



2º CONGRESSO BRASILEIRO DE P&D EM PETRÓLEO & GÁS

MODELAGEM E SIMULAÇÃO TRIDIMENSIONAL DE UM REATOR DE CRAQUEAMENTO CATALÍTICO EM LEITO FLUIDIZADO - FORMAÇÃO DE CLUSTERS

Ivan Carlos Georg¹, Clovis Raimundo Maliska¹, Luismar Marques Porto²

¹ SINMEC – Laboratório de Simulação Numérica em Mecânica dos Fluidos e Transferência de Calor - www.sinmec.ufsc.br, Universidade Federal de Santa Catarina – Pós Graduação em Engenharia Mecânica, 88040-900 Florianópolis – SC - Brasil
ivan@sinmec.ufsc, maliska@sinmec.ufsc.br

² INTELAB – Laboratório de Tecnologias Integradas
Universidade Federal de Santa Catarina – Pós Graduação em Engenharia Química e Alimentos
luismar@enq.ufsc.br

Resumo – O processo de craqueamento catalítico em leito fluidizado (FCC) é utilizado na indústria petroquímica com a finalidade de transformar frações pesadas do petróleo em frações mais leves e de maior valor agregado. Um modelo matemático multifásico é utilizado para descrever o escoamento gás-sólido, utilizando-se uma malha computacional tridimensional de alta resolução com a finalidade de captar as estruturas presentes na meso escala. Estas estruturas influenciam os mecanismos de transferência de massa, quantidade de movimento, energia e velocidades de reação. O objetivo principal é apresentar resultados numéricos demonstrando que o modelo fluido dinâmico proposto é capaz de captar as estruturas denominadas *clusters* de partículas.

Palavras-Chave: escoamento gás-sólido; meso escala; *clusters*; fluido dinâmica computacional.

Abstract – Fluid catalytic cracking (FCC) is an industrial process that converts heavy hydrocarbons to lower molecular-weight products that are more profit. A multiphase model are developed to describe de gas-solid flow with a 3D high resolution grid, which have the finality to capture the meso-scale structures. This structures influence the transfer mechanisms of mass, momentum, energy and the rate of the reactions. The aim of this work is to present numerical results to demonstrate that the fluid dynamic model suggested here can capture the clusters of particles.

Keywords: gas-solid flow, meso-scale, clusters, CFD

1. Introdução

O processo de craqueamento catalítico em leito fluidizado (FCC) é utilizado na indústria petroquímica com a finalidade de transformar hidrocarbonetos de alto peso molecular em produtos de menor peso molecular e maior valor agregado, tais como gasolina e diesel. O catalisador é injetado na base do reator e ascende verticalmente até o topo. Durante este processo as reações catalíticas de craqueamento são completadas através do íntimo contato entre o catalisador e os hidrocarbonetos (gás-óleo). O escoamento no interior do reator FCC apresenta-se em duas fases, uma gasosa e outra sólida. As reações químicas dão-se na superfície do catalisador. A habilidade de simular o escoamento gás-sólido tem como finalidade principal a otimização do processo e o projeto de unidades industriais. A natureza das interações hidrodinâmicas nas várias escalas apresenta-se como um grande desafio no que se refere ao aspecto de modelagem matemática, Anderson e Jackson (1967), Theologos et al. (1997), Harris et al. (2002). A prática mais comum é a utilização de equações médias de transporte para cada uma das fases com a finalidade de simular numericamente o comportamento fluido dinâmico. Tem havido um grande esforço no entendimento dos mecanismos inerentes ao escoamento gás sólido, contudo o estado da arte do escoamento multifásico ainda está longe do ideal, Zhang e VanderHeyden (2001), van Wachem (2000), Zhang e Prosperetti (1994).

Em princípio, o movimento de partículas suspensas em um fluido é completamente determinado pelas equações de Navier-Stokes, tendo que ser satisfeitas em cada ponto do fluido, e as equações do movimento de Newton satisfeitas para cada uma das partículas presentes no escoamento. Contudo, quando o sistema de interesse compreende um grande número de partículas, como em um leito fluidizado, o problema torna-se complexo demais para permitir a solução quando colocado desta forma. Ou seja, haveria a necessidade de uma quantidade de partículas muito grande que represente o sistema em questão, o que é impraticável com os recursos computacionais existentes. Desta forma, é utilizado o processo de média para cada uma das fases (gás e sólido) resultando no “modelo de dois fluidos”, inicialmente desenvolvido por Anderson e Jackson (1967), que trata o fluido e o sólido no referencial Euleriano. Assim, o sólido é modelado como um contínuo, e os mecanismos de transferência de massa, quantidade de movimento e energia dão-se na interface entre os “dois fluidos”.

