de catalisador: (A) Lopes et. al. 2011; (B)
LES-Smagorinsky; (C) LES Dinâmico; (D) LES WALE117
Figura 54 Perfis Comparativos da Massa específica: (Superior) LES-Smagorinsky; (Centro) LES
Dinâmico; (Inferior) LES WALE. Caracteres discretos Lopes et. al. 2011; Caracteres
contínuos correspondem aos resultados obtidos118
Figura 55 Perfis Comparativo da velocidade do gas: (Superior) LES-Smagorinsky; (Centro) LES
Dinâmico; (Inferior) LES WALE. Caracteres discretos Lopes et. al. 2011; Caracteres
contínuos correspondem aos resultados obtidos119
Figura 56 Perfis Comparativo da fração volumétrica do catalisador: (Superior) LES-
Smagorinsky; (Centro) LES Dinâmico; (Inferior) LES WALE. Caracteres contínuos
correspondem aos resultados obtidos120
Figura 57 Contraste dos perfis de fração volumétrica temporal de catalisador: (A) Lopes et. al.
2011; (B) Detached Eddy Simulation

Figura 58 Perfis Comparativo da Simulação de Lopes et. al. 2011 (caracteres discretos) com	OS
resultados obtidos utilizando Detached Eddy Simulation: Massa específica (-▲-);	
Velocidade do gás(-∎-); Fração volumétrica de Catalisador (-●-)	122

xxiv

# LISTA DE TABELAS

Tabela 1. Coeficientes de Arrhenius para FCC (GIANETTO, 1994, LIU et. al., 2006)
Tabela 2. Constantes cinéticas e energias de ativação apresentadas na literatura (ABUL-
HAMAYEL et. al. 2002; ABUL-HAMAYEL, 2003; ANCHEYTA-JUAREZ et. al., 1997 <sup>a</sup> )
Tabela 3. Constantes cinéticas e energias de ativação Farag et al. (1994) para um reator de 33 m
de altura
Tabela 4 Massas moleculares (kg/kgmol) e temperaturas de ebulição (°C), para os <i>lump</i> ,
apresentadas por diferentes autores
Tabela 5 Condições de contorno do CASO 1    54
Tabela 6 Condições de contorno do CASO 2    54
Tabela 7 Descrição da distribuição de volumes nas malhas    54
Tabela 8. Cálculo do arredondamento do raio para o cálculo da média azimutal60
Tabela 9 Resumo das simulações realizadas com RANS e LES
Tabela 10 Dimensões do reator Riser    89
Tabela 11 Balanço de massa para as reações de 4 lump    95
Tabela 12 Condições de operação industrial do reator riser, utilizadas para o modelo 1D (Ali e
Rohani, 1997)99
Tabela 13 Condições iniciais calculadas para o estudo100
Tabela 14 Comparação dos dados do processo FCC reportados por Ali e Rohani, (1997) com os
dados das simulações 1D do reator riser101
Tabela 15 Condições de operação    103
Tabela 16 Resumo das simulações realizadas com RANS e LES

 5

# NOMENCLATURA

Símbolo	Nome	Unidades
Α	Área da seção transversal do reator	m <sup>2</sup>
CFL	Número de Courant-Friedrich-Levy	
$C_S$	Constante do espectro de energia turbulenta	
$C_d$	Coeficiente do modelo dinâmico Smagorinsky – Lilly	
$C_D$	Coeficiente de arraste gás -sólido	-
$C_W$	Coeficiente do modelo WALE	
<u>D</u>	Gradiente do tensor de velocidades	
dx	Tamanho da malha.	m
Ε	Energia de ativação	J/ gmol
E(k)	Espectro de energia em função do número de onda	J
d	Diâmetro de partícula	m
F	Força volumétrica	$N / m^3 (Pa / m)$
F	Vazão molar	mol / s
Fr	Número de Froude	-
f	Fator de atrito	-
G	Densidade de vazão mássica	kg / $m^2$ s
g	Aceleração da gravidade	$m / s^2$
Η	Entalpia específica	J/kg
k	Coeficiente cinético	
k	Energia cinética turbulenta	$m^2 s^{-2}$
k	Número de onda	
$K_c$	Constante de desativação estimada por Farag et. al.(1994)	kg <sub>cat</sub> kgmol <sup>-1</sup>
L	Comprimento característico hidrodinâmico da geometria	m

#### xxviii

L <sub>vK</sub> ,	Escala de comprimento de von Karman	m	
М	Vazão mássica	kg / s	
Ν	Numero total de dados experimentais	-	
n	Constante empírica a otimizar	-	
Р	Pressão	Pa	
Р	Primeiro invariante do tensor velocidade		
q	Concentração de coque Farag et. al.(1994)		
Q	Segundo invariante do tensor velocidade	s <sup>-2</sup>	
Q <sub>SAS</sub>	Termo adicional	$m^3 / s$	
r	Velocidade de reação	mol / kg <sub>cat</sub> s	
R	Constante universal dos gases	Pa m <sup>3</sup> / mol K	
Re	Número de Reynolds		
$\mathbf{R}_{i}$	Razão líquida de produção da espécie i pela reação		
$R_{s}$	Sistema de reações		
$S_i$	Razão de produção devida à adição da fase dispersa	N m <sup>2</sup>	
t	Tempo	S	
Т	Temperatura	K	
U	Velocidade	m / s	
V	Volume	m <sup>3</sup>	
V	Velocidade lineal	m / s	
W	Fração mássica	-	
Y	Fração molar	-	
Ζ	Coordenada axial	m	
LETRAS GREGAS			
α	Coeficiente de desativação	1/ s	

β	Interação sólido-fluido	
$\delta_{_{ij}}$	Delta de Kronecker	$m^2s^{-3}$
ρ	Densidade ou massa específica	kg / $m^3$
ε	Taxa de dissipação da energia cinética turbulenta	$m^2s^{-2}$
$\lambda_r$	Autovalor real	
μ	Viscosidade	kg / m s
γ	Coeficiente de atividade do catalisador	
γ	Coeficiente de troca térmica entre as fases	$W/(m^2K)$
γ	Gravidade específica	
$\Gamma_{\phi}$	Coeficiente de difusão para $\phi$	m²/s
η	Escala de Comprimento de Kolmogorov	m
М	Massa molecular	kg/kgmol
Δ	Filtro característico o tamanho característico da malha	m
9	Escala de velocidade de Kolmogorov,	
$V_{sm}$ .	Viscosidade de sub-malha	m²/s
V	Viscosidade cinemática turbulenta	m²/s
φ	Fração Volumetrica	$m^3_{gas}/m^3_{tubo}$
Φ	Variável	
$\overline{\Phi}$	Variável filtrada	
Ω	Vorticidade	$s^{-1}$
ω	Taxa de dissipação turbulenta especifica	
$\overline{\omega}$	Vetor vorticidade	
τ	Tensor tensão	N m <sup>2</sup>
τ.	Escala de tempo de Kolmogorov	S

#### **SUBSCRITOS**

cal	Calculado
b	Ponto de ebulição
D	Arraste gás-partícula
exp	Experimental
fg	Atrito gás-parede
fp	Atrito partícula-parede
g	Gás
i	Componente
j	Medição experimental
0	Valor de entrada ou inicial
р	Partícula
r	Reação
S	Sólido
t	Terminal

#### SOBRESCRITOS

- Denota flutuações no escoamento turbulento
- Denota segunda derivada
- \_\_\_ Denota média
- MAX Valor máximo da variável
- MIN Valor mínimo da variável
- ~ Denota variável filtrada

# 2 INTRODUÇÃO - EVOLUÇÃO HISTÓRICA DOS REATORES GÁS-SÓLIDO

Dados históricos informam que, desde 1926, processos em leito fluidizado já eram utilizados para a gaseificação do carvão. As primeiras unidades se localizavam na Alemanha e Japão (Geldart, 1986; Kunii e Levenspiel, 1991). Em 1936, a primeira unidade industrial de craqueamento catalítico em leito fixo entrou em operação, conhecida como processo Houdry. O processo era composto por três ou quatro reatores contendo argila tratada (SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). A carga injetada inicialmente em um primeiro reator, à medida que as reações aconteciam, a superfície do catalisador ficava impregnada de coque, causando a desativação catalítica. Neste momento, a carga era transferida para o próximo reator, o catalisador gasto era retificado por meio de injeção de vapor de água e regenerado pela queima do coque. O processo era caracterizado como semi-contínuo; a carga precisava ser dirigida de um reator para o próximo a cada dez minutos (Gentilin, 2004).

Devido à grande necessidade de gasolina para a aviação durante a Segunda Guerra Mundial, o governo dos Estados Unidos emitiu uma recomendação obrigatória com força de lei, conhecida como "Recomendação 41", em que se estabelecia que as principais companhias de petróleo daquele país deveriam unir seus conhecimentos sobre refino, voltados ao craqueamento catalítico, com o objetivo de criar um processo FCC (*Large eddy simulation*) de forma contínua em leito fluidizado, que entrou em operação no dia 25 de maio de 1942 na refinaria da *Standard Oil (Esso –* atual *Exxon Mobil Corporation*) de Bateau Rouge (Lousiana/EUA). Os estudos, as pesquisas, os investimentos e os avanços na área de catalisadores não pararam e, a medida que a estabilidade e atividade dos catalisadores produzidos aumentaram, iniciou-se uma migração do craqueamento catalítico em leito fluidizado para o craqueamento catalítico em reatores *riser* 

(Junior 2004). Os resultados obtidos nas unidades Houdry motivaram novas pesquisas com o intuito de encontrar soluções para os problemas apresentados pelo processo em leito fixo. Em 1942, a primeira unidade de craqueamento em leito móvel entrou em operação. O processo foi denominado como TCC (*Thermofor Catalytic Cracking*).

Na década de 1940, a Dorr Oliver aplicou técnicas para queimar minério de sulfeto. A primeira unidade foi construída em Ontário, Canadá em 1947 (Geldart 1986; Kunii e Levenspiel, 1991). Na década de 1950, foram desenvolvidas técnicas de secagem com leitos fluidizados. Em 1957 a companhia Engineers at Courtaulds Ltd. desenvolveu um processo combinado de absorção e fluidização para recuperar o dissulfeto de carbono (CS<sub>2</sub>) diluído (~0,1%) do ar; recuperava 1,2 t/h de CS<sub>2</sub> de 400.000 m<sup>3</sup>/h de ar, com uma remoção entre 90 % – 95 %. Em 1960 construíram-se várias fábricas para a produção da acrilonitrila em leitos fluidizados; na década de 1970 apareceu o processo da Union Carbide de síntese de polietileno. Em 1972 entra em operação o processo Shell Chlorine, mediante o qual HCl é oxidado a cloro. O processo foi escalado usando uma combinação de modelos matemáticos. Entre as décadas de 1970 e 1980, realizaram-se pesquisas em leitos fluidizados para combustão com o objetivo de absorver SO<sub>2</sub> em dolomita. Em meados de 1980 a Exxon, com a colaboração de Lewis e Gilliland do Instituto de Tecnologia de Massachusetts, desenvolveu um sistema de transporte pneumático para craqueamento catalítico de querosene. A Union Carbide-MIT produziu SiHCl3 de SiCl4 num leito fluidizado. A Osaka Titanium construiu um reator de 25 cm de diâmetro, com uma vazão de produção de 200 t/ano de silicone puro.

Os reatores *riser* possuem uma distribuição não uniforme dos tempos de residência dos sólidos além de uma distribuição não homogênea na direção radial, existem diferentes tempos de contato entre as fases gasosa e sólida. Por exemplo, em reações de pirólise, em que o contato

íntimo entre as fases é essencial em condições de tempo controladas, a retromistura (*backmixing*) dá lugar a um sobre craqueamento e a uma redução na seletividade (Kraemer 1990; Chen 2003).

O craqueamento catalítico fluido (FCC) é a segunda maior aplicação da tecnologia de leitos fluidizados depois da gaseificação de carvão, contando hoje em dia com mais de 350 unidades no mundo (Grace *et al.*, 2006). O processo de FCC (*Fluid Catalytic Cracking*) é mostrado na Figura 1 utiliza um catalisador sólido, neste estágio as cadeias longas ou de resíduos pesados vaporizados do petróleo são quebradas, convertendo-as em produtos leves como gasolina, querosene, diesel, e em olefinas com um valor agregado maior.

Segundo o OSHA (2003), o craqueamento catalítico é similar ao processo de quebra térmica, sendo que, o uso de catalisador facilita a conversão, em condições menos severas de operação. Tipicamente um processo destes é operado a temperaturas entre 727 K e 783 K e pressões entre 69 a 138 kPa. O catalisador utilizado geralmente é um material sólido, como, por exemplo, zéolitas, hidrosilicato de alumínio, bauxita, sílica entre outros, podendo ser produzido na forma de pó, pellets, ou materiais de formas específicas, chamados de extrudados.

Existem quatro etapas básicas no processo de craqueamento catalítico:

**Etapa de Reação:** o calor e o contato entre mistura de gasóleo com o catalisador fluidizado fazem com que as moléculas grandes dos hidrocarbonetos sejam craqueadas em moléculas menores. O tempo de residência do catalisador e do vapor de hidrocarbonetos no *riser* é tipicamente de 2 a 5 segundos. A temperatura máxima do *riser* está tipicamente entre 750 e 820 K, e é usualmente controlada por regulagem de fluxo do catalisador regenerado quente para o *riser*.

Etapa de separação: o catalisador é separado dos produtos gasosos do craqueamento por

ciclones instalados à saída do riser.

**Etapa de Regeneração**: No regenerador, o coque depositado sobre o catalisador é queimado com ar a uma temperatura de próxima dos 1000 K. A queima do coque serve não só para regenerar o catalisador, como também para fornecer a maior parte da energia necessária para a vaporização do gasóleo e as reações de craqueamento e para sistemas de recuperação de energia na planta. O ar para a combustão do coque é fornecido por um soprador de ar (*Blower*) e é injetado no regenerador através de um distribuidor (*Pipe-Grid*), localizado na base do regenerador. O catalisador é fluidizado, no regenerador, pela corrente de ar e gases de combustão. Estes gases passam pelo leito de catalisador fluidizado (fase densa), e atinge uma zona onde ocorre à separação sólido-gás (fase diluída).

Etapa de Fracionamento: Os hidrocarbonetos craqueados são separados em vários produtos.

Segundo Cheng *et al.*, (2008) os aspectos mais importantes do impacto econômico que tem o FCC no refino do petróleo e na economia global são:

- Existem aproximadamente 350 unidades de FCC (em 2006) operando no mundo; com uma capacidade de produção de mais de 2,4 milhões de t/dia (16 milhões de barris por dia);
- A diferença entre o valor de produtos e de carga em uma unidade FCC pode chegar a até US\$10/barril;
- Fabricam-se mais de 450.000 toneladas de catalisador para FCC todos os anos, representando uns US\$ 600 milhões nos negócios mundiais. A massa total de catalisador fabricada mundialmente é de aproximadamente de 1200 t/d.



Figura 1 Diagrama esquemático do processo FCC (Fluid Catalytic Cracking). Fonte adaptada: OSHA (1992).

## **3 MODELAGEM MATEMÁTICA PARA A SIMULAÇÃO DE GRANDES ESCALAS (LES)**

O LES teve origem nas aplicações geofísicas, em estudos climáticos e atmosféricos (SMAGORINSKY, 1963; LILLY, 1967; DEARDORFF, 1974). Mais tarde, no desenvolvimento de testes focados aos escoamentos simples, como a turbulência isotrópica e escoamentos completamente desenvolvidos e em canais de escoamento turbulento (PIOMELLI *et al.* 2002 ). Atualmente estão sendo desenvolvidos estudos para a aplicação LES (*Large Eddy Simulation*) em geometrias complexas, com reações químicas que são de grande interesse na engenharia (FOX 2012).

Para aplicar a simulação de grandes escalas (LES) em escoamentos de duas fases, a primeira questão é escolher uma abordagem adequada para descrever a influência da segunda fase no escoamento. Por exemplo, no caso de escoamentos diluídos de partículas carregadas, em alguns casos se utiliza a metodologia Euleriana e Lagrangeana, em que o escoamento de gás é resolvido considerando como um meio contínuo (euleriana) e para o arraste das partículas é usada abordagem Lagrangeana. Uma técnica alternativa é usar a metodologia Euleriana-Euleriana para ambas as fases. Para LES, tanto a abordagem Euleriana-Lagrangeana quanto a Euleriana-Euleriana, ainda estão sendo estudadas.

No presente estudo, optou-se por adotar uma abordagem Euleriana-Euleriana, devido a que esta abordagem considera o gás e o catalisador como sistemas contínuos e meios interpenetrantes. Em outras palavras, as diferentes fases podem ocupar a mesma posição no espaço, introduzindo a fração volumétrica, no conjunto de variáveis. O fato de considerar o catalisador como um sistema discreto resulta em um custo computacional muito grande. Considerou-se neste trabalho, aplicar Simulação de Grandes Escalas para a fase gasosa. As equações para a abordagem Euleriana Euleriana são listadas a seguir:

#### Equações de Continuidade para as fases

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_g \varphi_g \right) + \nabla \cdot \left( \rho_g \varphi_g \vec{U}_g \right) = 0 \tag{1}$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_s \varphi_s \right) + \nabla \cdot \left( \rho_s \varphi_s \vec{U}_s \right) = 0 \tag{2}$$

#### Equações de quantidade de movimento

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_g \varphi_g \vec{U}_g \right) + \nabla \cdot \left( \rho_g \varphi_g \vec{U}_g \vec{U}_g \right) = -\nabla P_g + \nabla \cdot \left[ \vec{\tau}_g \right] + \varphi_g \rho_g \vec{g} + \beta \left( \vec{U}_s - \vec{U}_g \right)$$
(3)

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_s \varphi_s \vec{U}_s \right) + \nabla \cdot \left( \rho_s \varphi_s \vec{U}_s \vec{U}_s \right) = -\nabla P_s + \nabla \cdot \left[ \vec{\tau}_s \right] + \varphi_s \rho_s \vec{g} + \beta \left( \vec{U}_g - \vec{U}_s \right)$$
(4)

Tensões

$$\left[\vec{\tau}_{g}\right] = \mu_{g,e}\varphi_{g}\left[\nabla\vec{U}_{g} + \nabla\vec{U}_{g}^{T}\right] - \frac{2}{3}\mu_{g,e}\varphi_{g}\left[\nabla\cdot\vec{U}_{g}\right]\overline{\overline{I}}$$
(5)

$$\left[\vec{\tau}_{s}\right] = \mu_{s,e}\varphi_{s}\left[\nabla\vec{U}_{s} + \nabla\vec{U}_{s}^{T}\right] - \frac{2}{3}\mu_{s,e}\varphi_{s}\left[\nabla\cdot\vec{U}_{s}\right]\overline{\vec{I}}$$
(6)

Pressão da fase sólida (Gidaspow, 1994)

$$\nabla P_s = G(\varphi_s) \nabla \varphi_s \tag{7}$$

$$G(r_s) = \frac{\partial P_s}{\partial \varphi_s} \tag{8}$$

$$G(\varphi_s) = G_0 \exp\left(-c\left(\varphi_s - 0, 637\right)\right) \tag{9}$$

$$G_0 = 1Pa$$
,  $c = 600$  (10)

### Função de Arrasto na Interface (Gidaspow, 1994)

$$\beta_{g,s} = \frac{3}{4} C_D \frac{\rho_g \varphi_s \left| \vec{U}_g - \vec{U}_s \right|}{d_p} \varphi_g^{-1.65} \quad , \quad \varphi_g \ge 0.8$$
(11)

$$\operatorname{Re} = \frac{\rho_{g} \varphi_{g} \left| \vec{U}_{g} - \vec{U}_{s} \right| d_{p}}{\mu_{g}}$$
(12)

$$\beta_{g,s} = \frac{3}{4} C_D \frac{150 \varphi_s^2 \mu_g}{d_p^2 \varphi_g} + 1,75 \frac{\rho_g \varphi_s \left| \vec{U}_g - \vec{U}_s \right|}{\varphi_g d_p} \quad , \quad \varphi_g < 0,8$$
(13)

$$C_D = \frac{24}{\text{Re}} \left( 1 + 0.15 \,\text{Re}^{0.687} \right) \quad \text{, Re} < 1000 \tag{14}$$

$$C_D = 0,44$$
 ,  $\text{Re} \ge 1000$  (15)

### Fração volumétrica

$$\varphi_g + \varphi_s = 1 \tag{16}$$

### Equação de Energia

Para descrever a conservação de energia pelo modelo Euleriano-Euleriano pode ser escrita uma equação de entalpia para cada fase:

$$\frac{\partial}{\partial t} (\varphi_{g} \rho_{g} H_{g}) + \nabla \cdot (\varphi_{g} \rho_{g} \vec{U}_{g} H_{g}) = \nabla \cdot (\varphi_{g} \lambda_{g} \nabla T_{g}) + \gamma (T_{s} - T_{g}) + \varphi_{g} \rho_{g} \sum_{r} \Delta H_{r} \frac{\partial C_{r}}{\partial t}$$
(17)

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varphi_{s}\rho_{s}H_{s}) + \nabla \cdot \left(\varphi_{s}\rho_{s}\vec{U}_{s}H_{s}\right) = \nabla \cdot \left(\varphi_{s}\lambda_{s}\nabla T_{s}\right) + \gamma \left(T_{g} - T_{s}\right)$$
(18)

Em que:

H = Entalpia específica

*T* =Temperatura

 $\gamma$  = Coeficiente de troca térmica entre as fases

 $\lambda$  = Condutividade térmica

O coeficiente de troca térmica entre as fases é modelado usando a seguinte correlação:

$$\gamma = \frac{Nu\lambda}{d_s} \tag{19}$$

Para o caso de escoamentos multifásicos, o número de Nusselt é determinado pela seguinte correlação (RANZ e MARSHAL, 1952):

$$Nu = 2,0 + 0,6Re_s^{1/2}Pr^{1/3}$$
(20)

#### Equação Transporte de Espécies

$$\frac{\frac{\partial y}{\partial t}(\varphi_g \rho_g Y_{i,g})}{I} + \underbrace{\nabla \cdot \left(\varphi_g \rho_g \vec{U}_g Y_{i,g}\right)}_{II} = \underbrace{\varphi_g R_{i,g}}_{III} + \underbrace{\varphi_g S_{i,g}}_{IV}$$
(21)

- I) Termo transiente
- II) Termo convectivo
- III) Termo da reação homogênea
- IV) Termo de produção homogênea

Em que, Ri é a razão líquida de produção da espécie i pela reação, e Si é a razão de produção devida à adição da fase dispersa. Esta equação é resolvida para N - I espécies sendo N o número total de espécies e cumprindo-se que o somatório das frações mássicas seja igual a unidade.

