

Mestrado Integrado em Engenharia Química

Hidrodinâmica em sistemas com estruturas do tipo open-cell foam: estudos com ferramentas de CFD

Dissertação de Mestrado

de

João Carlos Bento Barbosa

Desenvolvida no âmbito da unidade curricular de Dissertação

realizado em

Centro de Estudos de Fenómenos de Transporte

CEFT - FEUP



Orientador no CEFT-FEUP: Dr. José Daniel Araújo



Departamento de Engenharia Química

11 de fevereiro de 2019

Agradecimentos

Começo por agradecer ao Prof. Dr. Manuel Alves pela oportunidade de realizar esta dissertação, e por ter criado as condições para a sua realização.

Ao meu orientador académico, Dr. José Daniel Araújo, uma nota especial de agradecimento por toda a paciência, disponibilidade e ajuda indispensável e incansável à realização desta dissertação.

À minha família, uma palavra de agradecimento e carinho pelo amparo e apoio incondicional nesta e noutras jornadas da minha vida.

Aos meus amigos, a segunda família, um fraterno agradecimento pelas aventuras, camaradagem, apreço e cumplicidade que sempre tornam a vida e os seus desafios mais fáceis de vencer.

À Dra. Lucília Ribeiro, uma palavra de enorme agradecimento pelas consideráveis contribuições dadas durante o meu percurso académico neste curso.

Por último, estendo a minha gratidão a todos os que de forma direta ou indireta marcaram o meu percurso académico e pessoal até ao momento, e que me permitiram evoluir, quer como Homem quer como profissional.

Resumo

Dada a importância dos reatores catalíticos de leito fixo na indústria química, o estudo dos seus parâmetros de operação é essencial no seu projeto. Especial ênfase deve ser dada ao meio/suporte catalítico utilizado no reator, e às suas características, que têm implicações diretas nos fenômenos de transferência de massa e energia do sistema. Contrariando a tendência dos últimos anos, atualmente procura-se produzir leitos compostos por estruturas mais regulares e ordenadas em detrimento dos tradicionais enchimentos de partículas desordenadas. Dessa tendência surgem as estruturas denominadas por *open-cell foams*, apresentando quedas de pressão baixas e boas propriedades de transferência de calor e de massa. Para se estudar os fenômenos que ocorrem nesse tipo de estruturas as ferramentas que o CFD disponibiliza são de grande valor acrescentado. Utilizado para resolução de problemas complexos de mecânica de fluidos de difícil resolução analítica, o CFD é hoje em dia uma ferramenta de engenharia disseminada por inúmeros campos de aplicação dentro dos vários domínios da engenharia.

Com base no *software* de código aberto denominado por OpenFOAM®, realizaram-se um número considerável de simulações que replicam numericamente experiências de *tracer* (ou marcador) em sistemas monofásicos, essenciais para o diagnóstico da hidrodinâmica em leitos de enchimento. Neste estudo foram consideradas células unitárias com geometria cúbica para definir a estrutura da *foam*, e as simulações compreendem a variação de parâmetros como o comprimento total da estrutura, a velocidade superficial de entrada e a orientação da estrutura a nível da sua inclinação. Cada um destes parâmetros foi testado para um conjunto de valores que possa ser ilustrativo, tendo em conta as limitações da capacidade computacional e o tempo disponível, e com especial foco nos efeitos dispersivos e na queda de pressão no leito.

Após um pós-processamento apropriado dos dados obtidos nas simulações numéricas, foram determinadas as curvas da função de distribuição de tempos de residência cumulativa - $F(t)$ - e estimados valores para os parâmetros de dispersão axial, radial e queda de pressão. Na variação do comprimento da estrutura, tendo como base as curvas F referidas, a tendência dos valores dos coeficientes de dispersão e da queda de pressão, conclui-se que um comprimento de 4 cm (2 vezes o diâmetro) seria um bom compromisso para o trabalho em questão. Ao aumentar as velocidades de entrada, verificou-se uma subida progressiva dos valores de dispersão e da queda de pressão. No entanto, para os valores de *Reynolds* mais elevados do estudo, começa-se a verificar um comportamento oscilatório no escoamento, resultado em desvios ao regime puramente laminar, e que possivelmente indiciam a entrada em regime de transição. Em relação a possíveis inclinações/orientações da estrutura segundo planos

perpendiculares que passam nos seus eixos, apurou-se que será mais benéfico para a hidrodinâmica do sistema que se efetue uma dupla inclinação.