Estudos experimentais em leitos fluidizados, tais como encontrados em reatores FCC, revelam que as partículas estão distribuídas de forma não uniforme, Harris et al. (2002), Agrawal et al. (2001). Esta não uniformidade pode resultar no retorno de partículas e gás em algumas regiões do reator, usualmente nas regiões próximas às paredes. O escoamento no reator FCC é eminentemente transiente com grandes flutuações na densidade da suspensão. Está bem estabelecido que as estruturas da meso escala (*clusters* e caminhos preferenciais), Agrawal et al. (2001) estão presentes neste tipo de escoamento. Estas estruturas influenciam de forma pronunciada os mecanismos de transferência de quantidade de movimento, massa e energia. A ordem de grandeza dos *clusters* encontra-se na faixa de 10 a 100 diâmetros de partículas Horio (1995). Assim, com a finalidade de captar estas estruturas é necessário um refino da malha computacional desta ordem de grandeza, considerando que o modelo apresentado por Anderson e Jackson (1967) pode representar a física do problema.

Com base nos trabalhos de Agrawal et al. (2001) e Zhang e VanderHeyden (2001), o presente trabalho tem como objetivo principal demonstrar que o modelo de “dois fluidos” com um refino de malha computacional adequado é capaz de captar as estruturas da meso escala e estabelecer possíveis mecanismos para a caracterização destas estruturas de forma a correlacioná-los com dados de processo.

2. Modelo Euleriano para o Escoamento Gás-Sólido

O número total de partículas tipicamente presente na maioria dos escoamentos gás-sólido de interesse prático é extremamente grande, sendo impraticável resolver o movimento de cada uma das partículas existentes. Desta forma, o escoamento gás-sólido em unidades FCC é geralmente modelado utilizando as equações médias locais do movimento Anderson e Jackson (1967). As equações do modelo que utilizamos neste trabalho encontram-se descritas na Tabela 1. As equações 1 a 4 são a equação da continuidade e o balanço de quantidade de movimento para a fase partícula e gás respectivamente, como apresentadas por Anderson e Jackson (1967). Nas equações apresentadas ϕ é a fração volumétrica das partículas; \mathbf{v} e \mathbf{u} são as velocidades médias locais das partículas e do gás respectivamente; ρ_s e ρ_g são as densidades; $\boldsymbol{\sigma}_s$ e $\boldsymbol{\sigma}_g$ são os tensores tensão associados as duas fases, expressos no formato compressível; \mathbf{f} é a força de interação entre as fases por unidade de volume do leito; e \mathbf{g} é a força da gravidade.

O fechamento das equações do movimento requer a descrição das tensões para a fase sólida. Quando o movimento das partículas é dominado por colisões, os conceitos advindos da teoria cinética (Chapman e Cowling, 1970) podem ser utilizados, e comumente o são, para descrever as tensões na fase sólida. Relações constitutivas para as tensões da fase sólida baseadas nos conceitos da teoria cinética foram derivados por Lun et al. (1984), levando em conta a natureza inelástica das colisões entre partículas. Assim na Equação 4 da Tabela 1 é apresentado o modelo utilizado neste trabalho, no que se refere à teoria cinética granular, seguindo o modelo proposto por van Wachem (2000). O modelo de van Wachem (2000) assume que a energia granular está em estado estacionário e é dissipada localmente e despreza os efeitos difusivos e convectivos, retendo apenas os termos de geração e dissipação. Esta simplificação é razoável considerando que o leito do presente trabalho encontra-se caracterizado como denso, onde os termos de geração e dissipação dominam este tipo de regime. As condições de contorno consideram o escoamento isotérmico.

A Equação 6 considera apenas a forma Newtoniana para as tensões na fase gás. No regime do presente estudo, $\rho_s \phi \gg \rho_g (1 - \phi)$, desta forma a contribuição deviática do tensor da fase gás pode ser desprezada. Considera-se apenas a força de arraste para descrever as interações gás-partículas, Equação 7.

Tabela 1. Equações do modelo Euleriano para o escoamento gás-sólido.