#### **3.1 FILTRAGEM**

A metodologia LES é uma abordagem multi-escala para a dinâmica de fluidos, baseada na separação de grandes e pequenas escalas em um escoamento turbulento. No LES, é introduzida uma operação de filtragem das equações transientes de Navier-Stokes no espaço físico, para
separar formalmente o escoamento das escalas resolvidas e não resolvidas. As grandes escalas de movimento são simuladas diretamente enquanto que as menores escalas (escalas dissipativas) são modeladas. Todas as variáveis de campo são decompostas em componentes resolvidas e não resolvidas (o modelo de sub-malha), usando a decomposição de Reynolds. Nos modelos RANS (*Reynolds-averaged Navier–Stokes*) o espectro turbulento é completamente modelado, por tal motivo estes consomem, em teoria, menos custo computacional.

Leonard (1974) foi o primeiro a usar o termo *Large Eddy Simulation*. Ele também introduziu a idéia de filtragem como uma operação de convolução formal sobre o campo de velocidades, e deu a primeira formulação geral do método.

As equações resultantes da filtragem governam a dinâmica dos grandes redemoinhos *(eddies)*. Uma variável filtrada é indicada por uma barra acima e definida como:

$$\overline{\Phi}(x) = \int_{D} \Phi(x') G(x; x') dx'$$
<sup>(22)</sup>

Onde D é o domínio fluido e G é a função de filtro que determina a escala dos redemoinhos resolvidos. A parte não resolvida da variável  $\Phi$  é definida por

$$\Phi' = \Phi - \overline{\Phi} \tag{23}$$

Na simulação de grandes escalas não se realiza média temporal, as variáveis filtradas são funções do espaço e do tempo, significa que o LES apresenta valores instantâneos. Ao contrário do modelo RANS em que trabalha com valores médios e a média das flutuações será portanto igual a zero  $\overline{\varphi'} = 0$  a média das flutuações filtradas no LES são diferentes de zero:

$$\overline{\Phi'} \neq 0 \tag{24}$$

A discretização do domínio espacial em volumes de controle finitos prevê implicitamente a operação de filtragem:

$$\overline{\Phi}(x) = \frac{1}{V} \int_{V} \Phi(x') dx' \quad , \quad x' \in V$$
<sup>(25)</sup>

Em que V é o volume de controle. A função de filtro G(x; x') está dada por

$$G(x;x') = \begin{cases} 1/V & , & x' \in V \\ 0 & , & Caso \ contrário \end{cases}$$
(26)

A seguir, a modelagem será apresentada para as equações incompressíveis. A equação de quantidade de movimento incompressível pode ser escrita da seguinte forma:

$$\frac{\partial U_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left( U_i U_j \right) = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \overline{p}}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ v \left( \frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) \right] - \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j}$$
(27)

Em que  $\tau_{ij}$ é a tensão das escalas de sub-malha. Isto inclui o efeito das pequenas escalas, assim:

$$\tau_{ij} = \overline{U_i U_j} - U_i U_j \tag{28}$$

O escoamento turbulento de grandes escalas é resolvido diretamente e a influência das pequenas escalas é levada em conta através dos modelos de sub-malha apropriados. Nestas simulações, usa-se uma metodologia de viscosidade turbulenta, a qual relaciona as tensões da sub-malha  $\tau_{ii}$  com o tensor da taxa de deformação das grandes escalas  $S_{ii}$  da seguinte forma:

$$-\left(\tau_{ij} - \frac{\delta_{ij}}{3}\tau_{kk}\right) = 2v_{sm}S_{ij}$$
<sup>(29)</sup>

$$S_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right)$$
(30)

A diferença dos modelos RANS, onde a viscosidade turbulenta  $v_{sm}$  representa todas as escalas turbulentas, a viscosidade de sub-malha representa somente as escalas menores. A parte

isotrópica de  $\tau_{kk}$ não é modelada, porém, é adicionada à pressão estática filtrada.

Existem três modelos para calcular a viscosidade de sub-malha  $v_{sm}$ . É recomendável utilizar como primeira opção o modelo de viscosidade turbulenta com adaptação local da parede ou "*LES WALE*", desenvolvido por Nicoud e Ducros (1999). Este é um modelo algébrico como o modelo de Smagorinsky, mas supera algumas deficiências conhecidas do modelo. A principal vantagem do modelo LES WALE é a capacidade de reproduzir a transição de laminar para turbulento, sem necessidade de uma variável secundária explícita de filtragem. Além do modelo WALE, existe o modelo Smagorinsky (SMAGORINSKY, 1963) e o modelo dinâmico de Smagorinsky – Lilly (GERMANO *ET. AL.*, 1991; LILLY, 1992).

### **3.2** MODELOS DE SUB-MALHA

Precisa-se de um modelo sub-malha para modelar as escalas de turbulência que não podem ser resolvidas pela discretização da malha. Utilizou-se um modelo de sub-malha para estimar a viscosidade efetiva baseado em Smagorinsky (1963). Este modelo assume que a viscosidade é função da taxa de deformação e de parâmetros associados à frequência de corte (dimensões do volume da malha). Nesta seção, a nomenclatura baseia-se no *ANSYS CFX-Solver Theory Guide* (2011).

### 3.2.1 Modelo de Smagorinsky

O modelo de Smagorinsky é um modelo algébrico para calcular a viscosidade turbulenta  $v_{sm}$ . Este modelo é baseado na análise dimensional e pode-se expressar assim:

$$v_{sm} \propto l q_{sm} \tag{31}$$

. . . .

Onde *l* é o comprimento da escala (normalmente do tamanho da malha  $\Delta = (Vol)^{U_3}$ ) e  $q_{sm}$ 

é a velocidade. Baseado em uma analogia do modelo de comprimento de mistura de Prandtl, a escala de velocidade é representada pelos gradientes da velocidade filtrada:

$$q_{sm} = \Delta \left| S \right| \quad onde \quad \left| S \right| = \left( 2S_{ij} S_{ij} \right)^{1/2} \tag{32}$$

Isto gera o modelo de Smagorinsky para a viscosidade de sub-malha:

$$v_{sm} = \left(C_S \Delta\right)^2 \left|S\right| \tag{33}$$

Onde  $C_s$  é a constante de Smagorinsky. O valor da constante para turbulência isotrópica, com intervalo de espectro inercial,

$$E(k) = C_s \varepsilon^{2/3} k^{-5/3} \tag{34}$$

Em que

$$C_{s} = \frac{1}{\pi} \left(\frac{2}{3C_{k}}\right)^{3/4} = 0,18$$
(35)

O valor de  $C_S$  pode mudar dependendo do tipo de escoamento e da qualidade da malha. Este valor encontra-se na faixa de 0,065 até 0,25. Muitas vezes o valor de 0,1 é usado como valor padrão, com resultados favoráveis para a maioria de escoamentos.

Este coeficiente  $C_S$ , porém, não é uma constante universal, esta é a falha mais grave deste modelo. Além disso, são necessárias funções de amortecimento perto das paredes.

O filtro característico é tomado como o tamanho local da malha:

$$\Delta = \left(\Delta V_{IJK}\right)^{1/3} \tag{36}$$

### Funções de amortecimento

Perto das paredes, a viscosidade turbulenta pode ser amortecida. A função de

comprimento mínimo de mistura e uma função de amortecimento da viscosidade  $f_{\mu}$  está dada por:

$$v_{sm} = \min\left(l_{mis}, f_{\mu}C_{S}\Delta\right)^{2}\sqrt{2S_{ij}S_{ij}}$$
(37)

Com

$$l_{mis} = \kappa \cdot y_{parede} \tag{38}$$

O valor padrão para κ é de 0,4.

Esta função de amortecimento tem um valor por default de 1,0. Esta função também pode ser especificada dependendo de cada caso, duas funções famosas são as de Van Driest e a de Piomelli. Para o caso de Van Driest. A função de amortecimento é:

$$f_{\mu} = 1 - \exp\left(-\tilde{y}/A\right) \tag{39}$$

Com A=25. Para o caso de Piomelli, esta função é:

$$f_{\mu} = \sqrt{1 - \exp\left[\left(-\tilde{y}/A\right)^3\right]} \tag{40}$$

Com A=25. A distância normalizada da parede  $\tilde{y}$ 

$$\tilde{y} = \frac{y \cdot \tilde{u}}{v} \tag{41}$$

É definida como uma função da distância da parede calculada y, a viscosidade cinemática v e a escala de velocidade local  $\tilde{u}$ .

#### 3.2.2 Modelo WALE

O modelo WALE é formulado localmente e utiliza a seguinte equação para calcular a viscosidade turbulenta:

$$v_{sm} = \left(C_{W}\Delta\right)^{2} \frac{\left(S_{ij}^{d}S_{ij}^{d}\right)^{3/2}}{\left(\overline{S}_{ij}\overline{S}_{ij}\right)^{5/2} + \left(S_{ij}^{d}S_{ij}^{d}\right)^{5/4}}$$
(42)

Onde  $S_{ij}^{d}$  denota a parte simétrica do quadrado do tensor gradiente da velocidade:

$$S_{ij}^{d} = \frac{1}{2} \left( \bar{g}_{ij}^{2} + \bar{g}_{ji}^{2} \right) - \frac{1}{3} \delta_{ij} \bar{g}_{kk}^{2}$$
<sup>(43)</sup>

Em que  $\overline{g}_{ij}^2 = \overline{g}_{ik} \overline{g}_{kj}$ ,  $\overline{g}_{ij} = \partial \overline{u}_i / \partial x_j$  e  $\delta_{ij}$  é o símbolo de *Kronecker*. O tensor  $S_{ij}^d$  pode ser

expresso também em termos dos tensores tensão e vorticidade da seguinte forma:

$$S_{ij}^{d} = \overline{S}_{ik}\overline{S}_{kj} + \overline{\Omega}_{ik}\overline{\Omega}_{kj} - \frac{1}{3}\delta_{ij}\left(\overline{S}_{mn}\overline{S}_{mn} + \overline{\Omega}_{mn}\overline{\Omega}_{mn}\right)$$
(44)

Em que o tensor vorticidade  $\bar{\Omega}_{ij}$  esta representado por

$$\overline{\Omega}_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial \overline{U}_i}{\partial x_j} - \frac{\partial \overline{U}_j}{\partial x_i} \right)$$
(45)

O valor padrão para  $C_W$  é de 0,5.

## 3.2.3 Modelo Dinâmico Smagorinsky - Lilly

Germano *et. al.* (1991) e, posteriormente, Lilly (1992) propuseram um método para avaliar os coeficientes do modelo de sub-malha, utilizando a informação contida no campo de velocidade turbulento resolvido, a fim de superar as deficiências do modelo de Smagorinsky. O coeficiente do modelo não é mais um valor constante e ajusta-se automaticamente ao tipo de escoamento. A ideia básica do modelo é uma identidade algébrica que relaciona as tensões de sub-malha em duas larguras de filtro diferentes. A filtragem na menor largura de filtro é implicitamente dada pelo tamanho da malha, enquanto que, a filtragem da maior largura requer o uso de um procedimento implícito de filtragem. A chamada "identidade Germano" é mostrada a seguir:

$$L_{ij} = T_{ij} - \tilde{\tau}_{ij} \tag{46}$$

Onde  $\tilde{\tau}_{ij}$  representa o tensor da sub-malha na escala  $\Delta$  e  $T_{ij}$  o tensor de sub-malha na escala  $\Delta$ :

$$\tilde{\tau}_{ij} = \overline{U_i U_j} - U_i U_j \tag{47}$$

$$T_{ij} = \left\{ \overline{U_i U_j} \right\} - \left\{ \overline{U_i} \right\} \left\{ \overline{U_j} \right\}$$
(48)

Em que o simbologia das chaves { } representa a filtragem secundária de uma quantidade com  $\Delta > \Delta$ . O tensor formulado pelos movimentos turbulentos da escala intermediária entre  $\Delta$  e  $\Delta$  é mostrado a seguir

$$L_{ij} = \left\{ U_i U_j \right\} - \left\{ U_i \right\} \left\{ U_j \right\}$$
(49)

Embora o procedimento Germano possa ser aplicado com qualquer modelo de sub-malha, o modelo Smagorinsky tem sido usado para calcular as tensões de sub-malha nos diferentes níveis de filtragem

$$\tau_{ij} - \frac{\delta_{ij}}{3} \tau_{kk} = C_d \left( -2\Delta^2 \left| S_{ij} \right| S_{ij} \right) = C_d m_{ij}^{sm}$$
<sup>(50)</sup>

$$T_{ij} - \frac{\delta_{ij}}{3} T_{kk} = C_d \left( -2\left\{\Delta\right\}^2 \left| \left\{S_{ij}\right\} \right| \left\{S_{ij}\right\} \right) = C_d m_{ij}^{test}$$
(51)

Utilizando-se a identidade Germano, obtém-se:

$$L_{ij}^{a} = L_{ij} - \frac{\delta_{ij}}{3} L_{kk} = C_{d} m_{ij}^{test} - \left\{ C_{d} m_{ij}^{sm} \right\}$$
(52)

O sistema resultante da Equação anterior é sobre-especificado e o coeficiente  $C_d$  aparece dentro da operação de filtragem secundária. Com o intuito de resolver este sistema de equações, o erro  $e_{ij}$  associado ao modelo de Smagorinsky é definido da seguinte maneira:

$$e_{ij} = L^{a}_{ij} - C_{d} m^{test}_{ij} + \left\{ C_{d} m^{sm}_{ij} \right\}$$
(53)

Lilly (1992) aplicou o método de mínimos quadrados para minimizar o erro. O coeficiente  $C_d$  é obtido do processo de filtragem, assim:

$$C_{d} = \frac{L_{ij}^{a} M_{ij}}{M_{ij} M_{ij}}$$

$$M_{ij} = m_{ij}^{test} - \left\{ m_{ij}^{sm} \right\}$$
(54)
(55)

Usando o coeficiente  $C_d$ , a viscosidade turbulenta é obtida por:

$$v_{sm} = C_d \Delta^2 \left| S_{ij} \right| \tag{56}$$

O coeficiente  $C_d$ , obtido utilizando o modelo dinâmico Smagorinsky-Lilly varia no tempo e no espaço em uma faixa bastante ampla. Para evitar instabilidade numérica, aplica-se um relaxamento de  $C_d$  no tempo e um limite superior e limite inferior sobre o coeficiente, da seguinte forma:

## Limite inferior (para evitar viscosidade negativo:

$$C_d = \max\left(C_d, C_d^{\min}\right), C_d^{\min} = 0, 0$$
<sup>(57)</sup>

Limite superior:

$$C_d = \min\left(C_d, C_d^{\max}\right) \tag{58}$$

Relaxação no tempo

$$\tilde{C}_d^n = \alpha C_d^n + (1 - \alpha) \tilde{C}_d^{n-1} \quad com \quad \alpha = 0,01$$
<sup>(59)</sup>

O valor de  $C_d^{\text{max}}$  deve estar na faixa de 0,04 a 0,09.

#### 3.2.4 Simulação De Escala Adaptativa-SAS

O modelo foi proposto por Menter e Egorov (2005), denominado modelo de simulação de escala adaptativa-SAS (Scale-Adaptative Simulation), aplicável para regimes turbulentos instáveis. Tal modelo opera no modo padrão RANS, mas tem a capacidade de resolver o espectro turbulento das regiões instáveis do campo de fluxo, comportando-se como LES em regiões instáveis. Tem a característica de se adaptar automaticamente as escalas de comprimento para resolver as escalas do campo do escoamento. Utiliza a escala de comprimento de von Karman,  $L_{vK}$ , outorgando uma aplicação da clássica definição da camada limite.

A formulação matemática do SAS difere do RANS SST, pelo termo fonte adicional  $Q_{SAS}$ , na equação de transporte da frequência de dissipação da turbulência  $\omega$ , assim:

$$\frac{\partial \rho k}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho U_i k) = G_k - \rho c_\mu k \omega + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( \mu + \frac{v_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right]$$
(60)

$$\frac{\partial \rho \omega}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho U_i \omega)$$

$$= \alpha \frac{\omega}{k} G_k - \rho \beta \omega^2 + Q_{SAS} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left[ \left( \mu + \frac{v_t}{\sigma_\omega} \right) \frac{\partial \omega}{\partial x_j} \right] + (1 - F_1) \frac{2\rho}{\sigma_{\omega,2}} \frac{1}{\omega} \frac{\partial k}{\partial x_j} \frac{\partial \omega}{\partial x_j}$$
(61)

O termo fonte adicional  $Q_{SAS}$  foi proposta por Menter e Egorov (2010), sendo esta expressa por:

$$Q_{SAS} = max \left[ \rho \eta_2 \kappa S^2 \left( \frac{L}{L_{\nu\kappa}} \right)^2 - C \cdot \frac{2\rho k}{\sigma_{\phi}} max \left( \frac{1}{\omega^2} \frac{\partial \omega}{\partial x_j} \frac{\partial \omega}{\partial x_j}, \frac{1}{k^2} \frac{\partial k}{\partial x_j} \frac{\partial k}{\partial x_j} \right), 0 \right]$$
(62)

Os parâmetros no termo de fonte Q<sub>SAS</sub> são os seguintes:

$$\eta_2 = 3,51$$
 (63)

$$\sigma_{\Phi} = \frac{2}{3} \tag{64}$$

$$C = 2 \tag{65}$$

A escala de comprimento L, foi modelada por:

$$L = \frac{\sqrt{k}}{c_{\mu}^{1/4} \cdot \omega} \tag{66}$$

O invariante escalar do tensor de deformação S<sub>ij</sub>

$$S = \sqrt{2S_{ij}S_{ij}} \quad , \quad S_{ij} = \frac{1}{2} \left[ \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right]$$
(67)

A segunda derivada da velocidade U'' é representada da seguinte forma:

$$|U''| + \sqrt{\Sigma_{(i)} \left(\frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_j}\right)^2}$$
(68)

O desenvolvimento da técnica foi motivado para otimizar o alto custo computacional da aplicação da Simulação de Grandes Escalas (LES) para configurações de estruturas robustas como aviões, submarinos, ou veículos de transporte (Figura 2)



Figura 2 Configuração de estruturas turbulentas para um avião. (esquerda) - SST-URANS, (direita) SST-SAS. Adotado de (EGOROV *et al.* 2010b)

A Figura 2 mostra as estruturas de vórtices através do critério Q, que será explicado mais adiante no trabalho. Observa-se que o SAS consegue descrever maior número de estruturas de vórtices utilizando a mesma malha. Para o caso de gás-sólido estes vórtices ou estruturas turbulentas estão intimamente relacionados, em hipótese, com a presença de mesoescalas, as quais são as dominantes no escoamento (*Clusters, strands*) e no caso de sistemas reativos, estas serão dominantes na seletividade e no rendimento da gasolina. Lembrando que aglomerados ou regiões com alta concentração de catalisador tem como consequência menor seletividade e rendimento de gasolina. Egorov *et al.* (2007, 2010) mostra a diferença significativa na fluidodinâmica para caso reativo e não reativo em uma câmara de combustão da ITS (*Institut für Thermische Strömungsmaschinen*). Os vórtices foram estimados pelo critério Q para um valor de  $10^7 s^2$ .



Figura 3 Configuração de estruturas turbulentas na câmara de combustão ITS (esquerda) sem reação, (direita) Reação de combustão. Adotado de (EGOROV *et al.* 2010)

O fator de distinção do modelo é o uso da escala de comprimento de von Karman,  $L_{vK}$ , o qual é uma generalização da clássica definição da camada limite.

#### **3.2.5 DES (Detached-Eddy Simulation)**

Detached-Eddy Simulation (DES) é uma técnica híbrida proposta pela primeira vez por Spalart et al. (1997) para predizer escoamentos turbulentos com elevados números de Reynolds (SPALART 2000). Também pode ser definido como a solução numérica transiente e tridimensional que usa um único modelo de turbulência, o qual funciona como um modelo submalha nas regiões em que a densidade da malha é fina o suficiente para a simulação das grandes escalas, e como um modelo da média de Reynolds nas regiões em que isso não ocorre (PEDRÃO 2010). O alto custo de LES quando aplicado para completar as configurações em altos números de Reynolds surge por causa da resolução requerida na camada limite, uma questão que permanece, mesmo com pleno êxito da modelagem da lei da parede (*wall-layer modeling*) (SQUIRES 2004).