Palavras Chave (Tema): CFD, reator de leito fixo, queda de pressão, dispersão axial, dispersão radial, OpenFOAM®

Abstract

The study of hydrodynamic parameters of operation in fixed bed catalytic reactors is an essential task due to the relevancy of these operation units in chemical industry. Special emphasis should be given to the characteristics of the catalytic support used in the reactor, which have direct implications in mass and energy transport phenomena. In opposition to past tendencies, nowadays there is a demand for more regular and ordered structures in reactor beds, rather than random or unstructured packings. Following that trend, open-cell foam structures are emerging due to their low pressure drop and good mass and heat transfer properties. CFD tools are of great value to study the complexity and detail of the phenomena involved on these kinds of structures. Used in a great variety of fluid dynamics problems, CFD presents itself today as a vastly disseminated tool in countless fields of engineering applications.

Based on the open-source software OpenFOAM®, a set of simulations numerically replicating tracer experiences in single-phase systems were performed. This kind of approach is essential in the hydrodynamic diagnostics of the flow in packed beds. In this study, unitary cells with cubic geometry were considered to define the foam structure, and the simulations included the variation of parameters like total structure length, superficial inlet velocity and the tilt angles of the structure orientation. Each one of these parameters was tested for a limited set of values that can be illustrative, considering the bottlenecks of computational capacity and available time to perform this work. On those tests, special focus was placed on the quantifications of dispersive effects and pressure drop through the bed.

After a proper post-processing of the data produced in the numerical simulations, the cumulative residence time curves - $F(t)$ - were determined, as well as the values for the longitudinal and transverse dispersion and the pressure drop. Regarding the structure length variation, based on the results of the mentioned parameters and F curves, it was concluded that a good compromise for the present work can be achieved with a length of 4 cm (2 times the diameter). Increasing the inlet velocities led to a progressive growth of the dispersion coefficients and pressure drop values. Nevertheless, for the higher Reynolds number of this study, an oscillatory and unstable behavior in the flow was observed, which possibly indicates the first deviations from the laminar regime and the beginning of the transition regime. Regarding possible tilts/orientations of the structure to perpendicular plans that cross their axis, the simulation results show a clear benefit to the system hydrodynamics with a double tilt and preferably with tilt angles between 45° and 60°.

Keywords (Theme): CFD, fixed bed reactor, pressure drop, longitudinal dispersion, transverse dispersion, OpenFOAM®

Declaração

Declaro, sob compromisso de honra, que este trabalho é original e que todas as contribuições não originais foram devidamente referenciadas com identificação da fonte.

João Carlos Bento Barbosa

11/02/2019

Índice

1	Introdução	1
1.1	Enquadramento e Apresentação do Projeto.....	1
1.2	Apresentação do Instituto.....	3
1.3	Contributos do Trabalho.....	4
1.4	Organização da Tese	5
2	Contexto e Estado da Arte	6
2.1	Reatores químicos com leito fixo	6
2.2	Principais características hidrodinâmicas em reatores químicos de leito fixo	8
2.2.1	Dispersão Axial e Radial	8
2.2.2	Queda de Pressão.....	10
2.3	Mecânica de Fluidos Computacional e Simulação Numérica	12
3	Materiais e Métodos	16
3.1	Distribuição de tempos de residência	16
3.2	Modelização e simulação em CFD.....	17
3.3	Pós-processamento dos resultados numéricos	19
4	Resultados e Discussão.....	21
4.1	Visão Geral	21
4.2	Testes de malha	25
4.3	Testes de comprimento de estrutura	27
4.4	Efeito da velocidade superficial	29
4.5	Efeito do ângulo de orientação da estrutura	34
5	Conclusões	38
6	Avaliação do trabalho realizado	40
6.1	Objetivos Realizados	40
6.2	Outros Trabalhos Realizados.....	40
6.3	Apreciação Final	40
7	Referências.....	42