	$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \nabla \cdot (\phi v) = 0,$	(1)
	$\frac{\partial (1 - \phi)}{\partial t} + \nabla \cdot [(1 - \phi)u] = 0,$	(2)
	$\frac{\partial (\rho_s \phi v)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_s \phi v v) = -\nabla \cdot \sigma_s - \phi \nabla \cdot \sigma_g + f + \rho_s \phi g,$	(3)
	$\frac{\partial (\rho_g (1 - \phi)u)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_g (1 - \phi)uu) = -\phi \nabla \cdot \sigma_g - f + \rho_g (1 - \phi)g,$	(4)
Pseudo temperatura granular (van Wachem 2000)	$(\nabla P_s I + \sigma_s) : \nabla v - \gamma_s \theta = 0.$	(5)
Tensor tensão para a fase gás	$\sigma_g = p_g I - \mu_g \left[\nabla u + (\nabla u)^T - \frac{2}{3} (\nabla \cdot u) I \right].$	(6)
Força de arraste (Gidaspow 1994)	$f = \beta (u - v), \quad \beta = \frac{3}{4} C_D \frac{\rho_g (1 - \phi) \phi u - v }{d} F(\phi), \quad F(\phi) = (1 - \phi)^{2.65},$	(7)
	$C_D = \begin{cases} \left(\frac{24}{Re_g} \right) (1 + 0.15 Re_g^{0.687}), & Re_g < 1000 \\ 0.44, & Re_g \geq 1000, \end{cases} \quad Re_g = \frac{(1 - \phi) \rho_g d u - v }{\mu_g}.$	(8)
Tensor tensão para a fase sólido	$\sigma_s = -p_s I + \left(\zeta_s - \frac{2}{3} \mu_s \right) \nabla \cdot v I + \mu_s (\nabla v + (\nabla v)^T),$	(9)
Pressão da fase sólido	$p_s = \rho_s \phi \theta (1 + 2(1 + e)g_0 \phi), \quad e = 0.95, \quad g_0 = 0.6 \left(1 - \left(\frac{\phi}{\phi_{\max}} \right)^3 \right)^{-1}, \quad \phi_{\max} = 0.65,$	(10)
Viscosidades cinemática e dinâmica para fase sólido	$\zeta_s = \frac{4}{3} \phi \rho_s d g_0 (1 + e) \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^{0.5}, \quad \mu_s = \frac{10 \sqrt{\pi} \rho_s d \theta^{0.5}}{96(1 + e)g_0 \phi} \left(1 + \frac{4}{5} (1 + e)g_0 \phi \right)^2 + \frac{4}{5} \phi \rho d g_0 (1 + e) \left(\frac{\theta}{\pi} \right).$	(11)
Termo de dissipação da energia fluante	$\gamma \theta = 3(1 - e^2)g_0 \phi^2 \rho_s \theta \left(\frac{4}{d} \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^{0.5} - \nabla \cdot v \right).$	(12)

3. Origem dos Clusters no Escoamento Gás-Sólido

Embora as forças atrativas entre partículas possam dar origem a aglomeração de partículas finas, isto não parece ser a rota dominante para a formação de *clusters* nas condições de escoamentos encontradas em reatores FCC. Escoamentos gás-sólidos com altas velocidades como em reatores FCC, apresentam flutuações persistentes, *clusters* e caminhos preferenciais, Agrawal et al. (2001). Quando um fluido intersticial está presente, o amortecimento da flutuação do movimento das partículas resultante da presença deste fluido aumenta a tendência para formar *clusters*. Segundo Agrawal et al. (2001) estruturas não uniformes aparecem como resultado de instabilidades locais e a presença das paredes não é requerida para a formação destas estruturas. Assim pode-se dizer que as estruturas apresentadas na Figura 1, estão provavelmente associadas com o movimento relativo entre o gás e as partículas, a dissipação da energia fluante das partículas por colisões inelásticas e o amortecimento viscoso.