A formulação DES é obtida a partir de um modelo de turbulência RANS, usado uma modificação apropriada da escala de comprimento envolvida. O comprimento de escala usado na modelagem DES, chamado  $L_{DES}$ , é dado por:

$$\frac{\partial k}{\partial t} + \frac{\partial (\bar{u}_j k)}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \left( v + \frac{v_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] + P_k - \frac{k^{3/2}}{L_k}$$
(69)

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} + \frac{\partial \left(\bar{u}_{j}\varepsilon\right)}{\partial x_{j}} = \frac{\partial}{\partial x_{j}} \left[ \left( v + \frac{v_{t}}{\sigma_{\varepsilon}} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_{j}} \right] + C_{\varepsilon_{1}} \frac{k^{1/2}}{L_{\varepsilon_{1}}} P_{k} - C_{\varepsilon_{2}} \frac{k^{1/2}}{L_{\varepsilon_{2}}} \varepsilon$$

$$\tag{70}$$

$$v_t = C_{\mu} k^{1/2} L_{\nu} \tag{71}$$

$$P_k = v_t S^2 \tag{72}$$

O comprimento de escala turbulenta para o modelo k-e está expressa por:

$$L_t = \frac{k^{3/2}}{\varepsilon} \tag{73}$$

Os comprimentos  $L_{\varepsilon 1}$  e  $L_{\varepsilon 2}$  são mantidos a um valor igual de  $L_t$  e portanto a equação da

taxa de dissipação da energia cinética turbulenta,  $\varepsilon$ , permanece inalterada. O modelo DES baseado em duas equações de transporte usa somente a substituição de  $L_k$ , mantendo inalterada a equação da viscosidade turbulenta (TRAVIN ET AL. 2002; DE LANGHE ET AL. 2003; KOK ET AL. 2004, DAVIDSON 2012).

$$L_k = L_{des} \tag{74}$$

$$L_v = L_t \tag{75}$$

$$v_{sm} = C_{\mu} \frac{k^2}{\varepsilon} \tag{76}$$

Quando o DES é baseado no modelo k-e são definidos dois comprimentos de escala diferentes:

$$L_{des \ k} = min\left(\frac{k^{3/2}}{\varepsilon} \ , \ \frac{\Delta}{C_{\varepsilon}}\right)$$
(77)

$$L_{des v} = min\left(\frac{k^{3/2}}{\varepsilon} , \frac{C_k\Delta}{C_\mu}\right)$$
 (78)

Em que os valores das constantes são:

$$C_{\mu} = 0.09 \; ; \; C_k = 0.07 \; ; \; C_{\varepsilon} = 1.09 \tag{79}$$

# **4 MÉTODOS NUMÉRICOS**

Diferentes métodos numéricos são reportados na literatura, tais como Método de Diferenças Finitas (MDF), Método de Volumes Finitos (MVF) e Método de Elementos Finitos (MEF). Existem outros métodos tais como os métodos espectroscópicos, métodos de elementos de contorno ou autômatos celulares, mas são geralmente restritos a casos específicos.

No contexto de pacotes de *software* comerciais de fluidodinâmica computacional, o método de volumes finitos é aplicado em todos aqueles programas comerciais com enfoque industrial. A preferência é devido às suas características conservativas, já que, para o escoamento de fluidos é importante satisfazer os princípios de conservação no nível discreto. Com este método, não há a possibilidade da existência de fontes/sumidouros de grandezas como massa, quantidade de movimento e energia dentro domínio de solução (MALISKA, 2004). Qualquer método numérico usado na discretização das equações diferenciais de escoamento deve ter as seguintes características (RANADE, 2002):

**Consistência**: Em um método consistente, o erro entre a equação discretizada e a equação exata (chamado erro de truncamento) tende a zero, com o espaçamento da malha tendendo a zero.

**Estabilidade**: Ter aproximações consistentes não garante que a solução do sistema de equações discretizado será a solução exata. Em qualquer método numérico, os erros aparecem no percurso do processo de solução. Para assegurar a estabilidade, alguns métodos precisam impor limites no passo de tempo ou utilizar técnicas de relaxamento.

**Convergência**: Se a solução das equações discretizadas tende à solução exata das equações diferenciais com o espaçamento da malha tendendo a zero, pode se inferir que o método é convergente.

## 4.1 MÉTODO DE VOLUMES FINITOS (MVF)

No método de volumes finitos, a discretização é obtida pela integração das equações de conservação ao redor de um volume de controle finito.

Considerando a forma geral das equações de transporte:

$$\frac{\partial(\rho\phi)}{\partial t} + \underbrace{\nabla \cdot (\rho \vec{v} \phi)}_{II} = \underbrace{\nabla \cdot (\Gamma_{\phi} \nabla \phi)}_{III} + \underbrace{S_{\phi}}_{IV}$$
(80)

Em que,

- I) Termo transiente
- II) Termo convectivo ou advectivo
- III) Termo difusivo
- IV) Termo fonte

As equações de transporte são integradas em cada volume computacional usando o teorema da divergência de Gauss-Green ao longo de um determinado intervalo de tempo. O teorema da divergência de Gauss-Green estabelece que o volume total de todas as fontes e sumidouros, é igual ao escoamento líquido através das fronteiras do volume.

$$\int_{t}^{t+\Delta t} \left\{ \int_{V} \frac{\partial(\rho\phi)}{\partial t} dV + \oint \rho\phi\vec{v} \cdot d\vec{A} = \oint \Gamma_{\phi} \nabla\phi \cdot d\vec{A} + \int_{v} S_{\phi} dV \right\} dt$$
(81)

Em que,

- $\phi$  = Propriedade ou quantidade escalar
- A = vetor de superfície
- $\Gamma_{\phi}$ = coeficiente de difusão para  $\phi$

 $\nabla \phi$ = gradiente de  $\phi$ 

 $S_{\phi}$  = termo fonte de  $\phi$  por unidade de volume

Os valores das variáveis são obtidos pelo uso de técnicas apropriadas de linearização e interpolação. O comportamento dos métodos numéricos depende em parte da linearização e interpolação do termo fonte, esta linearização transforma as equações diferenciais em um conjunto de equações algébricas lineares.

A discretização espacial se relaciona com o termo convectivo da equação de transporte e a discretização temporal se relaciona com o termo transiente do mesmo. Como exemplo para discretização e linearização, considera-se um volume finito bidimensional P da Figura 4



Figura 4. Representação de um volume finito bidimensional.

De acordo com a notação da Figura 4, o termo difusivo pode ser representado da seguinte forma:

$$\oint \Gamma_{\phi} \nabla \phi \cdot d\vec{A} = \frac{\Gamma_{\phi} A_{w}}{h_{w}} (\phi_{P} - \phi_{W}) = D_{w} (\phi_{P} - \phi_{W})$$
(82)

## 4.2 LINEARIZAÇÃO DO TERMO FONTE

O termo fonte genérico para a linearização pode ser representado:

$$S_{\phi P}V_P = S_C^{\phi} + S_P^{\phi}\phi_P \tag{83}$$

Em que,  $S_{\phi P}$  é o valor do termo fonte  $S_{\phi}$  no centro da célula *P*, e  $V_P$  é o volume da célula computacional centrada ao redor do nó P. A linearização do termo fonte  $S_{\phi P}$ , deve ser representada adequadamente a relação entre S e  $\phi$ . Existem diferentes métodos de formular os coeficientes  $S_C^{\phi}$  e  $S_P^{\phi}$ . A seguir é apresentado o método sugerido por sugerido por PATANKAR (1980):

$$S_{\phi P} = S_{\phi P}^* + \left(\frac{dS_{\phi P}}{d\phi}\right)^* \left(\phi_P - \phi_P^*\right)$$
(84)

Em que \* indica o valor da iteração anterior. Este tipo de linearização é recomendado, se o termo fonte diminui com o aumento de  $\phi$ . Assim, os coeficientes do termo fonte são representados, a seguir:

$$S_{C}^{\phi} = \left[S_{\phi P}^{*} - \left(\frac{dS_{\phi P}}{d\phi}\right)^{*}\phi_{P}^{*}\right]V_{P}$$

$$\tag{85}$$

$$S_P^{\phi} = \left(\frac{dS_{\phi P}}{d\phi}\right)^* V_P \tag{86}$$

## 4.3 DISCRETIZAÇÃO TEMPORAL (TERMO TRANSIENTE)

Para simulações transientes, as equações que regem o escoamento devem ser discretizadas no espaço e no tempo. A discretização espacial é similar à do caso estacionário, enquanto que, a discretização temporal envolve a integração de cada termo das equações diferenciais ao longo de um intervalo de tempo  $\Delta t$ . A expressão genérica para a evolução temporal da variável  $\phi$  vem dada por:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = F\left(\phi\right) \tag{87}$$

A função *F* incorpora alguma discretização espacial. A discretização temporal de primeira ordem pode-se expressada:

$$\frac{\phi^{n+1} - \phi^n}{\Delta t} = F(\phi) \tag{88}$$

E a discretização de segunda ordem é dada por

$$\frac{3\phi^{n+1} - 4\phi^n + \phi^{n-1}}{2\Delta t} = F(\phi)$$
(89)

Em que,

 $\phi$  = quantidade escalar

n + 1 = valor no nível de tempo seguinte, t + $\Delta$ t

n = valor no nível de tempo atual, t

n - 1 = valor no nível de tempo anterior, t -  $\Delta t$ .

Discretizada a derivada temporal, deve-se estimar  $F(\phi)$  por integração implícita ou explícita do tempo.

# 5 CRAQUEAMENTO CATALÍTICO

O processo FCC continua sendo um processo importante para o refino de petróleo a gasolina. Lembrando que craqueamento catalítico é um processo químico de transformação de frações de petróleo pesadas em outras mais leves, através da quebra (*cracking*) das moléculas dos constituintes com a utilização de catalisadores. Desenvolveram-se vários processos e catalisadores com o fim de aumentar a produção de olefinas leves mantendo um rendimento alto de gasolina (Aitani 2000). A demanda por olefinas leves, especialmente o propileno, como matéria prima para processos petroquímicos, é estimada em 14,2 milhões de barris por dia; 30% da produção mundial é produzida em unidades FCC (MAADHAH et. al. 2000)

Indústrias petroquímicas utilizaram diferentes estratégias para melhorar a produção nas unidades convencionais de FCC (FUJIYAMA et. al. 2007; MAADHAH et. al. 2000); por exemplo:

- Incrementar a temperatura de saída do reator *riser* (aumentando a severidade): para uma faixa entre 500 °C a 550 °C; esse aumento da temperatura causa rendimentos excessivos de gás leve (C2 e leves), sendo reduzido o craqueamento da gasolina;
- Operando com uma distribuição de tempos de residência reduzida: reduz-se assim o tempo de contato nas reações de segunda ordem de polimerização, permitindo menos tempo para reações de transferência de hidrogênio, aumentando deste modo a produção de olefinas. Nos processos convencionais de craqueamento catalítico (*riser*) operam a temperaturas menores que 530 °C e os processos de alta severidade (HS-FCC *downer*) operam a temperaturas entre 550 °C a 700 °C, com tempos de contato inferiores a um segundo.

- Melhora das estruturas e propriedades dos catalisadores;
- Uso de catalisadores especiais: do ponto de vista das aplicações catalíticas, a zeólita ZSM-5 pertence ao grupo de zeólitas com tamanho de poro médio (inferior a 6,3 Å). A uniformidade de tamanho de poro, a estabilidade térmica, a elevada superfície específica (superior a 600 m²/g) e a sua estrutura bem definida conferem a esta zeólita propriedades de peneira molecular, permitindo a difusão de moléculas de tamanho efetivo inferior à seção de passagem do poro, o que justifica a sua utilização como catalisador em processos petroquímicos, que precisam de elevadas seletividades.

## 5.1.1 Modelo Cinético

Dentro do reator de craqueamento catalítico, apresentam-se uma grande quantidade de reações complexas, produzindo uma mistura de numerosos componentes.

Para descrever esta mistura complexa, diferentes autores agrupam certo número de compostos com características similares em pequenos grupos de pseudo-componentes ou *lumps*, para proporcionar um número razoável de equações cinéticas (LAROCCA *et. al.* 1990; KRAEMER & DE LASA 1988; GIANETTO *et. al.* 1994; MARTIGNONI & de LASA 2001; ABUL-HAMAYEL *et. al.* 2002 ; XU *et. al.* 2006; MENG *et. al.* 2007, SADIGHI *et. al.* 2010).

O modelo de 4-lump pode ser considerado uma extensão do modelo de 3-lump, como indicado por vários estudos (LEE et. al., 1989; OLIVEIRA e BISCAIA, 1989). Este modelo separa o coque dos gases leves em dois grupos diferentes (lumps). Encontram-se diferentes mecanismos de reação para este tipo de modelo como mostra a Figura 5 Observa-se que o craqueamento de gasóleo produz gasolina, gases e coque. Considera-se que a produção de gasolina contribui à formação de gases leves (*overcracking*) e formação de coque. No entanto,

espera-se que a magnitude das últimas duas reações esteja dada pelas condições de operação e em alguns casos sua contribuição à cinética do sistema se pode desprezar. A Figura 5 (B) sugere que não se comete um erro significativo ao desprezar a formação de coque a partir dos gases leves. A Figura 5 (C) apresenta outro mecanismo para o craqueamento da gasolina para um modelo cinético *4-lump*.



Figura 5. Diferentes mecanismos de reação para o modelo *4-lump*: A) Yen *et. al.*, (1988); B) Lee *at al.*, (1989); C) Oliveira e Biscaia (1989)

Para efeitos de cálculo e análise, utiliza-se o modelo B da Figura 5, com as respectivas constantes cinéticas de reação (Figura 6):



Figura 6. Modelo 4-lump.

O craqueamento catalítico do gasóleo foi descrito, usando velocidades de reação de segunda ordem para o craqueamento e de primeira ordem para o overcracking da gasolina (GIANETTO et. al., 1994; AHARI et. al., 2008; HEYDARI et. al., 2010), as velocidades de reação como função das pressões parciais dos reagentes; as pressões parciais dos reagentes representadas pela lei dos gases ideais e os coeficientes cinéticos como uma função de Arrhenius (Tabela 1).

$$k_i = k_i^o e^{\frac{E_{Ai}}{RT}}$$
(90)

	Tabela 1. Coeficientes de Arrhenius para FCC (GIANETTO, 1994, LIU et. al., 2006)							
	Catalisad	or Grande	Catalisador Pequeno					
Ι	$k_i^o$ (m <sup>6</sup> /(kmol.kg <sub>cat</sub> .s)	$E_{Ai}$ (J/ gmol)	$k_i^o$ (m <sup>6</sup> /(kmol.kg <sub>cat</sub> .s)	$E_{Ai}$ (J/ gmol)				
1	$0,4272 \times 10^{13}$	87964,25 ± 12560,4	0,9419×10 <sup>13</sup>	95439,4 +/- 8,360				
2	$0,1337 \times 10^{6}$	73107,39 ± 12560,4	0,1093×10 <sup>-4</sup>	47739,0 +/- 14,630				
31	$0,1012 \times 10^{14}$	97711,12 ± 14653,8	0,3769×10 <sup>15</sup>	125187,0 +/- 8,360				
32	3.252×10 <sup>11</sup>	87646,47 ± 46054,8	$0,1070 \times 10^{15}$	145804,0 +/- 54,340				
A	391 ± 40		$526.56 \pm 44$					

A Tabela 2 mostra diferentes valores das constantes cinéticas, a diferentes temperaturas.

Temperatura (°C)	$k_1$ (wt.frac. x h) <sup>-1</sup>	$k_{3I}$ (wt.frac. x h) <sup>-1</sup>	$k_{32}$ (wt.frac. x h) <sup>-1</sup>	$k_{21}$ (h) <sup>-1</sup>	$k_{22}$ (h) <sup>-1</sup>	$\alpha$ $(h)^{-1}$
500ª	699,12	125,28	50,4	33,48	7 x 10 <sup>-5</sup>	315
550	121,0	35,5	21,3	12,0	2,5	93,6
600	446,3	108,9	25,3	52,4	7,5	212,4
650	743,4	158,0	59,6	104,0	20	280,8
E (kcal/mol)	$28 - 13,7^{a}$	19 – 12,6 <sup>a</sup>	15 - 7,6 ª	34 – 15,7 <sup>a</sup>	30 -15,9 ª	18 -315 ª

Tabela 2. Constantes cinéticas e energias de ativação apresentadas na literatura (ABUL-HAMAYEL *et. al.* 2002; ABUL-HAMAYEL, 2003; ANCHEYTA-JUAREZ *et. al.*, 1997<sup>a</sup>)

A Tabela 3 mostra os parâmetros modificados por Farag *et al.* (1994). O autor otimizou os parâmetros cinéticos da simulação do craqueamento catalítico do petróleo.

Tabela 3. Constantes cinéticas e energias de ativação Farag et al. (1994) para um reator de 33 m de altura.

	$k_o (m^3 kmol^{-1}kg^{-1}s^{-1})$	E (kJ/mol)	$\Delta H_r((kJ/kg)$
Gasóleo a gasolina	20,4	57,36	195
Gasóleo a gases leves	7,8	52,75	670
Gasóleo a coque	3	31,82	745

### 5.1.2 Modelo de desativação do catalisador

A desativação do catalisador se deve principalmente ao coque depositado na superfície do catalisador segundo Weekman (1968). A atividade do catalisador apresenta um comportamento de uma função de primeira ordem:

$$\gamma = \gamma_0 e^{(-\alpha t)} \tag{91}$$

A constante  $\gamma_o$  representa a atividade do catalisador virgem, o termo exponencial representa a diminuição da atividade do catalisador com o tempo devido à formação de coque. A 500 °C se encontra um valor de 0,12 s<sup>-1</sup> para o catalisador comercial *Octacat* (BOLKAN 2003). Para Zeólita II (GIANETTO 1994) o valor reportado é 526,56 ± 44 s<sup>-1</sup>. Ancheyta-Juarez *et. al.* (1997) estima um valor  $\alpha = 0,0875$  s<sup>-1</sup>. Ahari *et. al.* (2008) apresentaram um modelo de desativação do catalisador baseado no modelo de Weekman (1968), sendo uma função que depende da temperatura e do tempo de residência de catalisador ( $t_c$ ).

$$\gamma = e^{(-\alpha t_c)} \tag{92}$$

Em que  $\alpha$  é a desativação do catalisador como função da temperatura (Equação de Arrhenius)

$$\alpha = 83800e^{\left(-\frac{E}{RT}\right)} \tag{93}$$

O valor da energia de ativação (*E*) é 117,72 kJ/mol.

Avidan e Shinnar (1990) apresentam para os modelos 3- e *4-lump* uma função de potência para a desativação do catalisador:

$$\gamma = c_0^{'} t^{-n} \tag{94}$$

Em que  $c_0$ ' é a atividade de regeneração do catalisador, n varia de 0,4 a 0,6 para os catalisadores de sílica-alumina (n é mais baixo para o zeólita), e *t* é o tempo médio de residência do catalisador no reator. Inicialmente, a atividade do catalisador deve estar em seu máximo, isto é;  $c_0$ '.

Foi utilizado neste trabalho o modelo de desativação proposto por Farag *et. al.*(1994), em que a desativação do catalisador está relacionada à concentração de coque depositada na superfície do catalisador.

$$\gamma = e^{K_c q} \tag{95}$$

Em que  $K_c$  é a constante de desativação estimada por Farag *et. al.*(1994) como função do tipo do catalisador, para catalisador FCC10 o valor estimado foi de 8633 kg<sub>cat</sub> kgmol<sup>-1</sup> e q é a concentração de coque, expressada por:

$$q = \frac{C_{coque}}{\rho_s \varphi_s} \tag{96}$$

### Massa molar dos grupos de hidrocarbonetos (lump)

A massa molar, o ponto de ebulição, e o peso específico, são os parâmetros de caracterização mais importantes para frações de petróleo e muitas propriedades físicas podem ser calculadas por estes parâmetros. Vários métodos são comumente utilizados (RIAZI, 2005), no entanto diferentes valores de massas moleculares médios para grupos de hidrocarbonetos (*lump*) são reportadas como mostra a Tabela 4

Tabela 4 Massas moleculares (kg/kgmol) e temperaturas de ebulição (°C), para os *lump*, apresentadas por diferentes autores.

lump	n de	Ponto de	Lopes et.	Bolkan	Al-	Liu <i>et</i> .	Ahari
	carbonos	ebulição	al. 2011	2003	Sabawi	al.,	et. al.
					et. al.	2006	2008
					2006		
Gases	(C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> )	< 36.1	50	40	46	26	40
leves							
Gasolina	$(C_5 - C_{12})$	36.1-216.3	100	100	144	110	106,7
Parafinas	-	-	60	-	-	-	-
Gasóleo	>C <sub>20</sub>	216.3-	400	340	397	340	333
		342.7					
Coque		>342.7	400	14,4	800	12	14,4

## 6 METODOLOGIA APLICADA

A metodologia para resolver problemas de Fluidodinâmica Computacional é mostrada esquematicamente mediante o algoritmo geral da Figura 7:





Esta metodologia é aplicável para problemas tanto bidimensionais quanto tridimensionais e consiste em três etapas principais: pré-processamento, *solver* e pós-processamento dos dados obtidos.

As etapas preliminares ao pré-processamento consistem na criação/reprodução da geometria e da malha computacional. A geometria é realizada em um software de CAD (*Computer Aided Design*), onde são atribuídas as dimensões assim como as entradas e saídas do domínio de solução. A malha consiste na divisão do domínio de solução em volumes de controle, sobre os quais serão resolvidas as equações de transporte, mediante o uso de métodos numéricos. A precisão dos resultados da simulação depende em grande parte da qualidade da malha, a qualidade é medida mediante parâmetros como o ângulo mínimo entre os volumes, e o

determinante da matriz jacobiana. O *software* utilizado neste trabalho para a geometria e a malha computacional corresponde ao pacote comercial ANSYS ICEM<sup>®</sup> Versão 13.

Na etapa de pré-processamento, são inseridas as variáveis das equações de transporte, equações de estado, modelos físicos, condições iniciais e de contorno e demais propriedades, com o objetivo de caracterizar adequadamente o sistema. Após definir o sistema, são configurados os ajustes do solver; tais como o tipo de discretização espacial e temporal, assim como os critérios de convergência, tempo de simulação entre outros.

Na etapa de pós-processamento são avaliados os resultados obtidos mediante a observação de perfis das variáveis de resposta e gráficos em 2D ou contornos em 3D para a comparação com dados experimentais ou a visualização clara dos resultados da simulação. Os softwares utilizados para as etapas supracitadas correspondem ao pacote comercial ANSYS CFX<sup>®</sup> nas versões 12,13 e 14

## 6.1 GEOMETRIA PARA ESTUDO DA FLUIDODINÂMICA TRIDIMENSIONAL

A geometria utilizada no estudo da fluidodinâmica aplicando LES foi apresentada por Samuelsberg *et. al.* (1996). Esta foi escolhida devido ao tamanho reduzido do equipamento e aos dados experimentais de velocidade e fração volumétrica de sólidos que o artigo continha. A partir dela foi construída a geometria do leito fluidizado no *software* ANSYS ICEM CFD como mostra a Figura 8.

O leito fluidizado possui as seguintes características: diâmetro interno de 0,032 m; altura de 1,0 m. Para realizar os cálculos, o escoamento de ar foi considerado à temperatura e pressão ambientes, para três velocidades de gás: 0,36, 0,71 e 1,42 m/s, e uma altura inicial de leito de 0,05 m com uma fração de sólidos de 0,63.

40



Figura 8. Geometria do leito fluidizado de Samuelsberg et. al. (1996).

## 6.2 ESTRUTURAS A SEREM ESTUDADAS - MESO-ESCALAS – NA Fluidodinâmica

O estudo da dinâmica do escoamento gás- sólido em *riser*, tem mostrado a formação de duas regiões características, uma região densa (*annulus*) e outra diluída (*core*). A explicação é que os sólidos formam *clusters* que se comportam como partículas grandes. As primeiras pesquisas neste assunto foram desenvolvidas no *City College* de Nova York (WEINSTEIN, *et. al.*, 1986) em Bradford, na Inglaterra (GELDART E RHODES, 1986), a *Institute of Gastechnology* (IGT) de Chicago (BADER, *et. al.*, 1988), na França (GALTIER, *et. al.*, 1989).

As conclusões mostraram que existe não-uniformidade radial e que o escoamento pode ser caracterizado como de tipo *core-annulus*, com partículas descendo pelas paredes na forma de *strands* ou *clusters*. A Figura 9 mostra um perfil de velocidade ideal, proposto por Miller e Gidaspow (1992). Os sólidos são transportados para cima no centro do *riser* (*core*) e nas paredes

descem (*annulus*); ficando o centro diluído. Para que as partículas possam ser transportadas para cima do leito, a queda de pressão axial deve ser maior que o peso da região diluída. Nas paredes, existe uma região densa de espessura anular. O peso deste anel deve ser inferior à queda de pressão axial. Por isso, nesta região anular os sólidos descem lentamente. O *annulus* é geralmente mais largo na parte inferior do *riser* do que próximo ao topo.



Figura 9 Perfil de velocidade de sólidos de partículas de FCC com diâmetro de 75µm. Adotado de (Miller e Gidaspow, 1992)

Estruturas coerentes de meso-escala no escoamento multifásicos, particularmente aquelas que envolvem movimento de turbilhões, podem ser preditas apenas por meio de simulações transientes e tridimensionais. Calcula-se que uma simulação tridimensional de escoamento de duas fases usando um milhão de nós, envolve a solução de mais de nove milhões de equações não lineares em cada passo de tempo. O problema torna-se ainda maior quando são incluídos os balanços de energia e balanços de cada espécie (SUNDARESAN, 2000). A simulação de meso-escalas em escoamentos de duas fases por convenção é similar à simulação de grandes escalas de um escoamento turbulento monofásico, onde os efeitos das escalas não resolvidas são explicadas

por modelos de sub-malha (FOX, 2003). As macroescalas confundem-se com as dimensões do reator, geralmente a dimensão radial, com dimensão da ordem de centímetros para metro. A meso-escala esta localizada na região onde se encontram os *clusters* e *strands*, com dimensões típicas variando da ordem de milímetros para centímetros. A microescala corresponde às dimensões de uma partícula de uma ordem de grandeza de micra (Figura 10).



Figura 10. Diagrama esquemático do reator FCC (esquerda para a direita): equipamento experimental, domínio discretizado (macro-escalas), volume diferencial contendo as meso-escalas e micro-escalas. Adaptado de Agrawal (2000).

Para o caso de um sistema bifásico, é recomendável realizar um refino uniforme em todo o domínio de controle, já que a interação das duas fases forma diversas estruturas turbulentas (redemoinhos) com diferentes ordens de grandeza (AGRAWAL 2000). Uma malha com espaçamento não uniforme fornece uma descrição incompleta da malha e da resolução da turbulência e instabilidade numérica. Deve-se gerar uma malha com um tamanho de refino que seja proporcional (localmente) à escala de comprimento da turbulência, η (POPE 2004).

A Simulação de Grandes Escalas foi inicialmente aplicada aos escoamentos gasosos sobre superfícies sólidas (modelos atmosféricos).

Nestas circunstâncias os redemoinhos maiores estão presentes longe da superfície sólida, no entanto os redemoinhos menores são mais visíveis próximos à superfície. Por esta razão tem sido recomendado realizar um refino da malha próximo à parede para conseguir capturar estas estruturas menores. Uma malha não estruturada, com espaçamento de malha não uniforme seria normalmente utilizada como é apresentada na Figura 11.

Em escoamentos turbulentos, a máxima escala espacial ou máxima escala de um vórtice é conhecida como escala de comprimento integral, L (macroescala), e é determinada pela dimensão característica do problema em questão. A dissipação viscosa da energia contida em um vórtice aumenta quando o tamanho do vórtice decresce. A menor dimensão de um vórtice em um escoamento turbulento é chamada de escala de comprimento de Kolmogorov,  $\eta$ , e a escala de tempo associada com este vórtice é chamada de escala de tempo de Kolmogorov,  $\tau$ . Para obter as expressões das escalas de Kolmogorov se realiza uma análise dimensional assim, podem-se formar escalas de comprimento, tempo e velocidade características do movimento associado com as pequenas escalas, que são espresas por:

Escala de comprimento:

$$\eta = \left(\frac{v^3}{\varepsilon}\right)^{\frac{1}{4}} \tag{97}$$

Escala de tempo:

$$\tau = \left(\frac{\nu}{\varepsilon}\right)^{\frac{1}{2}} \tag{98}$$



Figura 11 Escoamento de fumaça saindo de uma chaminé ao ambiente (De esquerda para direita): Foto do escoamento; Discretização do domínio de controle; Contraste entre o domínio e a discretização.

Escala de velocidade:

$$\mathcal{G} = \left(\nu \varepsilon\right)^{\frac{1}{4}} \tag{99}$$

Em que v é a viscosidade cinemática turbulenta, e  $\varepsilon$  é a taxa de dissipação da energia cinética turbulenta. O valor do número de Reynolds nas microescalas é igual à unidade ( Re =  $\frac{9\eta}{v}$ ). Com base nestes conceitos, se a taxa de dissipação viscosa  $\varepsilon$  puder ser relacionada com as escalas de comprimento e velocidade da turbulência de larga escala, uma melhor compreensão das diferenças entre os aspectos macro e micro da turbulência pode ser formada. Para escoamentos completamente desenvolvidos, a taxa de dissipação viscosa (nas pequenas escalas) é igual à taxa na qual a energia, por unidade de massa, é suprida aos grandes vórtices pelo escoamento médio (grandes escalas), a qual e expressa por (U<sup>2</sup>/t), em que t = L/U. Assim pode-se escrever:

$$\varepsilon \approx \frac{U^2}{t} = \frac{U^3}{L} \tag{100}$$

A Equação anterior mostra que a dissipação viscosa pode ser expressa em função de grandezas características do escoamento médio. A substituição desta Equação nas escalas de Kolmogorov permite a obtenção das relações entre as pequenas e grandes escalas da turbulência da seguinte forma:

$$\eta = \left(\frac{\nu^3}{\varepsilon}\right)^{\frac{1}{4}} = \left(\frac{\nu^3 L}{U^3}\right)^{\frac{1}{4}} = \frac{L}{\operatorname{Re}^{-\frac{3}{4}}} \implies \frac{\eta}{L} = \operatorname{Re}^{-\frac{3}{4}}$$
(101)  
$$\tau = \left(\frac{\nu}{\varepsilon}\right)^{\frac{1}{2}} = \left(\frac{\nu L}{U^3}\right)^{\frac{1}{2}} = \frac{t}{\operatorname{Re}^{\frac{1}{2}}} \implies \frac{\tau}{t} = \operatorname{Re}^{-\frac{1}{2}}$$
(102)
$$\mathcal{G} = \left(\nu\varepsilon\right)^{\frac{1}{4}} = \left(\frac{\nu U^3}{L}\right)^{\frac{1}{4}} = \frac{U}{\operatorname{Re}^{-\frac{1}{4}}} \Longrightarrow \qquad \frac{\mathcal{G}}{U} = \operatorname{Re}^{-\frac{1}{4}}$$
(103)

A partir das dimensões do domínio a analisar (*riser*) é possível estimar os valores das dimensões das menores escalas de turbulência. Observa-se que as escalas de comprimento, tempo e velocidade dos menores vórtices da turbulência são muito menores que aquelas dos grandes vórtices e, principalmente, esta diferença é tão maior quanto maior for o número de Reynolds do escoamento médio. Neste ponto é necessário comparar o comprimento das menores escalas com o diâmetro das partículas. Se uma partícula tem dimensão menor que as menores escalas de Kolmogorov, ou seja, a partícula tem dimensão característica menor que as escalas dissipativas, esta partícula sofre apenas efeitos difusivos. Quando esta partícula encontra um vórtice, a tendência será seguir o caminho do vórtice e tendem a formar aglomerados. (EATON E FESSLER, 1994; YANG E LEI, 1998; FESSLER E EATON, 1999; AHMED E ELGHOBASHI, 2000). Para determinar um tamanho de malha (*dx*) adequado, é preciso que esta seja proporcional ao tamanho da partícula, na ordem de 10 a 80 diâmetros de partícula (Figura 12), já que os *clusters* presentes no escoamento gás-sólido possuem em média estes diâmetros característicos (AGRAWAL *et. al.* 2001, VAN WACHEM, 2000, AHMED E ELGHOBASHI 2000).

Esta noção tem uma importância fundamental na definição do refino da malha computacional, pois a malha deve ter dimensões tais que não violem a condição de continuidade, ou seja, a malha computacional não pode ser da mesma ordem de grandeza do diâmetro de uma partícula, pois as equações médias locais não estão escritas para captar as variações detalhadas decorrentes da presença de uma única partícula, e sim de um conjunto de partículas. Por esta circunstância só é possível descrever o comportamento das meso-escalas, *cluster* e *strands* na fluidodinâmica dos leitos fluidizados aplicando Simulação de Grandes Escalas (LES). Uma

apropriada precisão numérica tem um preço computacional elevado, com os métodos numéricos usualmente empregados e ao reduzir para a metade o espaçamento da malha, aumenta o custo computacional em um fator de  $2^4 = 16$ . Para o LES o custo computacional com um espaçamento fixo (malha uniforme), pode-se considerar o valor ideal  $\eta$ . Um valor elevado na relação  $\eta/dx$  corresponde a uma excelente precisão numérica, enquanto um menor valor a solução resolve uma maior gama de movimentos turbulentos, mas com menos precisão numérica (POPE 2004).

O conjunto de equações do modelo LES foi resolvido numericamente utilizando um método de volumes finitos, o método de diferenças centrais para o esquema de advecção, o esquema de interpolação aplicado, foi o método Backward Euler de segunda ordem e com critério de convergência: RMS (*Root Mean Square*) inferior a 1x10<sup>-5</sup>. A estabilidade numérica foi monitorada a cada passo de tempo através do cálculo do número de Courant. A condição do número de Courant (CFL) é uma condição de convergência das equações diferenciais, solucionadas mediante certos algoritmos (não se deve confundir com estabilidade numérica). A representação matemática da condição do número de Courant está dada por:

$$CFL = \frac{U}{\frac{\min(\Delta x, \Delta y, \Delta z)}{\Delta t}} < 1$$
(104)



Figura 12. Algoritmo para determinar o tamanho da Malha

# 7 RESULTADOS

Neste capítulo serão apresentados os resultados para os casos de leito fluidizado em escala de laboratório e o caso de craqueamento catalítico em um reator industrial. Para o caso do leito fluidizado foi implementado o LES Smagorinsky e para o caso do *riser* com craqueamento catalítico foi implementado LES Smagorinsky, LES Dinâmico, LES WALE, SAS e DES. O estudo de casos é mostrado no Fluxograma abaixo.



## 7.1 RESULTADOS DA FLUIDODINÂMICA (SAMUELSBERG ET. AL. 1996)

Todas as simulações apresentadas neste Capítulo possuem as seguintes características

- ✓ Passo de tempo de  $10^{-3}$  s,
- ✓ Critério de convergência RMS (*Root Mean Square*) de 10<sup>-4</sup> valor sugerido para grande parte das simulações, segundo manual do CFX (2005).

- Tempo real simulado de 15 s para o caso a frio (sem reação química) e 20 s para o caso de craqueamento catalítico.
- ✓ Esquema de interpolação espacial *High Resolution* e temporal Euler de segunda ordem
- ✓ Número máximo de cinco iterações por passo de tempo
- ✓ Software utilizado ANSYS CFX<sup>®</sup>.

#### Cálculos Prévios para o caso Samuelsberg et. al. (1996).

Determinou-se a relação das escalas de turbulência utilizando propriedades e dimensões das maiores escalas, as quais são dadas pela geometria do *riser*, como se mostra a seguir:

Diâmetro do *Riser*  $L_1 = 0,032$  m,

Velocidade superficial do ar  $U_1$ = 1,42 m/s,

Diâmetro de partícula (dp) 60  $\mu$ m,  $\rho_p$ =1600 Kg/m<sup>3</sup>,

 $\rho_{ar}$ =1,225 Kg/m<sup>3</sup>,  $\mu_{ar}$ =1,789x10<sup>-5</sup> Kg/m.s

$$\eta = L \operatorname{Re}_{1}^{-\frac{3}{4}} = 0,032m \times (2629)^{-\frac{3}{4}} = 8,72 \times 10^{-5} m \cong 100 \,\mu m$$

$$CFL = \frac{U}{\frac{\min(\Delta x, \Delta y, \Delta z)}{\Delta t}} = \frac{1 \text{ m/s}}{0,001 \text{ m}} \Delta t = 1000 \Delta t \le 1$$
$$\Delta t = \frac{CFL}{1000}$$

$$\tau = t \operatorname{Re}^{-\frac{3}{4}} = 0,001 \times (2629)^{-\frac{3}{4}} = 2,7 \times 10^{-6} \mathrm{s}$$

O tamanho do passo de tempo ( $\Delta t$ ) tem que ser menor ou igual a 0,001 para garantir a

condição do Número de Courant. Com base no tamanho relativo da menor escala, determinou-se os diferentes tamanhos da malha. Optou-se por uma distribuição uniforme e similar nas três dimensões. Como se trata de uma geometria cilíndrica foi preciso "manipular" o *O-grid*, para garantir, que os volumes fossem próximos a uma forma cúbica, (Figura 13)



Figura 13. Distribuição de blocos e localização do O-grid (Aproximação para uma distribuição de cubos).

#### Estudo de casos

Um reator de escala de laboratório (Samuelsberg 1996) de 1 m de altura e diâmetro interno de 0,032 m, foi utilizado para a comparação dos dados experimentais para três velocidades diferentes com um leito inicial de partículas de 5 cm. Utilizou-se nas simulações de 4 a 8 processadores Intel Xeon com 2.93 GHz e 16 núcleos HT. As condições de contorno e iniciais são apresentadas na Tabela 5 e na Tabela 6, observa-se que a diferença entre as duas tabelas está na condição *Free slip* e *No slip* para a partícula na parede.

Tabela 5 Condições de contorno do CASO 1				
Entrada principal	Velocidade do gás= 0,36; 0,71; 1,42 m/s			
r in r i r i	Escoamento mássico do particulado igual ao da Saída			
Saída	Opening = pressão atmosférica			
Parede	Sólido= <i>Free Slip</i>			
	Gás= No Slip			
Altura inicial	Altura do leito = $0,05 \text{ m}$			
Catalizador	60 μm; 1600 kg/m <sup>3</sup>			

Tabela 6 Condições de contorno do CASO 2				
Entrada principalVelocidade do gás= 0,36; 0,71; 1,42 m/sEscoamento mássico do particulado igual ao da Saída				
Saída	Opening = pressão atmosférica			
Parede	Sólido= <i>No Slip</i> Gás= <i>No Slip</i>			
Altura inicial	Altura do leito = $0,05 \text{ m}$			
Catalizador	60 μm; 1600 kg/m <sup>3</sup>			

Além da malha descrita, foram feitos testes com uma malha de aproximadamente 500.000 elementos, com igual distribuição de blocos, obtendo-se resultados bem similares (não apresentados) com os da malha de 100.000 volumes. As vistas das diferentes malhas são mostradas na Figura 14.

	Volumes	dx/dp	dx/dp η/dx Determinante		Ângulo
Malha I	100000	15	~0,05	> 0,5	> 50°
Malha II	500000	10	~0,08	> 0,5	> 50°

Tabela 7 Descrição da distribuição de volumes nas malhas

Cálculos numéricos realizados por Vreman *et. al.* (1997) e Moin *et. al.* (2003) mostraram que os valores requeridos para obter uma solução numérica precisa, era uma relação  $\eta/dx \le 0.25$ 

para o esquema espacial de segunda ordem e  $\eta/dx < 0.5$  para o esquema de sexta ordem. Os valores de  $\eta/dx$  apresentados na Tabela 7 estão dentro da margem recomendada na literatura (VREMAN *et. al.* 1997, AGRAWAL *et. al.* 2001, VAN WACHEM, 2000, AHMED E ELGHOBASHI 2000, MOIN *et. al.* 2003).

Nesta seção, são apresentados os resultados utilizando a malha computacional de resolução 0,05 de  $\eta$ /dx (Malha I), geometria cilíndrica tridimensional, como apresentado na Figura 14, com 100000 volumes. O diâmetro de partícula utilizado nas simulações é de 60 µm, a densidade utilizada nas simulações foi de 1600 kg/m3, para as três velocidades superficiais do gás. Inicialmente a coluna possui uma altura inicial de leito e fração de partículas de 0,05 m e 0,63, respectivamente. O passo de tempo utilizado foi de 1x10<sup>-3</sup> segundos.



Figura 14 Vista lateral da estrutura das malhas descritas na Tabela 7

A continuação se realizara um estudo comparativo das médias temporais azimutais com as

médias temporais e propriedades instantâneas em uma linha traçada nas diferentes alturas do *riser*, como esquematizado na Figura 15, lembrando que os dados experimentais foram tomados nestas alturas (Samuelsberg *et. al.* 1996), por este motivo na Figura 15 foram traçados três planos. Foi também estudada a diferença em estimar a média na linha nas alturas estudadas.



Figura 15. Planos XY e linhas traçadas a 0,16 m, 0,32 m e 0,48 m no riser, para o cálculo das médias.

No pós-processamento dos dados, são geradas tabelas numéricas de extensão "\*.cvs", as quais contém as coordenadas espaciais com as respectivas variáveis a analisar. Desta forma é possível desenhar as coordenadas dos planos exportados, tendo em conta que uma das coordenadas é constante (Coordenada de corte y) como é apresentado na Figura 16.



Figura 16. Desenho das coordenadas do plano XZ.

A utilização das médias é uma forma de redução das dimensões do sistema, desta forma se fosse requerido o perfil no volume de controle tridimensional, sería necessário realizar médias em planos normais à direção do escoamento, desta forma, a análise se reduz de três para duas dimensões. No caso da análise de perfis em planos é preciso recorrer ao cálculo de médias em linhas circulares – geometria cilíndrica neste caso –. Estas médias são conhecidas como *médias azimutais*, reduzindo de duas para uma dimensão. No caso de estudos em uma linha, com o cálculo de uma média aritmética é suficiente, reduzindo de uma dimensão para dimensão zero (um ponto).

Para este estudo, requere-se determinar os perfis radiais de velocidade de sólido em diferentes alturas do *riser*, por este motivo é indispensável realizar estudos em planos utilizando médias azimutais. As médias azimutais são calculadas a partir de circunferências concêntricas no espaço, assim cada coordenada (x,y) corresponde a um valor de raio (r) como mostra a Figura 17 e cada raio corresponde a uma variável temporal (u), portanto temos um novo sistema de coordenadas (r,u).



Figura 17. Traço de circunferências concêntricas no plano XZ analisado.

No entanto, no cálculo dos raios é preciso realizar um arredondamento dos raios (r), para fazer com que os pontos das coordenadas que estejam fora de uma circunferência sejam aproximados para esta, já que os nós da malha são distorcidos pelo *O-grid*. A Figura 18 mostra o resultado após o arredondado do raio da Figura 17, o novo sistema de coordenadas esta dado por  $(r_{.u})$ .



Figura 18. Perfis da velocidade de partícula simulada como função do raio adimensional para uma velocidade de 1,42 m s<sup>-1</sup>, no plano XY a uma altura do *riser* de 0.48 m.

A média azimutal será a média dos pontos perpendiculares a cada raio da Figura 18. É possível realizar o perfil desde  $-1 \le r /R \le 1$ . Quando a coordenada  $X \le 0$ , o valor do raio adimensional será negativo e quando  $X \ge 0$ , o valor do raio adimensional será positivo, obtendo-se:



Figura 19. Perfis da velocidade média de partícula simulada como função do raio adimensional para uma velocidade de 1,42 m s<sup>-1</sup>, no plano XY a uma altura do *riser* de 0.48 m.