A importância de conhecer-se a origem e o comportamento destas estruturas reside no fato de que estas estruturas encontradas na meso escala influenciam as variáveis de processo, bem como os mecanismos de transferência de massa, quantidade de movimento e as velocidades de reação. Desta forma o conhecimento de como estas estruturas

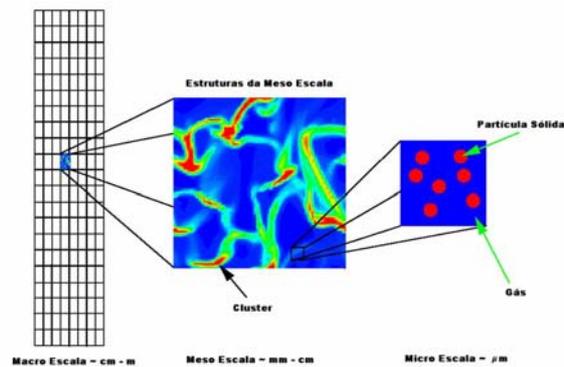


Figura 1. Esquema das escalas e ordens de grandeza associadas a um reator de leito fluidizado.

modificam as variáveis de projeto são de suma importância. As escalas envolvidas para captar tais estruturas encontra-se esquematizado na Figura 1, onde a meso escala encontra-se na ordem de grandeza de milímetro para centímetro. A Figura 2 mostra qualitativamente que as equações apresentadas na Tabela 1 são capazes de captar estas estruturas, bastando realizar o refino da malha computacional adequado. Dada a importância de tais estruturas, há a necessidade de desenvolver métodos para caracterizá-las de forma que estes sirvam de ferramentas no auxílio de projetos de unidades industriais, tendo em vista as dificuldades de escalonamento e experimentais. Existem na literatura várias tentativas de caracterizar a formação de *clusters* através de experimentos sofisticados, contudo sem grande sucesso, Harris et al. (2002), Lackner et al. (2001). Tendo em vista as dificuldades experimentais, as técnicas de fluido dinâmica computacional apresentam-se com um grande potencial, pois é possível realizar uma série de experimentos computacionais e assim utilizar técnicas de visualização e monitoramento com a finalidade de caracterizar estas estruturas.

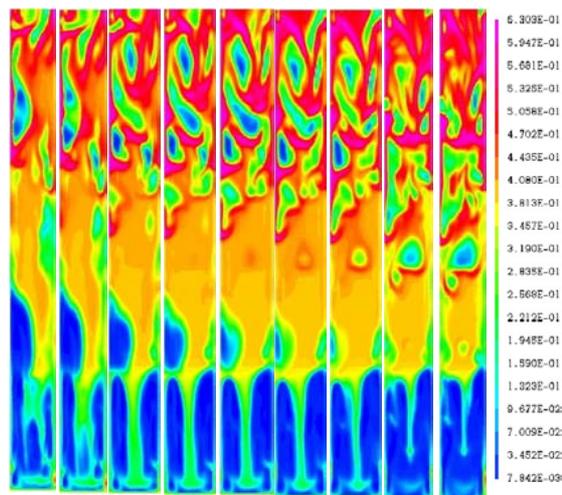


Figura 2. Corte longitudinal central da fração volumétrica de sólidos (figura central) e cortes com espaçamento a partir do centro de 1cm. Tonalidade azulada representa gás e tonalidade violeta o máximo de compactação – aglomerado de partículas - *clusters*.

A Figura 2 apresenta a fração de sólidos, onde é possível observar a formação de aglomerados de partículas (região com tonalidade violeta), onde tem-se uma fração de sólidos ϕ , de 0.63, valor muito próximo ao máximo de compactação possível que é 0.65. Nota-se ainda a formação de caminhos preferenciais e estruturas tridimensionais não homogêneas, onde há regiões de alta concentração de sólidos muito próximas de regiões diluídas.

Os tempos de formação e destruição de *clusters*, seu tamanho, concentração, velocidade e influência nas variáveis de processo são possíveis de ser caracterizados resolvendo-se as equações de conservação, sendo este o objetivo de trabalhos posteriores. Neste trabalho nos atemos aos aspectos numéricos referentes à capacidade de dado modelo captar estas estruturas, apresentamos resultados qualitativos, demonstrando que o modelo apresentado na Tabela 1 é capaz de representar as estruturas tridimensionais chamadas *clusters*. No item a seguir apresentamos a estratégia numérica utilizada.

4. Descrição da Simulação Numérica e Resultados

As simulações realizadas neste trabalho utilizaram a metodologia apresentada por Agrawal et al.(2001) e Zhang e VanderHeyden (2001), com o objetivo de observar a capacidade do modelo apresentado na Tabela 1 de captar a formação de *clusters*. A geometria utilizada refere-se ao trabalho experimental de Van den Moortel et al. (1998), onde tem-se um reator com as dimensões de 20 cm x 20 cm e comprimento total de 200 cm.