A seguir é apresentado um algoritmo para o cálculo das médias azimutais

## 7.1.1 Algoritmo da média azimutal

A seguir será apresentada uma metodologia para o calculo das médias, será feito um comparativo entre as médias calculadas em uma linha central do leito com valores médios, valores instantâneos e médias azimutais ou circulares no plano transversal. A Figura 20 mostra esquematicamente o algoritmo para o calculo das médias azimutais. Os valores médios são calculados no CFX após quatro segundos de simulação. A seguir se apresenta a explicação do algoritmo da Figura 20:

I Calcular os raios de todos os pontos

II Arredondar para baixo os raios na quarta casa decimal, aproximando-o de zero, até o múltiplo mais próximo de significância (Função ARREDMULTB do Excel).

O exemplo mostrado na Tabela 8, ilustra com mais detalhe este cálculo, para o caso das coordenadas (-0,01293; 0,16; -0,00939) em que a velocidade da fase particulada é de 0,504 m s<sup>-1</sup>, o raio dimensional arredondado será de -0,998.

Tabela 8. Cálculo do arredondamento do raio para o cálculo da média azimutal.

X [ m ]	Y [ m ]	Z [ m ]	Velocidade fase sólida, m s <sup>-1</sup>	r/R	Raio arredondado inferior até o múltiplo mais próximo
- 0,01293	0,16	- 0,00939	0,504	0,998678867	-0,998

III Calcular a média da variável temporal cujos raios sejam iguais (ri)

IV Determinar o sinal do raio, tomando como base o eixo X, quando X>0 o raio é positivo (ri >0) e vice-versa.

V Extrair os valores das coordenadas do raio (*ri*) e da média da variável para análise.

O cálculo das médias é um fator importante na validação do modelo matemático com dados experimentais. Observa-se na Figura 21 que as médias azimutais descrevem adequadamente o fenômeno físico *core-annulus* e as médias na linha temporal são similares às calculadas com a média azimutal, mas não reproduzem adequadamente o comportamento próximo das paredes. O valor instantâneona linha não é a mais adequada, porque seu comportamento está longe da descrição física como mostrado na Figura 22.



Figura 20. Algoritmo para determinar as coordenadas dos perfis de velocidade



Figura 21. Comparação da média temporal azimutal (--) e valor temporal em uma linha (-×-) traçada no plano (XZ) a diferentes alturas do *riser*, para uma velocidade do gás de 1,42 m s<sup>-1.</sup> • Experimental



Figura 22. Comparação da média temporal (-x-) e valor instantâneo (- $\land$ -) determinadas em uma linha traçada no plano (XZ) a diferentes alturas do *riser*, para uma velocidade do gás de 1,42 m s<sup>-1</sup>

A Figura 23, Figura 27 e Figura 30, mostram os perfis de velocidade de particulado nas três alturas para as velocidades superficiais de sólido de 1,42 m s<sup>-1</sup>; 0,71 m s<sup>-1</sup> e 0,36 m s<sup>-1</sup>. Observa-se que o modelo RANS apresentado por Hodapp (2009) não descreve adequadamente a configuração *core-annulus* presente no *riser*. As simulações que adotaram a condição No Slip foram as que se descreveram com maior detalhe o comportamento da partícula próximo da parede.

A Figura 24 mostra a semelhança existente entre os resultados apresentados por Miller e Gidaspow (1992), nota-se que as regiões de alta e baixa concentração de partículas estão representadas. Próximo às paredes a velocidade é negativa e próxima ao centro é positiva.

Os perfis têm comportamentos idênticos aos perfis de velocidade de partículas de FCC (Figura 9), embora estes experimentos tenham sido realizados com um diâmetro de partícula de 75µm. Este comportamento das partículas sólidas é evidenciado nos campos de vetores da velocidade, normais aos planos transversais para as diferentes alturas estudadas (Figura 26, Figura 28, Figura 29, Figura 31). Observa-se que a magnitude dos campos de velocidades da fase particulada é coerente com os perfis de velocidades da Figura 22, Figura 24, Figura 27 e Figura 30. Existem partículas sólidas que se movimentam em sentido contrário ao escoamento do gás na proximidade da parede.

A configuração *core-annulus* é apresentada também nos campos da média temporal de fração volumétrica da fase sólida no plano transversal, para as três alturas estudadas e para o plano central do leito. Na Figura 25, observam-se altas concentrações de sólidos na região próxima à parede e baixas concentrações no centro, este mesmo comportamento é observado na Figura 27, Figura 28, Figura 29, Figura 31 e Figura 32

Com a implementação do LES para a fase gasosa, foi possível identificar o escoamento

*core-annulus*, característica de leitos fluidizados. Segundo o Huili e Gidaspow (2003), o comportamento *core-annulus* pode aumentar a ineficiência do contato gás-sólido. Acredita-se que o fenômeno *core-annulus* e a difusão radial de partículas para a parede ocorre devido aos gradientes de concentração na fase diluída, formando acúmulos de partículas ou *clusters* próximos das paredes. Assim, o fenômeno de *cluster* prevalece ao longo da linha principal do *core-annulus*. É notável a diferença da condição de contorno na parede para a fase particulada. A utilização da condição de não deslizamento resultou em perfis similares da condição de livre deslizamento, porém a condição de não deslizamento descreveu o fenômeno físico adequadamente próximo da parede, como apresentado nas Figuras 23, 24, 27, 30. As simulações estão de acordo com os experimentos.

As Figura 23, Figura 27 e Figura 30, mostram que a região anular possui a mesma largura para cada altura dada, mas os valores no centro do escoamento superestimaram os dados experimentais, enquanto que na região próxima à parede estes apresentaram maior concordância. As partículas são aceleradas para cima em todas as alturas, esta tendência é confirmada pelos experimentos. Os gradientes de velocidade estão ficando mais íngremes quando se desloca para cima no *riser*. A superestimação das velocidades da partícula pode ser devido ao fato de que forças eletrostáticas presentes nos experimentos não foram incorporadas ao modelo, também por erros causados pelo tipo de técnica experimental que utilizou o autor: *Laser Doppler Anemometry* (LDA).



Figura 23. Perfis de velocidade da fase particulada para velocidade superficial de 1,42 m s-<sup>1</sup>, para as alturas de 0,48 m; 0,32 m e 0,16 m. Caracteres ● Experimental; --- RANS-Hodapp (2009); - ▲ - *No Slip*; -∆- *Free slip* 



Figura 24 Comparação dos perfis obtidos na (Esquerda) simulação Ug = 1,42 ms<sup>-1</sup>(-▲-), dados experimentais (●) com (Direita) perfil esquemático apresentado por Miller e Gidaspow (1992)



Figura 25. Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no Centro do *riser*, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m; 0,16 m (Direita, acima/abaixo). Condição *No Slip* e velocidade superficial de 1,42 m s-1



Figura 26 Campo da média temporal da velocidade da fase sólida normal ao plano ZX nas alturas de 0,16; 0,32 e 0,48 m do *Riser*. ). Condição *No Slip* e velocidade superficial de 1,42 m s-1



Figura 27 Perfis de velocidade da fase particulada para velocidade superficial de 0,71 m s-<sup>1</sup>, para as alturas de 0,48 m; 0,32 m e 0,16 m. Caracteres ● Experimental; --- RANS-Hodapp (2009); - ▲ - *No Slip*; -Δ- *Free slip* 



Figura 28 Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no Centro do *riser*, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m; 0,16 m (Centro, acima/abaixo). Vetores de velocidade da fase sólida (Direita). Condição *No Slip* e velocidade superficial do gasv de 0.71 m s<sup>-1</sup>



Figura 29 Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no Centro do *riser*, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m; 0,16 m (Centro, acima/abaixo). Vetores de velocidade da fase sólida (Direita). Condição *Free slip* e velocidade superficial de 0,71 m s<sup>-1</sup>



Figura 30 Perfis de velocidade da fase particulada para velocidade superficial de 0,36 m s-<sup>1</sup>, para as alturas de 0,48 m; 0,32 m e 0,16 m. Caracteres ● Experimental; --- RANS-Hodapp (2009); - ▲ - *No Slip*; -Δ- *Free slip* 



Figura 31 Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no Centro do *riser*, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m; 0,16 m (Centro, acima/abaixo). Vetores de velocidade da fase sólida (Direita). Condição *No Slip* e velocidade superficial de 0,36 m s<sup>-1</sup>



Figura 32 Perfil axial da média temporal dos campos de fração volumétrica da fase sólida no Centro do *riser*, plano XY (Esquerda). Perfis radiais a diferentes alturas: 0,48 m; 0,32 m; 0,16 m (Centro, acima/abaixo). Vetores de velocidade da fase sólida (Direita). Condição *Free slip* e velocidade superficial de 0,36 m s<sup>-1</sup>

A condição não deslizamento (*No-Slip*) para o sistema gás-sólido foi a que melhor representou o comportamento do sistema próximo à parede. Embora as simulações feitas com a condição livre deslizamento (*Free-Slip*) apresentem comportamento e perfis similares. Não foi observada uma diferença significativa no tempo de simulação das duas condições.

A abordagem LES utilizando geometrias quase uniformes (volumes cúbicos), ajudou no melhoramento do tempo computacional e no refino da malha, obtendo-se malhas de menor tamanho e esforço computacional reduzido. Para o sistema de duas fases não é preciso realizar refino próximo às paredes do leito fluidizado, como foi observado nas simulações. Para quando se realizava uma discretização não uniforme nas simulações realizadas neste trabalho, isto causou instabilidade numérica. É preciso investir o tempo suficiente na projeção da distribuição dos volumes de controle, de maneira que esta seja a mais uniforme na medida do possível.

Aplicando a modelagem LES foi possível encontrar as diferentes regiões características de um leito fluidizado (*core-annulus*). É importante o monitoramento constante da simulação, através de parâmetros como o número de Courant, criando uma função que calcule o valor máximo e valor médio do número de Courant no domínio de solução. O valor médio deve ser menor que a unidade, como apresentado na Figura 33.

É preciso realizar uma análise adequada dos dados através de médias temporais, da seguinte forma: para determinar o perfil em um volume de controle tridimensional é necessário realizar médias em planos normais à direção do escoamento. Para determinar o perfil nos planos bidimensionais (circulares) é preciso realizar médias azimutais, já que estas se aproximam mais ao comportamento físico do sistema.

No caso de escoamento gás-sólido, é imperativo calcular primeiro os valores das subescalas de espaço e tempo a partir das relações entre micro escalas e macro escalas – em todo o domínio de cálculo, e não apenas junto às paredes do equipamento. Desta forma, determinar primeiro qual deve ser o tamanho da malha e qual deve ser o passo de tempo para realizar as simulações, como recomendado por AGRAWAL (2000); AGRAWAL *et. al.* (2001) e GEORG (2005).



Figura 33 Perfis do Número de Courant médio no leito, para as velocidades superficiais de gás 1,42 m s<sup>-1</sup>; 0,71 m s<sup>-1</sup>; 0,36 m s<sup>-1</sup>. Condição *No Slip*.

A Figura 34 apresenta o aspecto das curvas de convergência obtidas na simulação para uma velocidade superficial do gás de 1,42 m s<sup>-1</sup> para um tempo de simulação de 15 s. contemplam as projeções da velocidade em x, y e z calculadas pela técnica de RMS (*Root Mean Square*).

Esta técnica realiza o cálculo da raiz quadrada da soma dos quadrados das diferenças entre o valor numérico obtido em uma iteração dada, com o valor na iteração anterior, durante o processamento de cálculo.



Figura 34 . Perfis do RMS da velocidade: Caso velocidade superficial do gás de 1,42 m s<sup>-1</sup>. Condição *No Slip*.

Este valor é ponderado em função do volume dos elementos que compõe a malha. A ordem de grandeza do RMS varia entre  $10^{-5}$  a  $10^{-2}$ . Apesar dos valores altos de RMS, estes valores são aplicáveis para engenharia, segundo Bardina (1997).

Para diminuir o valor do RMS poderia ser realizado um refinamento da malha, mas como o objetivo do presente trabalho é apresentar uma metodologia para projeção da malha e aplicação da simulação de grandes escalas para um sistema gás-sólido, com reação de craqueamento catalítico com aplicações industriais, os valores são aceitáveis. Na Tabela 9 é apresentado um comparativo das simulações realizadas com RANS e com LES, observa-se que para um passo de tempo igual de 0,001 s e para um tempo de simulação de 15 s, conseguiu-se reduzir o tempo computacional implementando LES com malhas quaseuniformes em uma quarta parte e em quase um terço o número de elementos da malha. Lembrando que não se realizou um refinamento próximo das paredes para o caso de LES.

	Δt (s)	Tempo simulado (s)	Tempo CPU (Dia)	Volumes	Processador	Núcleos/ Memória
RANS- Hodapp (2009)	0,001	15	60	278000	2,4 GHz	6/1GB
Este trabalho	0,001	15	12-18	100000	1,6 GHz	6/4GB

Tabela 9 Resumo das simulações realizadas com RANS e LES

### 7.1.2 Topologia- Identificação de Vórtices

Os escoamentos são geralmente dominados por estruturas de turbilhões, os quais estão relacionados com as estruturas do escoamento em micro, meso e macroescalas (GEORG 2005). Embora a ideia intuitiva de um vórtice seja de fundamental importância na dinâmica dos fluidos, ainda não há consenso sobre a definição geral. Um grande número de métodos para definição e técnicas para identificação de vórtices têm sido propostos na literatura durante as últimas três décadas (VACLAV 2007). Nesta seção será apresentada a abordagem matemática e topológica para identificação das regiões de vórtices, esta faz parte do pós-processamento dos resultados das simulações e não faz parte da modelagem do sistema, por este motivo não foi colocada no Capítulo 0.

Banks e Singer (1995) consideram que um vórtice é formado por pontos com baixa pressão e alta vorticidade. A vorticidade é a circulação por unidade de área em um ponto no

campo de velocidades do fluido, e está diretamente associada com o gradiente do tensor de velocidades. O estudo de regiões de vórtices tem grande importância, já que deve existir uma relação com o comportamento das meso-escalas. Embora não exista unanimidade sobre a descrição da formação de vórtices, acreditou-se que este pode ser um caminho para entender o comportamento e a formação dos *clusters* e *strands*.

Quando um gás escoa simultâneamente com um sólido, este envolve o sólido e por diferenças de massa específica, de velocidade, são produzidos redemoinhos. Um vórtice é um conjunto circular ou em espiral de linhas de corrente. Existem várias definições para vórtice propostas pela comunidade científica em dinâmica de fluidos, embora nenhuma delas seja completamente satisfatória. A dificuldade está na generalidade e aplicabilidade matemática de tais definições. Uma das primeiras definições foi proposto por Lugt (1972, apud. Jiang e Machiraju 2003):

"A vortex is the rotating motion of a multitude of material particles around a common center".

Observa-se que esta definição é muito vaga, não explica com detalhe a natureza física do fenômeno. Para Robinson (1991) um vórtice se define como:

"A vortex exists when instantaneous streamlines mapped onto a plane normal to the vortex core exhibit a roughly circular or spiral pattern, when viewed from a reference frame moving with the center of the vortex core."

Segundo Jiang e Machiraju (2003) esta definição não facilita a implementação matemática para descrever o fenômeno. Alim (2006) aplica técnicas PIV (*Particle Image Velocimetry*) para identificação de vórtices em escoamentos complexos e define o vórtice como "*a noisy low velocity structure*".

Por não existir uma definição universal para descrever os vórtices, são encontrados diversos métodos matemáticos e físicos na literatura para descrever a presença e comportamento dos vórtices no campo do escoamento, alguns destes métodos serão descritos em detalhe neste trabalho.

Para encontrar a relação entre a presença de vórtices e a formação de meso-escalas é preciso realizar um estudo teórico-experimental profundo, para validar os modelos e as hipóteses. Não basta só com uma condição de campo e de escoamento, é indispensável estudar todas as regiões características do escoamento (turbulento, intermediário, laminar).

Existe um número de métodos para descrever a formação de regiões de vórtices, estes são baseados na análise de autovalores locais do tensor gradiente de velocidades. A seguir estão relacionadas as notações e equaçõe para o tensor gradiente de velocidade

$$\underline{D} = \begin{bmatrix} d_{1j} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\partial u}{\partial x} & \frac{\partial u}{\partial y} & \frac{\partial u}{\partial z} \\ \frac{\partial v}{\partial x} & \frac{\partial v}{\partial y} & \frac{\partial v}{\partial z} \\ \frac{\partial w}{\partial x} & \frac{\partial w}{\partial y} & \frac{\partial w}{\partial z} \end{bmatrix}$$
(105)

Os autovalores do gradiente do tensor de velocidades satisfazem

$$\lambda^3 + P\lambda^2 + Q\lambda + R = 0 \tag{106}$$

Em que:

$$P \equiv -tr(\underline{D}) = -\nabla \cdot u = -(d_{11} + d_{22} + d_{33})$$
(107)

$$Q \equiv \frac{1}{2} \left[ P^2 - tr(\underline{DD}) \right] = (d_{22}d_{33} - d_{23}d_{32}) + (d_{11}d_{22} - d_{12}d_{21}) + (d_{33}d_{11} - d_{13}d_{31})$$
(108)

$$R \equiv \frac{1}{3} \left[ -P^3 + 3PQ - tr(\underline{DDD}) \right]$$
  
= d<sub>11</sub>(d<sub>23</sub>d<sub>32</sub> - d<sub>22</sub>d<sub>33</sub>) + d<sub>12</sub>(d<sub>21</sub>d<sub>33</sub> - d<sub>31</sub>d<sub>23</sub>) + d<sub>13</sub>(d<sub>31</sub>d<sub>22</sub> - d<sub>21</sub>d<sub>32</sub>) (109)

81

Por conveniência se define:

$$q \equiv Q - \frac{1}{3}P^2 \tag{110}$$

$$r \equiv R + \frac{2}{27}P^3 - \frac{1}{3}PQ$$
 (111)

E para o caso em que o discriminante é:

$$\Delta \equiv \left(\frac{1}{2}r\right)^2 + \left(\frac{1}{3}q\right)^3 > 0 \tag{112}$$

Esta última é conhecida como o  $\Delta$ -critério para descrever as regiões de vórtices (CHONG e PERRY 1990). Segundo Kolář (2011) o  $\Delta$ -critério é aplicável unicamente para fluidos incompressíveis.

Então o tensor tem um  $\lambda_r$  autovalor real e um par de autovalores complexos conjugados  $\lambda_{cr} \pm i \lambda_{ci}$ . Isto é, o tensor pode ser decomposto como:

$$\begin{bmatrix} d_{ij} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} v_r v_{cr} v_{ci} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_r & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{cr} & \lambda_{ci} \\ 0 & -\lambda_{ci} & \lambda_{cr} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} v_r v_{cr} v_{ci} \end{bmatrix}^{-1}$$
(113)

Definindo-se:

$$\xi_2 = \sqrt{\sqrt{\Delta} - \frac{r}{2}} \tag{114}$$

$$\xi_3 = \sqrt{\sqrt{\Delta} + \frac{r}{2}} \tag{115}$$

Chega-se

$$\lambda_r = \tilde{\lambda}_r - \frac{P}{3} = \xi_2 - \xi_3 - \frac{P}{3}$$
(116)

$$\lambda_{cr} = -\frac{\xi_2 - \xi_3}{2} - \frac{P}{3} \tag{117}$$

82

$$\lambda_{ci} = \frac{\xi_2 + \xi_3}{2} \sqrt{3} \tag{118}$$

A equação anterior é chamada de *Swirling Strength* (Kolář 2007, 2011), e representa a energia do movimento local do turbilhão. As seguintes relações são úteis:

$$\xi_2 \xi_3 = \frac{q}{3} \tag{119}$$

$$\lambda_{ci}^{2} = q + \frac{3}{4}\tilde{\lambda}_{r}^{2} = Q + \frac{3}{4}(\lambda_{r} + P)\left(\lambda_{r} + \frac{P}{3}\right)$$
(120)

$$\Delta = \frac{1}{3}\lambda_{ci}^2 \left(\frac{\lambda_{ci}^2}{3} + \frac{3\tilde{\lambda}_r^2}{4}\right) \tag{121}$$

$$Q = \frac{1}{4} \|\nabla \times \overline{U}\| + 2\left(tr^2(S) - tr(SS)\right)$$
(122)

O autovetor real satisfaz:

$$[D - \lambda_r I]v_r = 0 \tag{123}$$

O cálculo do autovetor pode usar um dos vetores não nulos

$$\begin{bmatrix} d_{12}d_{23} - d_{13}(d_{22} - \lambda_r) \\ d_{13}d_{21} - d_{23}(d_{11} - \lambda_r) \\ (d_{11} - \lambda_r)(d_{22} - \lambda_r) - d_{12}d_{21} \end{bmatrix}$$
(124)

$$\begin{bmatrix} d_{12}(d_{33} - \lambda_r) - d_{32}d_{13} \\ d_{13}d_{31} - (d_{11} - \lambda_r)(d_{33} - \lambda_r) \\ d_{32}(d_{11} - \lambda_r) - d_{31}d_{12} \end{bmatrix}$$
(125)

$$\begin{bmatrix} (d_{22} - \lambda_r)(d_{33} - \lambda_r) - d_{32}d_{23} \\ d_{13}d_{31} - d_{21}(d_{33} - \lambda_r) \\ d_{21}d_{32} - d_{31}(d_{22} - \lambda_r) \end{bmatrix}$$
(126)

As partes reais e imaginárias dos vetores próprios são cálculados:

$$[D - \lambda_{cr}I]v_{cr} = \lambda_{ci}v_{ci}$$
(127)

$$[D - \lambda_{cr}I]v_{ci} = \lambda_{ci}v_{cr}$$
(128)

se:
$$A \equiv DD - 2\lambda_{cr}D + (\lambda_{cr}^2 + \lambda_{ci}^2)I$$
(129)

Portanto  $Av_{cr} = 0$  e  $Av_{ci} = 0$ . Isto é, todas as linhas da matriz A são normais para ambos  $v_{cr}$  e  $v_{ci}$ , desta forma, todos eles são proporcionais a:

$$v_{n} = \frac{v_{cr} \times v_{ci}}{\|v_{cr} \times v_{ci}\|}$$
(130)

Assim, qualquer vetor linha não nulo da matriz A pode ser usado para calcular  $v_n$ . E o autovalor da helicidade está dado por  $He = v_n \cdot \overline{\omega}$ , em que  $\overline{\omega}$  é o vetor vorticidade.

O Q-critério, proposto por Hunt *et. al.* (1988), fundamenta-se no valor do segundo invariante do gradiente de velocidade. O método dos valores próprios do tensor velocidade se baseia no fato de que os vetores de velocidade e de vorticidade são paralelos ao centro dos turbilhões (*vortex core*) e que regiões em que a rotação é predominante, tem-se o fator Q>0, e para vórtices contra-rotativos e regiões em que predominam as taxas de deformação tem-se o fator Q<0 (GEOR 2006). Em outras palavras, o valor positivo de Q indica que a força de rotação é maior que a tensão e, por conseguinte, as isosuperfícies Q podem indicar uma envoltura do vórtice (PINTO-HEREDERO e PÉREZ-ROJAS 2006)

Em S e S<sup>2</sup> +  $\Omega^2$  permite que S  $\equiv \frac{(D+D^T)}{2}$  e  $\Omega \equiv \frac{(D-D^T)}{2}$ 

Portanto  $D = S + \Omega$  e  $S^2 + \Omega^2 = Q$  tem todos os valores próprios ( $\lambda_1 \le \lambda_2 \le \lambda_3$ ). Nas Figura 35, Figura 36 e Figura 37 a segunda invariante do tensor de velocidade corresponde a  $Q = S^2 + \Omega^2$ .

O método proposto por Jeong e Hussain (1995) estabelece que a região de vórtices definida como uma região de fluido ligado com dois valores próprios negativos ( $\lambda_1 \le \lambda_2 \le \lambda_3$ ).com a condição que  $\lambda_2 < 0$ .

Ao utilizar os valores e vetores próprios do tensor gradiente de velocidade D, tem-se:

$$\begin{bmatrix} d_{ij} \end{bmatrix}^2 = \begin{bmatrix} v_r v_{cr} v_{ci} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_r & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{cr}^2 - \lambda_{ci}^2 & 2\lambda_{cr}\lambda_{ci} \\ 0 & -2\lambda_{cr}\lambda_{ci} & \lambda_{cr}^2 - \lambda_{ci}^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} v_r v_{cr} v_{ci} \end{bmatrix}^{-1}$$
(131)

Assim, no caso do segundo autovalor é  $\lambda_2(S^2 + \Omega^2) = \lambda_{cr}^2 - \lambda_{ci}^2$ 

Além disso, é possível expressar o DD como tensor

$$DD = 2\lambda_{cr}D - \left(\lambda_{cr}^2 + \lambda_{ci}^2\right)I + \left[(\lambda_r - \lambda_{cr})^2 + \lambda_{ci}^2\right]v_r v_n^T$$
(132)

Agora, quando olhamos para os autovalores e vetores de S, o mesmo deve se aplicar  $S^2 + \Omega^2$ , temos

$$S = \begin{bmatrix} S_0 & S_3 & S_3 \\ S_3 & S_1 & S_4 \\ S_5 & S_4 & S_2 \end{bmatrix}$$
(133)

A Figura 35 mostra uma comparação das soluções obtidas com o a metodologia LES e o modelo k-ε para uma velocidade da fase gasosa de 1,42 m s<sup>-1</sup>. É claro que a abordagem de Simulação de Grandes Escalas permite a formação de estruturas de turbulência que não são observadas no modelo RANS. Este comportamento também pode ser observado na Figura 36 que corresponde ao comportamento de iso-superfícies para o catalisador.

A aplicação da abordagem LES ajuda na captura e visualização das meso-escalas, como *cluster* e *strands*, as quais estão associadas às estruturas apresentadas nas regiões de núcleo do vórtice (*vortex core*) na Figura 35, Figura 36 e Figura 37. Possivelmente estas estruturas rotativas encontram-se envoltas por porções de aglomerados de partículas. É evidente que em um escoamento gás-sólido em leito, não exista uniformidade da distribuição das partículas, portanto deve haver diferentes estruturas de vórtices presentes no leito, como são apreciadas nas figuras citadas anteriormente. Observou-se que a tensão de cisalhamento é predominante em comparação a vorticidade, também que este diminui ao diminuir a velocidade superficial do gás (Figura 37)...



Figura 35 Comparativo das Isosuperfícies para diferentes valores de  $Q=S^2-\Omega^2$  para a fase gasosa. Velocidade do gás de 1,42 m s-<sup>1</sup>. (Superior) Simulações com LES, (inferior) simulações com *k-\varepsilon*. Mapa de *cores* corresponde a vorticidade do gas. Condição *No Slip* 



Figura 36 Comparativo das Isosuperfícies para diferentes valores de  $Q=S^2-\Omega^2$  para o catalisador Velocidade da fase gasosa de 1,42 m s-<sup>1</sup>. (Superior) Simulações com LES, (inferior) simulações com *k-ɛ*. Mapa de *cores* corresponde a vorticidade do catalisador. Condição *No Slip*.



Figura 37 Comparativo das Isosuperfícies para diferentes valores de  $Q=S^2-\Omega^2$  para a fase gasosa (acima) e para catalisador (inferior). Mapa de *cores* corresponde a vorticidade. Condição *No Slip* 

## 7.2 ESTUDO COMPUTACIONAL DINÂMICA DO CRAQUEAMENTO CATALÍTICO EM REATORES *RISER* DE FCC

Nesta seção serão apresentadas as malhas utilizadas para a simulação do craqueamento catalítico do petróleo em um reator Riser industrial (DEROUIN et. al. 1997; ALI et. al. 1997). Será apresentado um método para estudar e analisar a independência linear das reações de craqueamento catalítico de 4 lump, o método proposto por Reklaitis (1983). Após esta análise, reslizou-se um teste do comportamento da cinética em um modelo unidimensional para o escoamento gás-sólido com reação, com o intuito de verificar a efetividade do modelo cinético, para logo ser aplicado nas simulações tridimensionais com Simulação de Grandes Escalas. Finalmente são analisados e comparados, dois casos apresentados por Lopes et. al. (2011), correspondentes aos resultados de Derouin et. al. (1997) e Ali et. al. (1997). Foi acrescentado um comparativo com as diferentes abordagens propostas para LES: Smagorinsky, WALE (Walladapting local eddy-viscosity) e Dinâmico. Além do DES (Detached eddy simulation) o qual é uma metodologia híbrida entre LES e modelos RANS; complementando com os resultados utilizando o modelo SAS (Scale-Adaptive Simulation), este tem a capacidade de resolver o espectro turbulento em regiões instáveis de fluxo. O modelo SAS se adapta à escala de comprimento automaticamente para as escalas resolvidas do campo de fluxo.

### 7.2.1 Geometria para estudo do Craqueamento Catalítico

A geometria utilizada para o estudo do craqueamento catalítico aplicando a abordagem LES foi apresentada por Lopes *et. al.* (2011). Esta foi escolhida porque os autores realizam um estudo da modelgem e validação de um reator FCC a nível industrial. A geometria foi construída no *software* ANSYS ICEM CFD como mostra a Figura 39.

As dimensões do reator são resumidas na Tabela 10

Tabela 10 Dimensões do reator Riser		
Parâmetro	Riser	Entrada Catalisador
Comprimento (m)	34,2	2
Diâmetro interno (m)	0,8	0,6
Ângulo de inclinação	-	45
Comprimento entre as duas entradas (m)	-	2

1 10 0

Foram construídas duas malhas, uma com 750.000 volumes de controle, com uma ordem de grandeza similar a apresentada por Lopes *et. al.* (2011) e uma segunda malha que contém 220.000 volumes de controle. As duas malhas construídas possuem valores de ângulo mínimo entre as fases superior a 21° e determinante maior que 0.45. Os detalhes das malhas são apresentados na Figura 38.



Figura 38. Detalhes das malha. (acima) Malha de 250 mil volumes; (abaixo) Malha de 750 mil volumes.



Figura 39. Geometria do Reator desenhada

A Figura 39 corresponde à geometria construída neste trabalho, e a Figura 40 mostra a geometria reportada no trabalho de Lopes *et. al.*(2011), ambas as figuras são praticamente idênticas. No caso das malhas, existe uma grande diferença na lei de discretização de volumes de controle, no caso de Lopes *et. al.*(2011) foi aplicada a lei de distribuição bi-geométrica. Este tipo de distribuição realiza refinamento próximo da parede como se observa na Figura 41. Para o caso estudado foi construído obedecendo à lei de distribuição uniforme de nós.



Figura 40. Geometria do Reator construída por Lopes et. al. (2011)



Figura 41. Detalhes das malha. (acima) Malha de 750 mil volumes neste trabalho; (abaixo) Malha de 750 mil volumes construída por Lopes *et. al.*(2011).

## 7.2.2 Independência Linear das Reações Químicas (REKLAITIS, 1983)

Um conjunto de vetores é linearmente independente se não é possível expressar qualquer vetor dado como uma combinação linear dos outros vetores. Em forma de equação, um conjunto de R vetores, cada um com S componentes, que pode representar-se:

$$V = \begin{pmatrix} v_{1r} \\ v_{2r} \\ \vdots \\ v_{SR} \end{pmatrix} \qquad r = 1, 2, \cdots, R$$
(134)

Dado um sistema de reações múltiplas, no qual participam S componentes e R reações, considerando o conjunto de S vetores componentes formado pelos coeficientes estequiométricos associados com cada reação em um vetor separado.

Um sistema de reações é independente se não pode reduzir a um sistema equivalente de menor tamanho. Para demonstrar isto, considera-se um sistema de R reações em S componentes como dependente, e que pode formar um sistema equivalente, eliminando a reação número R.

A velocidade de produção de qualquer componente dado pode obter-se mediante:

$$R_s = \sum_{r=1}^R \sigma_{sr} r_r \qquad s = 1, 2, \cdots, S$$
<sup>(135)</sup>

Como o sistema formado pelas primeiras R-l reações é equivalente ao sistema de reações completo, portanto, deve-se cumprir que:

$$R_{s} = \sum_{r=1}^{R-1} \sigma_{sr} r_{r} \qquad s = 1, 2, \cdots, S$$
(136)

Como as velocidades de reação por componente devem ser iguais temos que:

$$\sum_{r=1}^{R} \sigma_{sr} r_{r} = \sum_{r=1}^{R-1} \sigma_{sr} r_{r} \qquad s = 1, 2, \cdots, S$$
(137)

Esta igualdade se cumpre para qualquer que seja a seleção de *r*, *r*-1,..,*R*; portanto, deve-se também se aplicar para uma seleção de  $r_R \neq 0$ . Temos que:

$$\sigma_{sR} = \frac{1}{r_R} \sum_{r=1}^{R-1} \sigma_{sr} \left( r_r - r_r \right) \qquad s = 1, 2, \cdots, S$$
(138)

Ou seja, os coeficientes estequiométricos da reação número R, podem ser expressos como combinações lineares das R-I reações restantes. Conclui-se que R vetores de coeficientes estequiométricos são linearmente dependentes se as reações são dependentes. Esta afirmação pode ser aplicada em sentido inverso.

Para estabelecer a independência das reações se utiliza o método da matriz linha reduzida à forma escada, que utiliza conceitos da álgebra linear. Neste método se realizam os seguintes passos:

Construção da matriz de reação com os coeficientes estequiométricos das reações químicas que têm lugar. Para este caso temos *lumps* e não componentes. Deve-se realizar um balanço de massa e não de elementos químicos para determinar os coeficientes estequiométricos. As massas molares são tomadas da Tabela 4 (Lopes *et. al.*(2011)).

Ordenam-se os coeficientes de tal forma que em cada fila apareçam os coeficientes de uma dada reação, tomando o sinal (-) para os reagentes e (+) para os produtos.

Em cada coluna aparecem os coeficientes de uma dada espécie em todas as equações estequiométricas.

Para o caso apresentado por Farag *et. al.*(1994) e Lopes *et. al.*(2011) o balanço das reações é apresentado a seguir:

Tabela 11 Balanço de massa para as reações de 4 lump					
	Reações 4 <i>Lump</i>	Balanço de massa			
$r_1$	Gasóleo → Gasolina	Gasóleo → 4 Gasolina			
$r_2$	Gasóleo → Gases Leves	Gasóleo → 8 Gases Leves			
<i>r</i> <sub>3</sub>	Gasóleo → Coque	Gasóleo → Coque			
<i>r</i> <sub>4</sub>	Gasolina $\rightarrow$ Coque	Gasolina $\rightarrow \frac{1}{4}$ Coque			
$r_5$	Gasolina $\rightarrow$ Gases Leves	Gasolina $\rightarrow$ 2 Gases Leves			

Tabela 11 Balanço de massa para as reações de 4 lump

A matriz de coeficientes estequiométricos está dada por:

Em que a ordem crescente das colunas corresponde a gasóleo, gasolina, gases leves e coque, respectivamente, e as reações  $(r_n)$  são as apresentadas na Figura 6 para um sistema de 4 *lump*.

Utilizando o método de eliminação Gauss-Jordan, sem intercâmbio de filas nas operações, chega-se a:

Observa-se que evidentemente as duas reações de craqueamento da gasolina são reações

dependentes, tal como os autores propuseram.

No entanto, para esta Tese se optou por trabalhar com a massa molar de 12 para o coque, conservando os outros valores reportados por Lopes *et. al.*(2011). A nova matriz de coeficientes estequiométricos está dada por:

$$\begin{array}{ccccccc} r_1 \begin{pmatrix} -1 & 4 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 8 & 0 \\ r_3 \\ r_4 \\ r_5 \\ 0 & -1 & 0 & 8.33 \\ 0 & -1 & 2 & 0 \end{array}$$
 (141)

Utilizando o método de eliminação Gauss-Jordan, sem intercâmbio de filas nas operações, chega-se a:

Para este análise se encontrou que a reação  $r_5$  do craqueamento da gasolina para produção de coque, é uma reação dependente no balanço de massa. Por tal motivo esta reação não será considerada nas simulações.

## 7.2.3 Modelo Unidimensional Para testar o modelo cinético

Foi implementado um modelo empírico reportado por Patience *et al.* (1992) para descrever o comportamento e a efetividade da cinética química de 4 *lump*, após a análise de independência linear. Observações experimentais em reatores *riser* indicam que a velocidade intersticial do gás excede a velocidade da partícula (Berruti e Kalogerakis 1989). Esta diferença é

razão entre a velocidade intersticial do gás e a velocidade média das partículas.

$$\psi = \frac{U_g}{\varphi V_p} \tag{143}$$

Para o estudo da fluidodinâmica do reator *riser* neste projeto, utilizou-se a correlação empírica apresentada por Patience *et. al.* (1992).

$$\psi = \frac{U_g}{\varphi V_p} = 1 + \frac{5.6}{Fr} + 0.47 F r_t^{0.47}$$
(144)

Em que o Número de Froude (Fr) e o Número de Froude Terminal (Fr<sub>t</sub>) são dados por :

$$Fr = \frac{U_g}{\sqrt{gD}}$$
(145)

$$Fr_t = \frac{V_t}{\sqrt{gD}} \tag{146}$$

A correlação de Yang (1978) foi utilizada para determinar o fator de atrito e a velocidade terminal ( $V_t$ ) das partículas

$$V_{t} = \sqrt{\left(g - \frac{f_{p}V_{p}^{2}}{2D}\right)\left(\frac{4d_{s}\left(\rho_{s} - \rho_{g}\right)}{3C_{D}\rho_{g}}\right)}$$
(147)  
$$Re_{t} = \frac{d_{s}V_{t}\rho_{g}}{\mu_{g}}$$
(148)

O número de Reynolds da partícula é definido como:

$$\operatorname{Re}_{s} = \frac{d_{s} \left| U_{g} - U_{s} \right| \rho_{g}}{\mu_{g}}$$
(149)

$$f_p = 0.01025 \frac{(1-\varphi)}{\varphi^3} \left( \frac{(1-\varphi) \operatorname{Re}_t}{\operatorname{Re}_s} \right)^{-1.021}$$
(150)

Devido à forma complexa da correlação, requer-se uma solução numérica iterativa para determinar o valor da velocidade terminal. A velocidade média da partícula pode ser calculada por:

$$U_s = \frac{G_s}{\rho_p \left(1 - \varphi\right)}$$

A fração de vazios no leito como função das propriedades do sistema:

$$\varphi = 1 - \frac{Gs\psi}{U_g \rho_p + Gs\psi} \tag{151}$$

As velocidades de reação para o modelo 4-lump estão dadas por:

$$r_1 = \gamma k_1 w_A^2 \tag{152}$$

$$r_2 = \gamma k_{31} w_A^2 \tag{153}$$

$$r_3 = \gamma k_{32} w_A^2 \tag{154}$$

$$r_4 = \gamma k_{21} w_C \tag{155}$$

Balanço de calor

$$\frac{dT}{dZ} = \frac{\rho_p \left(1 - \varphi\right) A \sum_{j=1}^{N_{rxn}} R_j \left(-\Delta H_{rxn_j}\right)}{\sum_{i=1}^{C} M_i C_{p_i}}$$
(156)

Para calcular a temperatura inicial da mistura gás/sólido na entrada do reator, realizou-se um balanço de energia para o misturador-vaporizador do gasóleo líquido, vapor de água e o catalisador, todos ingressando a diferentes temperaturas:

$$T_{o} = \frac{F_{H_{2}O}C_{p_{H_{2}O}}T^{\circ}_{H_{2}O} + F_{cat}C_{p_{cat}}T^{\circ}_{cat} + F_{gasoil}C_{p_{gasoil-rap}}T^{vap}_{gasoil} - F_{gasoil}C_{p_{gasoil-liq}}\left(T^{vap}_{gasoil} - T^{\circ}_{gasoil}\right) - F_{gasoil}\Delta H^{vap}_{gasoil}}{F_{H_{2}O}C_{p_{H_{2}O}} + F_{cat}C_{p_{cat}} + F_{gasoil}C_{p_{gasoil-rap}}}$$
(157)

O modelo foi codificado no software Matlab7<sup>®</sup>. Programaram-se os métodos numéricos de *Runge-Kutta* de quarta ordem de passo adaptativo para resolver equações diferenciais rígidas e o método de *Newton-Raphson* para resolver raízes de equações não-lineares. Na Tabela 12 são apresentados os estudo de caso com as respectivas condições de operação industrial do reator *riser* usadas por Ahari *et. al.* (2008) e as dimensões do reator são as apresentadas na Tabela 10.

Tabela 12 Condições de operação industrial do reator <i>riser</i> , utilizadas para o modelo 1D (Ali e Rohan	1i, 199'	7)
--	----------	----

	Caso 1	Caso 2
Vazão de alimento (kg/s)	19,95	26,9
Qualidade do alimento (API)	22,28	22,18
Catalisador/gasóleo (kg/ kg)	7,2	5,43
Pressão na entrada (kPa)	294	294
Temperatura de entrada (K)	494	494
Temperatura de entrada do catalisador(K)	960	1004
Fração em peso de vapor (%)	7	5
Temperatura do vapor (K)	773	773

Para o caso 1:

Cálculo da velocidade superficial do gás na entrada: calculou-se com a equação do gás ideal tomando como base a vazão e a temperatura do alimento (gasóleo) como reportado na Tabela 12

$$U_{g_o} = \frac{F_{gasoil} RT^{\circ}_{gasoil}}{P_o A} = \frac{\left(\frac{19,95}{333} * 1000\right)(8,314)(494)}{(294000)(\pi 0,8^2/4)} = 1,665 \text{ m/s}$$
(158)

Para o cálculo da densidade de fluxo mássico de sólido, utilizou-se a relação catalisador/gasóleo e as dimensões do reator:

$$G_s = \frac{\dot{m}_s}{A} = \frac{(19,95)(7,2)}{(\pi 0,8^2/4)} = 285,763 \text{ kg/m}^2\text{s}$$
(159)

Cálculo das frações molares de todos os componentes na entrada: calculou-se supondo que o gás alimentado (óleo diesel+ vapor de água) tem uma porcentagem de vapor igual ao reportado na Tabela 12, usando os pesos moleculares dos componentes da Tabela 4

$$Y_{i} = \frac{\frac{W_{i}}{MW_{i}}}{\sum_{i=1}^{2} \frac{W_{i}}{MW_{i}}}, \quad Y_{H_{2}O} = \frac{\frac{0,07}{18}}{\frac{0,07}{18} + \frac{0.93}{333}} = 0.5820$$
(160)

Na Tabela 13 são apresentadas as condições iniciais calculadas para o reator (Ahari *et. al.*, 2008).

	Caso 1	Caso 2
Vapor de Água alimentado (% molar)	58,2	51,85
Velocidade superficial do gás (m / s)	1,665	2,145
Densidade de fluxo mássico (kg / m2s)	285,763	323,644

Tabela 13 Condições iniciais calculadas para o estudo.

A Tabela 14 mostra um comparativo dos dados da planta do processo FCC apresentados por Ali e Rohani, (1997) com os dados das simulações do reator *riser*. O rendimento (% mássico) é definido como a vazão mássica de gasolina (ou coque) na saída do reator, dividido pela vazão mássica total de gasóleo que reagiu (FOGLER 2001). Na são apresentadas as condições iniciais calculadas para o reator (AHARI et. al., 2008).