Van den Moortel et al. (1998) utilizou partículas de 120 μm e densidade de 2.4 g/cm^3 . Neste trabalho foi utilizado partículas com diâmetro de 75 μm e densidade de 1.25 g/cm^3 . A velocidade de entrada do gás foi de 1 m/s e a do sólidos como apresentado no trabalho de Van den Moortel et al. (1998) e a fração volumétrica de entrada de sólidos de de 0.4. As simulações iniciam com as partículas uniformemente distribuídas no interior do reator e o gás é injetado na base.

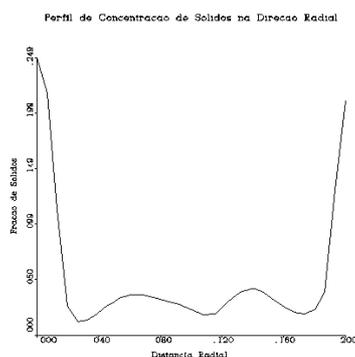


Figura 3. Perfil de concentração de sólidos em função do raio

O refino de malha na geometria descrita tem dimensões de volumes de 0.645 x 0.645 x 2.041 cm^3 tendo o menor volume uma dimensão na ordem de 0.5 cm, e o passo temporal na ordem de 10^{-5} segundos. Utilizou-se o pacote computacional CFX 4.4[®] para realizar as simulações utilizando-se o modelo apresentado na Tabela 1. Os resultados apresentados são para um tempo real de 0.9 segundos. É possível observar na Figura 2 a presença de clusters e caminhos preferenciais como citado no item anterior.

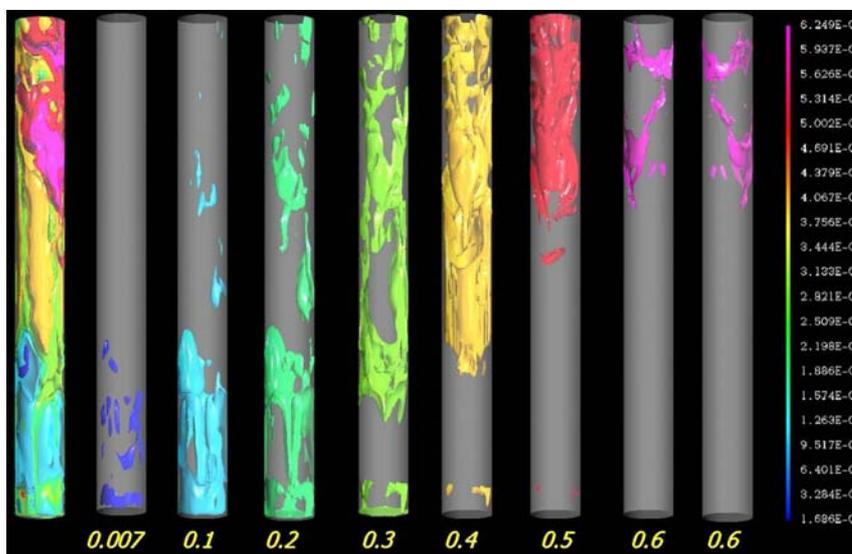


Figura 4. Isosuperfícies de fração de sólidos no interior do reator

A Figura 3 apresenta o perfil de concentrações de sólidos em função do raio, onde é possível observar concordância com o comportamento esperado, ou seja, há uma maior concentração de sólidos junto a parede em uma dada altura do reator, gerando assim velocidades de sólido menores junto a parede e uma zona onde há retorno de sólidos. Este comportamento foi observado experimentalmente, Agrawal et al. (2001), van Wachem (2000).

A estrutura tridimensional do escoamento gás-sólido é apresentada na Figura 4, onde tem-se isosuperfícies para diferentes frações volumétricas de sólido de acordo com a escala apresentada na figura. Desta forma fica claro com o apresentado neste trabalho, que é possível realizar um tratamento de imagens com a finalidade de caracterizar as estruturas da meso escala e correlacioná-las com variáveis macroscópicas. O tempo de formação e destruição pode ser

determinado, pois tem-se resultados transientes, de forma que o tempo de início e fim de uma estrutura de aglomerados de partículas é conhecido, bastando realizar estudo pertinente.