		Rendimento de	Rendimento de	Temperatura
		gasolina	coque	de saída (K)
		(% en peso)	(% en peso)	
Caso1	Planta riser	43,88	5.83	795
	riser calculado	40,29	5,71	788
Caso 2	Planta riser	42,79	5,43	805
	riser calculado	42,01	5,61	784,

Tabela 14 Comparação dos dados do processo FCC reportados por Ali e Rohani, (1997) com os dados das simulações 1D do reator *riser* 

As Figura 42 e Figura 43 mostram a comparação do modelo para o reator *riser* com os dados de apresentados na Tabel 14



Figura 42 Perfil de fração mássica do craqueamento catalítico no reator riser para o primeiro caso.



Figura 43 Perfil de fração mássica do craqueamento catalítico no reator *riser* para o segundo caso

# 7.2.4 Resultados da modelagem tridimensional do craqueamento catalítico fluido em reatores industriais riser

A fim de comparar os resultados tridimensionais simulados com um conjunto de ensaios experimentais e comerciais, dois casos com diferentes condições de operação foram analisados mostrados na Tabela 15. Estes casos foram apresentados por Lopes *et. al.* (2011) e os dados da planta foram reportados por Derouin *et. al.* (1997) e Ali *et. al.* (1997). As propriedades físicas das espécies reativas e do catalisador foram tomadas a partir do trabalho de Martignoni e Lasa de (2001) e Landeghem *et al.* (1996), são mostradas na Tabela 4 correspondentes aos utilizados por Lopes et. al. (2011).

Após o estudo da independência linear das reações de 4 lump, encontrou-se que, do ponto de vista de balanço de massa a aproximação de Farag *et al.* (1994) é correta, por tal motivo foi aplicada esta aproximação no modelo cinético das reações de craqueamento catalítico para o

reator riser industrial.

Tabela 15 Condições	Tabela 15 Condições de operação			
Parâmetro	Caso I	Caso II		
Gasóleo alimentado (kg m <sup>-2</sup> s-1)	20	40		
Catalisador / Gasóleo (kgcat/kgga)	7	7		
Vapor d'agua total (% em massa)	3	3		
Temperatura de alimentação da carga (K)	600	500		
Temperatura de entrada do catalisador (K)	900	900		

#### Estudo de caso I

Este caso corresponde à validação do modelo com os dados reportados por Derouin *et. al.* (1997) e as condições de operação são apresentadas na Tabela 13. As propriedades físicas das espécies reativas e o catalisador foram tomadas a partir do trabalho de Martignoni e Lasa de (2001) e Landeghem *et al.* (1996) e estão listadas na Tabela 4. As malhas utilizadas são apresentadas na seção 7.2.1.

Foi utilizado o software comercial ANSYS CFX 12.0 e os modelos matemáticos utilizados estão apresentados no Capítulo 3, e considerou-se que a desativação do catalisador está em função da deposição de coque na sua superfície. Para as simulações transientes foi utilizado um passo de tempo de  $10^{-3}$  s; para o critério de convergência RMS foi utilizado um valor de  $10^{-4}$ . Empregaram-se 8 partições em paralelo usando processadores Intel Xeon de 3GHz com 2 núcleos. Foi requerida em média uma semana para realizar o cálculo de cada simulação, para um tempo real de 20 s, garantindo que o sistema esteja nas condições de estado estável.

A seguir é apresentada a validação dos modelos para as diferentes abordagens de simulação de grandes escalas com os dados experimentais. A Figura 44 apresenta os resultados da simulação do reator industrial ao longo da altura, no centro do reator aplicando a metodologia

LES Smagorinsky e apresenta um comparativo dos resultados das duas malhas estudadas para o rendimento da gasolina; observa-se que na Figura 44 e **Figura** 45, todas as simulações atingem um estado estável. Encontrou-se que não existe uma diferença significativa entre as três metodologias de LES estudadas, todas descrevem adequadamente os dados experimentais com certa subestimação logo na saída do reator. O comportamento apresentado na simulação de Lopes et. al. (2011), deve-se a que o sistema ainda não se encontrava em um estado estável, no entanto as predições foram precisas, Segundo Lopes et. al. (2011) as taxas das reações catalíticas foram tratadas como sendo linearmente dependentes da concentração de catalisador no sistema. Como na quela região de entrada há uma concentração de sólidos muito elevados (bem maior do que no resto do reator), uma alta taxa de reação é observada localmente nesta região (Pico).

Com respeito à independência da malha, existem diversos discussões sobre este tema (IBSEN 2012; BOSE *et al.* 2010, KIM *et al.* 2004; AGRAWRAL *et al.* 2001), é difícil afirmar que num sistema multifásico se consiga uma independência, mesmo porque o filtro no CFX para o LES é o tamanho da malha. Neste sentido, pode-se dizer simplesmente que ambas as malhas tiveram resultados aproximados, no entanto isto não garante 100% uma independência da malha no modelo.

Para o caso do comportamento do SST-SAS e do DES na predição dos fenômenos, observa-se que as simulações sobrestimaram os valores de rendimento da gasolina, como pode ser observado na **Figura** 46; no entanto como não se sabe o intervalo de confiança dos dados reportados, não é possível afirmar qual ou quais das simulações descrevem com maior exatidão os dados da planta. Só é possível afirmar que todos apresentam um comportamento similar com os dados da planta. Para o caso da conversão na Figura 47, não existe diferença tão aparente ou significativa entre as simulações LES, SAS e DES.



Figura 44 Resultados da simulação do reator industrial ao longo da altura, no centro do reator com LES Smagorinsky. (abaixo). Perfis no tempo do rendimento da gasolina; (centro) Comparativo entre as duas malhas estudadas para o rendimento da gasolina, (acima) Contraste das simulações de conversão da gasolina para ambas as malhas e a simulação de Lopes et. al. (2011).

Figura 45 Resultados da simulação do reator industrial ao longo da altura, no centro do reator e comparativo com a simulação LES com malha de 250 mil elementos (esquerda para direita) Perfis no tempo conversão da gasolina e rendimento da gasolina para ambas as malhas. (acima para abaixo).LES Dinâmico e LES WALE respectivamente.







Figura 46 Perfis do rendimento da gasolina. Simulação do reator industrial ao longo da altura, no centro do reator. Comparativo entre as metodologias LES Smagorinsky, SST-SAS e DES para a malha de 250 mil volumes.



Figura 47 Perfis da conversão da gasolina. Simulação do reator industrial ao longo da altura, no centro do reator. Comparativo entre as metodologias LES Smagorinsky, SST-SAS e DES para a malha de 250 mil volumes.

A Figura 48 e Figura 49 mostram os campos da fração mássica da gasolina de gasolina e fração volumétrica instantâneos do catalisador no plano ZX, respectivamente para as diversas metodologias SST (*Shear Stress Transport*) estudadas. O modelo RANS (k- $\varepsilon$ ) mostrou deficiência na predição de meso-estruturas (*cluster, strands*) como é

apresentado na Figura 50. Esta limitação do modelo RANS em descrever as meso estruturas de turbilhões também foi encontrada na Seção 7.1.2, especificamente na Figura 36 para o caso fluidodinâmico do leito fluidizado a frio, no nível do laboratório. As regiões em que, a fração volumétrica de catalisador apresenta valores representativos a de fração mássica de gasolina menor, se devem à existência de *clusters* ou acúmulos de partículas de catalisador, dificultando o contato íntimo com o gás reagente. Um comportamento fluidodinâmico uniforme de catalisador é característico nos reatores tipo Downer, em que o sólido desce em contra corrente, mas de forma mais uniforme, com tempos de residência curto, evitando reações secundárias ou sobre craqueamento, já que a reação do craqueamento do petróleo a gasolina é da ordem de um segundo, a uniformidade do catalisador garante um íntimo contato com o gás reagente, aumentando o rendimento da gasolina. Também é importante ressaltar que mesmo que a aproximação de Farag et al. (1994) não possua reações de sobre craqueamento, a recirculação excessiva de sólidos empobrece a produção da gasolina, este fenômeno de circulação pode ser apreciado na Figura 51, a qual mostra as linhas de corrente para o escoamento do catalisador ao longo do reator. Deve notar-se, que as simulações da Figura 51 estão mostrando os mesmos pontos de início das linhas de corrente, ou seja, pode-se afirmar que cada metodologia SST descreve diferentemente o escoamento, mas todos mostram que esta região é crítica com respeito ao craqueamento do petróleo para a gasolina, como se mencionou anteriormente. Na Figura 50, observou-se que o DES apresentou menos estruturas de vórtices em comparação do LES e do SST-SAS, também foi observado que, uma região com maior taxa de deformação devido ao atrito se encontra próxima da interseção entre as duas entradas e na saída do reator. Nestas regiões a concentração de catalisador é alta como mostrado na Figura 48



Figura 48 Campos da fração mássica da gasolina instantâneos, no reator industrial, plano ZX no centro do reator. Comparativo entre: (esquerda para direita ) SST-RANS, LES Smagorinsky, LES Dinâmico, LES WALE, SST-SAS e DES para a malha de 250 mil volumes.



Figura 49 Campos da fração volumétrica de Catalisador no reator industrial no plano ZX no centro do reator. Comparativo entre: (esquerda para direita ) SST-RANS, LES Smagorinsky, LES Dinâmico, LES WALE, SST-SAS e DES para a malha de 250 mil volumes.



Figura 50 Comparativo das Isosuperfícies para diferentes valores de  $Q=S^2-\Omega^2$ . (Acima) Modelo RANS e Simulações com LES, (abaixo) simulações DES e SAS. Mapa de *cores* corresponde a taxa de deformação da fase gasosa reativa devida ao cisalhamento. Condição *No Slip* 



Figura 51 Diagrama de linhas de corrente para o escoamento do catalisador ao longo do reator (acima) e na entrada na interseção entre as duas entradas do reator (abaixo). Mapa de *cores* corresponde a velocidade do catalisador em m s<sup>-1</sup> (Esquerda para direita) SST-RANS, LES Smagorinsky e DES

A Tabela 16 apresenta um comparativo das simulações realizadas com RANS reportadas por Lopes *et. al.* (2001) e com LES, observa-se que para o mesmo passo de tempo de 0,001 s e para o dobro de tempo de simulação (20 s), conseguiu-se reduzir o tempo computacional implementando LES com malhas quase-uniformes em uma quarta parte e em um terço o número de elementos da malha.

	Δt (s)	Tempo simulado (s)	Tempo CPU (Día)	Volumes	Núcleos/ Partes
RANS Lopes et. al. (2011)	0,001	10	10	750000	2/9
Este trabalho	0,001	20	5-6	250000	2/8

Tabela 16 Resumo das simulações realizadas com RANS e LES

Para mostrar o aspecto das curvas de convergência obtidas nas simulações, são mostradas como exemplo as correspondentes ao RMS das componentes da velocidade da mistura gasosa reativa para LES Smagorinsky e DES. A ordem de grandeza do RMS varia entre 10<sup>-5</sup> a 10<sup>-3</sup>. Apesar dos valores altos de RMS, estes valores são aplicáveis para engenharia,, segundo Shaw (1992) e Bardina (1997). Lembrando que valores como estes são típicos.



Figura 52b. Perfis do RMS da velocidade: para as simulações LES Smagorinsky e DES



Figura 52b. Perfis do RMS da velocidade: para as simulações LES Smagorinsky e DES

### Estudo de caso II

Este caso corresponde à validação do modelo com os dados reportados por Ali e Rohani (1997), as condições de operação são apresentadas na Tabela 15. As propriedades físicas das espécies reativas e o catalisador foram tomadas a partir do trabalho de Martignoni e Lasa de (2001) e Landeghem *et al.* (1996) e estão listadas na Tabela 4. As malhas utilizadas são as apresentadas na seção 7.2.1.

A Tabela 17 mostra um comparativo dos dados planta do processo FCC apresentados por Ali e Rohani, (1997) e Ahari *et. al.* (2008) com os dados das simulações do reator *riser*. O rendimento (% mássico) define-se como a vazão mássica de gasolina (ou coque) na saída do reator, dividido a vazão mássica total de gasóleo que reagiu (Fogler 2001). Encontrou-se que todas as simulações se aproximam ao valor real (planta), no entanto com valores inferiores às simulações de Lopes *et. al.* (2011), isto pode ser devido a que neste trabalho foi considerado *overcracking* da gasolina.

A metodologia *Detached Eddy Simulation* (DES) proposta por Spalart *et. al.* (1997), trata-se de um método conceitual de modelagem híbrida e não está ligado a nenhum modelo específico de turbulência. A ideia é combinar as melhores características das metodologias RANS e LES em uma única abordagem de turbulência. Esta metodologia se aproximou mais ao valor da planta. A metodologia DES mostra um comportamento intermediário entre LES e as simulações de Lopes *et. al.* (2011)

	Ali at al 1007	Lopes et. al.	LES	LES	LES	DES
	All <i>el</i> . <i>ul</i> . 1997	2011	Smagorinsky	Dinâmico	WALE	DES
Rendimento de	43.9	ΔΔ	41 39	42 92	40.98	43 1
Gasolina (% peso)	43,9		41,59	42,92	+0,70	45,1
Rendimento de	5,8	6,6	5,42	6,42	5,43	6,34
Coque (% peso)						
Temperatura na sa	ída 705	780	707 71	792 66	799 67	791.04
(K)	195	780	/0/,24	785,00	788,02	/01,94

Tabela 17 Comparação dos resultados das simulações com os dados da planta (Ali et. al., 1997)

O estudo fluidodinâmico do sistema mostra algumas diferenças notórias entre os

resultados obtidos por Lopes *et. al.* (2011) e as simulações utilizando a abordagem LES. Na Figura 53 é apresentada a média temporal dos campos de fração volumétrica do catalisador. Na simulação de Lopes *et. al.* (2011) é possível observar uma grande quantidade de catalisador na interseção entre a entrada lateral e o *riser*, chegando esta acumulação até a parede oposta. Para as simulações usando LES, existe uma acumulação menor dos sólidos nesta região, mas só no centro do *riser*. Este acúmulo de sólidos também pode ser observado na Figura 56 para uma altura no *riser* de 2 m e de fração volumétrica de catalisador de 0,11.







Figura 54 Perfis Comparativos da Massa específica: (Superior) LES-Smagorinsky; (Centro) LES Dinâmico; (Inferior) LES WALE. Caracteres discretos Lopes et. al. 2011; Caracteres contínuos correspondem aos resultados obtidos.


Figura 55 Perfis Comparativo da velocidade do gas: (Superior) LES-Smagorinsky; (Centro) LES Dinâmico; (Inferior) LES WALE. Caracteres discretos Lopes et. al. 2011; Caracteres contínuos correspondem aos resultados obtidos.



Figura 56 Perfis Comparativo da fração volumétrica do catalisador: (Superior) LES-Smagorinsky; (Centro) LES Dinâmico; (Inferior) LES WALE. Caracteres contínuos correspondem aos resultados obtidos.

O incremento da velocidade e a expansão volumétrica do gás como consequência

das reações do craqueamento catalítico como função da altura do reator são mostradas na Figura 55. As duas simulações se comportaram de forma semelhante, no entanto, os resultados obtidos neste estudo subestimaram os valores da velocidade na região *Freeboard* reportados por Lopes *et. al.* (2011).

Realizou-se um estudo comparativo do comportamento da média temporal de fração volumétrica de catalisador no plano central do *riser* (Figura 57), utilizando abordagem DES (*Detached Eddy Simulation*) com a simulação de Lopes *et. al.* (2011). Observa-se na Figura 57 que os sólidos são transportados pela parede oposta da entrada lateral, para logo serem dispersos ao longo do *riser*. Isto pode ser também notado na Figura 58.



Figura 57 Contraste dos perfis de fração volumétrica temporal de catalisador: (A) Lopes *et. al.* 2011; (B) *Detached Eddy Simulation*.



Figura 58 Perfis Comparativo da Simulação de Lopes *et. al.* 2011 (caracteres discretos) com os resultados obtidos utilizando *Detached Eddy Simulation*: Massa específica (-▲-); Velocidade do gás(-■-); Fração volumétrica de Catalisador (-•-)

## 8 CONCLUSÕES

A metodologia proposta para a construção da malha quase uniforme, baseada na relação de escalas beneficia em grande medida a eficiência nas simulações já que foi possível diminuir o tempo computacional.

É importante determinar até que ponto a indústria está interessada em descrever as estruturas das meso-escalas de maneira prática, isto é porque do ponto de vista físico, as microescalas da turbulência de um gás estão na ordem de grandeza de Ângstrom; para as partículas estão na ordem de grandeza de micra, o que resulta na dificuldade de se resolver as microescalas de um sistema de partículas e ainda impossível resolver para um sistema gasoso.

Com a capacidade computacional existente, só é possível resolver e descrever mesoescalas de turbulência caracterizadas no caso do escoamento gás-sólido por *cluster* e *strands*.

Para o caso do leito em escala de laboratório, a condição *no-slip* foi a que teve melhores resultados, conseguindo descrever o comportamento do sistema perto da parede. No caso de craqueamento catalítico (reator industrial) esta condição não teve influência representativa na predição dos dados da planta, por este motivo não foram apresentados na tese. Encontrou-se que a aplicabilidade da condição *no-slip* não deve ser generalizada devido a que o escoamento muda na presença de reação química.

Aplicando a abordagem LES com malhas quase uniformes obteve-se uma redução no tempo de execução computacional no cluster e, consequentemente no refino da malha. Para o sistema de duas fases aplicando a metodologia LES não é preciso realizar refino próximo às paredes do leito, isto produz instabilidade numérica.

No caso de escoamento gás-sólido, é imperativo calcular primeiro os valores das sub-escalas de espaço e tempo a partir das relações entre micro e macro escalas em todo o domínio do sistema, e não apenas próximo às paredes. Dessa forma, é preciso determinar primeiro qual deve ser o tamanho da malha e qual deve ser o passo de tempo para realizar as simulações.

É preciso investir o tempo suficiente na projeção da distribuição dos volumes de controle, de maneira que seja o mais uniforme, na medida do possível. Aplicando a modelagem LES foi possível encontrar as diferentes regiões características de um leito fluidizado (*core-annulus*). Em outras palavras, os resultados numéricos com LES validaram os dados experimentais próximos à parede do leito, que não foram validados pelos métodos tradicionais de turbulência.

A abordagem LES (projetada originalmente para escoamentos gasosos) deve ser adequada para sua aplicação satisfatória em escoamentos multifásicos; a diferença do comportamento do escoamento gasoso que apresenta pequenos vórtices próximo à superfície, nos escoamentos gás-sólido em leito fluidizado, estes pequenos vórtices estão presentes em todo o domínio de controle. Portanto, foi proposta a implementação de malhas quase uniformes. Além disso, um passo de tempo e malha constante beneficiam a estabilidade numérica da simulação, já que o número de Courant permanece estável.

É controverso afirmar que em uma abordagem LES para um sistema monofásico e gás-sólido exista independência das simulações com a malha, porque o filtro de esta abordagem é o próprio tamanho da malha.

Aplicando LES em malhas grosas quase uniformes, estas conseguiram descrever o comportamento fluidodinâmico do escoamento gás-sólido em leito fluidizado, mostrando o comportamento *core-annulus*. Não foi preciso refinar próximo da parede para descrever este comportamento.

Os diferentes métodos para Simulação de grandes escalas descreveram adequadamente o comportamento cinético do craqueamento do petróleo, embora se precise de outros estudos experimentais.

Quando se realiza estudos com reações químicas mútiplas é imperativo determinar a independência linear destas reações, de tal modo que o sistema de equações não esteja sobrespecificado. Para determinar os coeficientes estequiométricos dos grupos (lumps) é preciso conhecer com exatidão a massa molecular deste, de tal modo que cumpra com o balanço de massa, devido a que os lumps não possuem uma fórmula química.

No caso do craqueamento catalítico, não se encontrou uma diferença significativa nas duas malhas estudadas. No entanto as duas simulações não mostraram o pico próximo na interseção das duas entradas do reator, apresentada pelas simulações realizadas por Lopes (2011). Este tipo de de pico é devido possivelmente a que a simulação ainda não chegou ao estado estável, lembrando que o tempo simulado para o caso RANS foi metade do tempo correspondente para a simulação de grandes escalas.

A estabilidade numérica das simulações deve ser monitorada a cada passo de tempo através do cálculo do número de Courant. Lembrando que a condição do número de Courant (CFL<1) é uma condição de convergência das equações diferenciais, resolvidas mediante certos algoritmos e não se deve confundir com estabilidade numérica. É importante saber escolher a metodologia a ser utilizada no pós-processamento dos dados, como se apresentou nesta tese. Dependendo da forma que se estimem os valores médios das variáveis, se logra ou não um resultado apropriado.

Não existe uma diferença significativa entre as três metodologias de LES estudadas, todas descrevem adequadamente os dados experimentais com certa subestimação logo na saída do reator.

## **9 TRABALHOS FUTUROS**

Considerar a possibilidade de aplicar abordagem Lagrangiana para o catalisador com o intuito de fazer o seguimento detalhado do comportamento das partículas. Este modelo calcula a trajetória de cada partícula individual utilizando a segunda lei de Newton, a interação entre as partículas pode ser descrita pela energia potencial ou a dinâmica de colisões. Esta metodologia tem a vantagem de conhecer exatamente a trajetória da partícula e as variáveis do sistema. No entanto, requer alto esforço computacional, ainda mais quando os campos de velocidade das fases sólida e gasosa estão acoplados.

Realizar o estudo do espectro de energia turbulenta a fim de determinar as diferentes frequências de corte e determinar assim as escalas de dissipação de energia. Este estudo pode ser realizado através da Transformada rápida de Fourier (FFT, *Fast Fourier Transform*).

Propôr outros tipos de geometria e a ordem de entrada dos reagentes e o catalisador. Desta forma o catalisador e o vapor da água entrem na parte inferior e o gasóleo na parte superior. Assim, a região de recirculação de catalisador estaria presente abaixo da região de reação de craqueamento catalítico.

Implementar uma cinética de craqueamento catalítico que considere o sobrecraeamento da gasolina ou considerar cinéticas de maior número de lumps, sempre e quando se análise a independência das reações, com base na metodologia proposta neste trabalho.

Implementar uma abordagem Lagrangiana para o vapor que é alimentado com o catalisador afim de estudar o comportamento e importância nas simulações.

A natureza da formação de *cluster* e *strands* está intimamente relacionada com a formação de vórtices no escoamento, seria importante realizar um estudo topológico paralelamente com os campos de fração volumétrica de catalisador. Encontrar alguma relação física e matemática que explique esta formação, isso seria um grande avanço na ciência e teria imensas aplicações na indústria.

## **10 TRABALHOS PUBLICADOS**

Gonzalez G S., Matos E., Mori M. The Importance of 3D Mesh Generation for Large Eddy Simulation of Gas – Solid Turbulent Flows in Fluidized Beds. *World Academy of Science, Engineering and Technology* 68, Paris, 1136-1146, 2012.

Gonzalez G S., Matos E., Mori M. Simulação De Grandes Escalas Aplicado Ao Escoamento Gás- Sólido Em Leito Fluidizado. XIX Congresso Brasileiro de Engenharia Química, Búzios, RJ, 2012.

Gonzalez G S; Prieto N J; Salazar, O. F. Fluid Dynamics of Gas Solid Fluidized Beds. In: Dr. Hyoung Woo Oh, Department of Mechanical Engineering, Chungju National University. (Org.). *Advanced Fluid Dynamics*. Chungju, Korea: InTech, 2011.

## 11 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ABUL-HAMAYEL, M. Kinetic modeling of high-severity fluidized catalytic cracking. *Fuel* 82, 1113–1118, 2003.

ABUL-HAMAYEL, M; SIDDIQUI, M; INO, T; AITANI, A. Experimental determination of high-severity fluidized catalytic cracking (HS-FCC) deactivation constant. *Applied Catalysis A: General* 237, 71–80, 2002.

AGRAWAL, K. The role of Meso Scale Structures in Rapid Granular & Gás-Solid Flows. Ph.D. Thesis at Department of Chemical Engineering, Princeton, November 2000.

AGRAWAL, K., LOEZOS, P. N., SYAMLAL, M., SUNDARESAN, S. The role of meso scale structures in rapid gás-solid flows. *J. Fluid Mech.*, v. 445, p. 151-185, 2001.

AHARI, J.; FARSHI, A.; FORSAT K. A mathematical modeling of the *riser* reactor in industrial fcc unit. *Petroleum & Coal* 50, 15-24, 2008.

AHMED, A.M. AND ELGHOBASHI, S. On the mechanisms of modifying the structure of turbulent homogeneous shear flows by dispersed particles. Physics of Fluids, v. 12, n. 11, November 2000.

AITANI, A.; YOSHIKAWA T.; INO T. Maximization of FCC light olefins by high severity operation and ZSM-5 addition. Catalysis Today 60, 111–117, 2000,

ALI, H.; ROHANI, S. Dynamic Modeling and Simulation of *riser* –Type Fluid Catalytic Cracking Unit. *Chem.Eng.Tech.*, 20, 118-130, 1997

ALIM A. A Physical Comprehensive Definition of aVortex Based on the Lamb Vector. Algerian Journal of Applied Fluid Mechanics, Vol 1, 2006

ANCHEYTA-JUÁREZ, J; LÓPEZ-ISUNZA, F; AGUILAR-RODRÍGUEZ, E; MORENO MAYORGA, J. A Strategy for Kinetic Parameter Estimation in the Fluid Catalytic. *Ind.Eng. Chem. Res.*, *36*, 5170-5174, 1997

ANSYS CFX-Solver Theory Guide ANSYS, Inc. Release 14.0 Southpointe November 2011

AVIDAN, A.; SHINNAR, R. Development of Catalytic Cracking Technology. A Lesson in Chemical Reactor Desig. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 29, 931, *1990*,

BARDINA, J.E., HUANG, P.G., COAKLEY, T.J. Turbulence Modeling Validation, Testing, and Development. *NASA Technical Memorandum* 11044, (1997)

BANKS, D.C. SINGER, B.A., A Predictor-Corrector Technique for Visualizing Unsteady Flow, *IEEE Trans. on Visualization and Comp. Graphics Numerical* 1, NO.2, June, 1995.

BADER, R., J. FINDLAY AND T.M. KNOWLTON. Gas/Solid Flow Patterns in a 30.5-Cm- Diameter Circulating Fluidized Bed," in Circulating Fluidized Bed Technology II, edited by Basu P. and J.F. Large, Pergamon Press, 123-137. 1988.

BERRUTI, F.;CHAOUKI, J.; GODFROY, L.; PUGSLEY, T.S.; PATIENCE, G.S.; Hydrodynamics of Circulating Fluidized Bed *risers*: A Review. *Can. J. Chem. Eng.* 73, 579-602, 1995

BOLKAN, Y. G., Modeling circulating fluidized bed *riser & downer* reactor and their application to FCC., Univeridade de Calgary. 2003. Tese (Doutorado)

BOLLAS, G M, A A LAPPAS, D K IATRIDIS, A VASALOS. Five-*lump* Kinetic Model with Selective Catalyst Deactivation for the Prediction of the Product Selectivity in the Fluid Catalytic Cracking Process." *Catalysis Today* 127 (1-4): 31-43 2007.

BOSE, S. T., MOIN, P. & YOU, D. Grid-independent large-eddy simulation using explicit filtering. Physics of Fluids 22 (10), 105103, 2010

CHEN, Y. *Handbook of Fluidization and Fluid-Particle Systems*. Marcel Dekker, INC. 2003. CAP. 14. Applications for Fluid Catalytic Cracking.

CHENG, Y.; WU, C.; ZHU, J.; WEI, F.; JIN Y. downer reactor: From fundamental study to industrial application. *Powder Technology* 183, 364–384, 2008.

CHONG, M. S., PERRY, A. E., and Cantwell, B. J., A General Classification of Three-Dimensional Flow Fields, *Physics of Fluids A*, Vol. 2, No. 5, pp. 765–777, 1990.

DAVIDSON, L. A New Approach of Zonal Hybrid RANS-LES Based on a Two-equation k-eps Model ,ETMM9: International ERCOFTAC Symposium on Turbulence Modelling and Measurements, Thessaloniki, Greece, 2012

DE LANGHE, C. MERCI, B. LODEfiER, K. DICK. E. Hybrid RANS-LES modelling with the renormalization group. In K. Hanjali'c, Y. Nagano, and M.J. Tummers, editors, Turbulence Heat and Mass Transfer 4, pages 697–704, New York, Wallingford (UK), 2003. begell house, inc.

DEARDORFF, J. W. Three-dimensional numerical study of the height and mean structure of a heated planetary boundary layer. Boundary-Layer Meteorol. 7, 81-106, 1974

DEROUIN,C., NEVICATO, D., FORISSIER,M.,WILD,G., BERNARD, J.R.. Hydrodynamics of riser units and the impact on FCC operation. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 36, 4504–4515. 1997. EATON, J.K. AND FESSLER, J.R. Preferential Concentration of Particles by Turbulence. *Int. J. Multiphase Flow*, v. 20, Suppl., pp. 169-209, 1994.

EGOROV, Y., MENTER, F. Development and Application of SST-SAS Turbulence Model in the DESIDER Project. Second Symposium on Hybrid RANS-LES Methods, Corfu, Greece, 2007

EGOROV, Y. MENTER, F. R. LECHNER, R. COKLJAT. D. The Scale-Adaptive simulation method for unsteady turbulent flow predictions. part 2: Application to complex flows. *Flow, Turbulence and Combustion*, 85(1):139–165, July 2010.

FARAG, H., BLASETTI, A., & DE LASA, H. Catalytic cracking with FCCT loaded with tin metal traps. Adsorption constants for gásoil, gasoline, and light gases. Industrial and Engineering Chemistry Research, 33, 3131–3140, 1994

FESSLER, J.R, AND EATON, J.K. Turbulent modification by particle in a backward-facing step flow. *J. Fluid. Mech.*, v. 394, pp. 87-117, 1999.

FOGLER, H.S. *Elementos de Ingeniería de las Reacciones Químicas*. Prentice Hall, terceira edição, México, 2001.

FOX R.O. Large-Eddy-Simulation Tools for Multiphase Flows. Annual Review of Fluid Mechanics, Vol. 44: 47-76, 2012

FUJIYAMA Y. et. al. High-severity FCC operation. Petroleum technology quarterly 12, 101-105, 2007.

GALTIER, P.A., R.J. POINTER AND T.E. PATUREAUX . "Near Full-Scale Cold Flow Model for the R2R Catalytic Cracking Process," pp. 17-24, "Fluidization VI," J.R. Grace, L.W. Shemilt and M.A. Bergougnou, cd. Engineering Foundation, New York. 1989, GENTILIN, C. W. J. Controle preditivo por modelo interno aplicado a unidades de craqueamento catalítico.Tese CEFET-PR. 2004.

GELDART, D., Types of gásfluidization, Powder Technology 7, 285-292. 1973.

GELDART D., AND M.J. RHODES From Minimum Fluidization to Pneumatic Transport - A Critical Review of the Hydrodynamics, Circulating Fluidized Bed Technology, edited by Basu P., Pergamon Press, pp. 21-32. 1986.

GEORG, I. C. Modelagem e simulação numérica tridimensional transiente do escoamento gás-sólido em um reator de craqueamento catalítico em leito fluidizado.Tese de doutorado. Universidade Federal de Santa Catarina, 2005.

GERMANO, M., PIOMELLI, U., MOIN, P., CABOT, W.H. A Dynamic Subgrid-Scale Eddy viscosity Model. *Phys. Fluids A* 3 (7), pp. 1760-1765, 1991

GIANETTO A.; FARAG H. I.; BLASETTI A. P.; DE LASA H. I. Fluid catalytic cracking catalyst for reformulated gasolines. Kinetic modeling. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 33, 3053-3062, 1994.

GIDASPOW, G. Multiphase Flow and Fluidization: Continuum and Kinetic Theory Description. Academic Press, 1 edição, 1994.

GRACE, J.R., LECKNER B., ZHU, J., CHENG, J. Multiphase flow handbook, CRC Press Taylor & Francis Group, 2006. CAP. V. Hydrodynamics of Fluidization

HEYDARI, M. EBRAHIM, H.A and B. DABIR, Modeling of an Industrial *Riser* in the Fluid Catalytic Cracking Unit. *Am. J. Applied Sci.*, 7: 221-226, 2010.

HODAPP, M. Modelagem e Simulação de um Leito Fluidizado: Um Estudo Comparativo. Dissertação de Mestrado. UNICAMP 2009

HUNT, J.C. R., WRAY, A.A., MOIN, P., Eddies, Stream, and Convergence Zones in Turbulent Flows, Report CTR-S88, Center for Turbulence Research, 1988

HUILIN, L., GIDASPOW, D., Hydrodynamics of binary fluidization in a *riser*: CFD simulation using two granular temperatures, *Chemical Engineering Science*, n.58, p.3777-3792, agosto 2003

IBSEN, C.H. An experimental and Computational Study of Gás-Particle Flow in Fuidised Reactors, Ph.D. Thesis, Aalborg University, Esbjerg, 2002.

JEONG J., HUSSAIN F.: On the identification of a vortex. *Journal of Fluid Mechanics*, vol 285, 1995

JIANG, M., MACHIRAJU, R., THOMPSON, D. Detection and visualization of vortices. En: Visualization Handbook. Academic Press 2003.

JUNIOR, N.P. Fadiga de ciclones de unidades de FCC sob ação Fluido-dinâmica. Tese COPPE/UFRJ. 2004.

KOLÁŘ, VÁCLAV G. Vortex identification: New requirements and limitations, International Journal of Heat and Fluid Flow, Volume 28, Issue 4, Pages 638-652, 2007.

KOLÁŘ, VÁCLAV G. Brief notes on vortex identification.Recent advances in fluid mechanics, heat & mass transfer and biology. Stevens Point, Wisconsin : WSEAS Press, 2011

KRAEMER, D. *Modelling Catalitic cracking in novel riser simulator*. Universidade de Western Ontario. 1990. Tese (doutorado).

KIM GRANLY HANSEN, TRON SOLBERG, BJØRN H. HJERTAGER, A threedimensional simulation of gas/particle flow and ozone decomposition in the *riser* of a circulating fluidized bed, Chemical Engineering Science, Volume 59, Issues 22–23, November–December 2004.

KOK, J.C. DOL, H.S. OSKAM, B. VAN DER VEN. Extra-large eddy simulation of massively separated flows. AIAA paper 2004-264, Reno, NV, 2004.

KRAEMER & DE LASA, H. Catalytic cracking of hydrocarbons in a *riser* Simulator. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 27, 2002-2008, 1988.

KUNII, D. E LEVENSPIEL, O. Fluidization engineering. New York: John Wiley, 1991.

LUGT. H. Vortex Flow in Nature and Technology. Wiley, 1972.

.

LANDEGHEM, F. V., NEVICATO, D., PITAULT, I., FORISSIER, M., TURLIER, P., DEROUIN, C., BERNARD, J.R. Fluid catalytic cracking: Modelling of an industrial *riser*. *Applied Catalysis A: General*, v. 138, p. 381-405, 1996.

LAROCCA, M; DE LASA, H.; NG, S. Fast catalytic cracking of heavy gásoils modeling coke deactivation. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 29, 171-180, 1990

LEE, L. S.; CHEN, Y. W.; HUANG, T. N.; PAN, W. Y. Four *Lump* Kinetic Model for FCC Process. *Can. J. Chem. Eng.*, 67, 615-619, 1989

LEONARD, A. Energy cascade in large-eddy simulations of turbulent fluid flows. Advances in Geophysics A 18: 237-248, 1974

LILLY, D. K. The representation of small-scale turbulence in numerical simulation

experiments. In Proceedings of IBM Scientific Computing Symposium on Environmental Sciences (ed. H. H. Goldstine), pp. 195-210. Yorktown Heights, NY: IBM, 1967.

LILLY, D.K. A Proposed Modification of the Germano Subgrid-Scale Closure Method. *Phys. Fluids A* 4 (3), pp. 633-635, 1992.

LIU, F.; WEI, F.; ZHENG Y.; JIN Y. CFD simulation of fluid catalytic cracking in downer reactors. *China Particuology* 4, 160-166, 2006.

LOPES, G C; ROSA, L M; MORI, M; NUNHEZ, J R; MARTIGNON, W P. Three-Dimensional Modeling of Fluid Catalytic Cracking Industrial *Riser* Flow and Reactions. *Computers & Chemical Engineering* Volume: 42, 2602-2617. 2011.

MALISKA, C. R. Tranferência de Calor e Mecânica dos Fluidos Computacional. 2 edição, 2004.

MARTIGNONI & DE LASA, H. Heterogeneous reaction model for FCC *riser* units. Chemical Engineering Science 56, 605-612, 2001

MAADHAH, A.; ABUL-HAMAYEL, M.; AITANI, A.; INO, T. Down-flowing FCC reactor increases proplyene, gasoline make. *Oil & Gásjournal* 98, 66-70, 2000

MENG, XIANGHAI, CHUNMING XU, JINSEN GAO, AND LI LI. Seven-*lump* Kinetic Model for Catalytic Pyrolysis of Heavy Oil. Catalysis Communications 8 (8) (August): 1197-1201, 2007.

MENTER, F. R. e EGOROV, Y. A scale-adaptive simulations model using two equation models. AIAA Paper 2005-1095, Reno 2005

MENTER, F.R., e EGOROV, Y.: The scale-adaptive simulation method for unsteady turbulent flow predictions. Part 1: theory and model description. Flow Turbul. Combust. 2010.

MILLER, A. e GIDASPOW, D. Dense, Vertical Gas-Solid Flow in a Pipe. AIChE J., 38(11), 1801, 1992.

MOIN, P., CHOW F. K. A further study of numerical errors in large-eddy simulation. J. Comput. Phys. 184, 2003

NICOUD, F., DUCROS, F. Subgrid-Scale Stress Modelling Based on the Square of the Velocity Gradient Tensor. Flow, Turbulence and Combustion, 62, pp. 183-200, 1999

OLIVEIRA, L. L.; BISCAIA JR., E. C. Catalytic cracking kinetic models. parameter. estimation and model evaluation. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 28, 264-271, 1989.

OSHA. Osha technical manual: Occupational safety and health administration. 1992

PATANKAR, SUHAS. *Numerical heat transfer and fluid flow*. Washington; New York: Hemisphere Pub. Corp; McGraw-Hill, 1980.

PATIENCE, G. S.; CHAOUKI, J.; BERRUTI F.; WONG, S. R. Scaling considerations for circulating Fluidized Bed *risers*. *Powder Technology* 72,31-39, 1992.

PEDRÃO N. Estudo Comparativo Entre Os Modelos Les E Des Para Simulação De Escoamento Compressível Turbulento. Dissertação mestrado Escola Politécnica da Universidade de São Paulo., 2010

PINTO-HEREDERO, A, PÉREZ-ROJAS, L., Current State of URANSE-DES Methods and their Applications to Ship Maneuvering, 3rd. International Conference Maritime Transport, Barcelona, España, Mayo 2006 PIOMELLI, U. e BALARAS, E. Wall-layer models for large-eddy simulations. Annu. Rev. Fluid 34, 349–374. 2002

POPE B. S. Ten questions concerning the large-eddy simulation of turbulent flows. New *Journal of Physics* 6, 2004.

RANADE. *Computational Flow Modeling for Chemical Reactor Engineering*. Academic Press., 2002.

RANZ e MARSHAL. Evaporation for drops, part i and ii. *Chemical Engineering Progress*, 48:173180, 1952

REKLAITIS, G. V. Introduction to Material And Energy Balances, JOHN WILEY & SONS, 1983.

RIAZI, M.-R. Characterization and properties of petroleum fractions. ASTM manual series. 2005

ROBINSON. S. K. Coherent Motions in the Turbulent Boundary Layer. Ann. Rev. Fluid Mechanics, 23:601–639, 1991

SHAW C T. Using Computational Fluid Dynamics. Prentice Hall, 1992

SADIGHI, SEPEHR, ARSHAD AHMAD, AND MEHDI RASHIDZADEH "4-Lump Kinetic Model for Vacuum GásOil Hydrocracker Involving Hydrogen Consumption." *Korean Journal of Chemical Engineering* 27 (4) 1099-1108, 2010.

SAMUELSBERG, A.; HJERTAGER, B. H. An experimental and numerical study of flow patterns in a circulating fludized bed reactor. *International Journal of Multiphase Flow*, v.22, p. 575–591, 1996.

SMAGORINSKY, J. General Circulation Experiments with the Primitive Equations. *Month. Weath. Rev.* Vol. 93, pp. 99-165, 1963

SPALART, P. R., JOU, W.-H., STRETLETS, M., AND ALLMARAS, S. R. (), "Comments on the Feasibility of LES for Wings and on the Hybrid RANS/LES Approach", Advances in DNS/LES, Proceedings of the First AFOSR International Conference on DNS/LES, 1997.

SPALART, P. R. Strategies for turbulence modeling simulations. Int. J. Heat Fluid Flow 21, 252–263, 2000.

SQUIRES, K D. Detached-eddy simulation: *Current status and perspectives*. Proceedings of Direct and Large-Eddy Simulation, 5, 2004.

SUNDARESAN, S. Modeling the hydrodynamics of multiphase flow reactors: current status and challenges, *Am. Inst. Chem. Eng. J.* 46, 1102–1105, 2000.

TRAVIN A.K., SHUR, , M. STRELETS, M SPALART. P.R Physical and numerical upgrades in the detached-eddy simulations of complex turbulent flows. In R.Friederich and W.Rodi, editors, Fluid Mechanics and its Applications. Advances in LES of Complex Flows, volume 65 of Euromech Colloquium 412.Fluid Mechanics and its Applications. Advances in LES of Complex Flows, p 239–254. Academic Publishers, Dordrecht, 2002.

VACLAV KOLAR. Vortex identification: New requirements and limitations. International Journal of Heat and Fluid Flow, 28(4):638–652, August 2007.

VAN WACHEN, B.G.M. Derivation, implementation, and validation of computer simulation models for gás-solid fluidized beds. Ph.D. Thesis at Delft University of Technology, 2000.

VREMAN B, GEURTS B AND KUERTEN H. Large-eddy simulation of the turbulent mixing layer. J. Fluid Mech. 339, 1997.

WEEKMAN, V. W. Model of catalytic cracking conversion in fixed, moving, and fluid-bed reactors. *Ind. Eng. Chem. Process Des.*, 7, 90-95, 1968.

WEINSTEIN, H., M. SHAO, M. SCHNITZLEIN, AND R.A. GRAFT . "Radial Variation in Void Fraction in a Fast Fluidized Bed," Fluidization V., Proceedings of the Fifth Engineering Foundation Conference on Fluidization, Elsinore, Denmark, edited by Ostergaard, K. and A Sorensen, pp. 329-336 (1986). Available from AIChE, New York.

XU, OU-GUAN, HONG-YE SU, SHENG-JING MU, AND JIAN CHU. 7-*lump* Kinetic Model for Residual Oil Catalytic Cracking. *Journal of Zhejiang University SCIENCE A* 7 (11) 1932-1941. 2006.

YANG, W. A Correlation for Solid Friction Factor in Vertical Pneumatic Conveying Lines. *AIChE J.*, 24, 548-552, 1978

YANG, Y.C., AND LEI, U. The role of the turbulent scales in the settling velocity of heavy particles in homogeneous isotropic turbulence. *J. Fluid. Mech.*, v. 371, pp. 179-205, 1998.

YEN, L.C.; WRENCH, R.E.; ONG, A.S. Reaction kinetic correlation equation predict fluid catalytic cracking coque yiel. *Oil and GásJ.*, 11, 67-70, 1988