Podemos ainda observar através da Figura 4 que não há simetria na distribuição de concentrações de sólidos. Tendo em vista este fato, podemos afirmar que simulações em duas dimensões para este tipo de escoamento não são capazes de captar a física e os mecanismos reais. Fica então estabelecido, como sugere Agrawal et al. (2001), que o escoamento gás-sólido em leito fluidizado deve ser simulado em tres dimensões, justificando assim a utilização da malha tridimensional. O refino de malha deve estar na ordem de grandeza de algumas partículas (10-100) para que os efeitos da meso escala possam ser captados, como ressaltado anteriormente.

5. Conclusões

Apresentou-se possíveis formas de formação de *clusters* através de análise dos aspectos físicos associados ao escoamento gás-sólido na tentativa de tornar mais claro os mecanismos encontrados neste tipo de escoamento. O refino da malha computacional foi adequado para captar os *clusters* e caminho preferenciais. Os resultados apresentam-se coerentes com o esperado no que se refere à concentração de sólidos junto a parede e aos aspectos relacionados a tridimensionalidade das estruturas da meso escala, corroborando qualitativamente os resultados encontrados por Agrawal et al. (2001) e Zhang e VanderHeyden (2001). O modelo proposto com suas relações de fechamento foi capaz de representar os fenômenos inerentes ao escoamento gás-sólido não necessitando de modificações.

Trabalhos subsequentes tomarão a direção da caracterização destas estruturas utilizando-se tratamento de imagens, bem como acrescentar o balanço de energia e reações químicas, possibilitando então uma análise mais profunda da influência das estruturas encontradas na meso escala nas variáveis de processo e nos mecanismos de transferência.

6. Agradecimentos

O autor agradece ao apoio financeiro e institucional à Agencia Nacional de Petróleo - ANP.

7. Referências

- AGRAWAL, K., LOEZOS, P. N., SYAMLAL, M., SUNDARESAN, S. The role of meso-scale structures in rapid gas-solid flows. *J. Fluid Mech.*, v. 445, p. 151-185, 2001.
- ANDERSON, T. B., JACKSON, R. A fluid mechanical description of fluidized beds. *I & EC Fundamentals.*, v. 6, n. 4, p. 527-539, 1967.
- CHAPMAN, S., COWLING, T. G. The mathematical theory of non-uniform gases. *Cambridge University Press*, 3rd edition, 1970.
- GIDASPOW, D. Multiphase flow and fluidization. *Academic.*, p. 31-58, 197-238, 1994.
- HARRIS, A. T., DAVIDSON, J. F., THORPE, R. B., The prediction of particle cluster properties in the near wall region of a vertical riser (200157). *Powder Technology.*, v. 127, p. 128-143, 2002.
- HORIO, M. Cluster and agglomerate formation in fluidized suspensions. *Proc. 2nd Intl Conf. On Multiphase Flows, Kyoto.*, v. 3, 1995.
- LACKERMEIER, U., RUDNICK, C., WERTHER, J., BREDEBUSCH, A., BURKHARDT, H. Visualization of flow structures inside a circulating fluidized bed by means of laser sheet and image processing. *Powder Technology.*, v. 114, p. 71-83, 2001.
- LUN, C. K. K., SAVAGE, S. B., JEFFEREY, D. J., CHEPURNIY, N. Kinetic theories for granular flow: inelastic particles in couette flow and slightly inelastic particles in a general flowfield. *J. Fluid Mech.*, v. 140, p. 223-256, 1984.
- THEOLOGOS, K. N., NIKOU, I. D., LYGEROS, A. I., MARKATOS, N. C. Simulation and design of fluid catalytic-cracking riser-type reactors. *AIChE Journal.*, v. 43, n. 2, p. 486-494, 1997.
- VAN DEN MOOTEL, T., AZARIO, E., SANTINI, R., TADRIST, L. Experimental analysis of the gas-particle flow in a circulating bed using a phase doppler particle analyzer. *Chemical engineering Science.*, v. 53, n. 10, p. 1883-1899, 1998.
- van WACHEM, B. Derivation, implementation, and validation of computer simulation models for gas-solid fluidized beds. *PhD Thesis at Delft University of Technology*, 2000.
- ZHANG, D. Z., PROSPERETTI, A. Averaged equations for inviscid disperse two-phase flow. *J. Fluid Mech.*, v. 267, p. 185-219, 1994.
- ZHANG, D. Z., VANDERHEYDEN, W. B. High-resolution three-dimensional numerical simulation of a circulating fluidized bed. *Powder Technology.*, v. 116, p. 133-141, 2001.