Apêndice A - O OpenFOAM®	45
A.1 Breve apontamento histórico.....	45
A.2 Curva de aprendizagem necessária e funcionamento geral do <i>software</i>	45

Lista de Figuras

<i>Figura 1. Exemplo ilustrativo da estrutura de uma open-cell foam (Wen-Yea Jang, et al. 2007)</i>	<i>1</i>
<i>Figura 2. Matriz catalítica de SiC com estrutura open-cell foam (Edouard et al. 2008).....</i>	<i>1</i>
<i>Figura 3. Impressão 3D em impressora comercial, por estereolitografia (FormLabs®).....</i>	<i>2</i>
<i>Figura 4. Imagem de TC de uma open-cell foam de poliéster (Wen-Yea Jang, et al. 2007).....</i>	<i>8</i>
<i>Figura 5. Ilustrações do tipo de geometrias utilizadas e os dois níveis de inclinação utilizados: vistas de cortes longitudinais na diagonal (linha superior) e frontal (linha inferior).</i>	<i>17</i>
<i>Figura 6. Representação dos passos necessários até chegar à malha para cálculo nas simulações: definir célula unitária, construir o STL da foam, criar o domínio que define o volume do sistema e divisão em pequenos elementos de volume</i>	<i>18</i>
<i>Figura 7. Representação dos campos de velocidade, pressão e concentração de tracer num corte longitudinal da malha. Estes campos dizem respeito a um tempo de simulação $3 \times \tau$.....</i>	<i>21</i>
<i>Figura 8. Campos de velocidade e concentração numa secção reta imediatamente posterior à saída da foam. Resultados para o final da simulação ($3 \times \tau$).....</i>	<i>22</i>
<i>Figura 9. Evolução temporal dos campos de concentração de tracer em dois cortes diferentes: longitudinal frontal (acima) e longitudinal diagonal (em baixo).</i>	<i>22</i>
<i>Figura 10. Representação da curva $F(t)$ obtida numericamente e da prevista pela equação (12) apresentada na secção anterior (gráfico acima). Curva da função $E(t)$ resultante da derivação dos resultados correspondentes de $F(t)$ (gráfico abaixo).</i>	<i>23</i>
<i>Figura 11. Representação da curva $F(t)$ obtida numericamente e prevista pela equação (15).</i>	<i>24</i>
<i>Figura 12. Ilustração das diferentes densidades das três malhas consideradas nos testes.</i>	<i>25</i>
<i>Figura 13. Comparação dos resultados de $F(t)$ obtidos nas simulações com as três malhas testadas. ..</i>	<i>26</i>
<i>Figura 14. Gráficos de barras representativos da dispersão axial, dispersão radial e percentagem de volume estagnado obtidas com as três malhas em teste.....</i>	<i>27</i>
<i>Figura 15. Curvas F em função do tempo adimensionalizado obtidas para simulações com diferentes comprimentos de estrutura e velocidade superficial de 0.03 m/s</i>	<i>27</i>
<i>Figura 16. Gráficos de barras com os valores da dispersão axial, dispersão radial e percentagem de volume estagnado obtidos nas simulações com diferentes nos comprimentos e velocidade superficial de 0.03 m/s.....</i>	<i>28</i>
<i>Figura 17. Curvas F em função do tempo adimensionalizado para cada velocidade superficial simulada. A estrutura considerada tinha 4 cm de comprimento e dupla inclinação de 45°.</i>	<i>30</i>
<i>Figura 18. Campos de concentração de tracer para as velocidades simuladas em $t=3\tau$ vistas em cortes longitudinais diagonais.</i>	<i>31</i>

Figura 19. Coeficientes de dispersão na forma adimensional em função do Pe molecular baseado na distância livre entre struts (acima). Percentagem de volume estagnado em função do Re baseado na mesma dimensão característica (abaixo). 32

Figura 20. Perfis de pressão média ao longo do leito para as diferentes velocidades superficiais em estudo. 33

Figura 21. Representação em escala logarítmica da queda de pressão em função do Re. Apresenta-se também um ajuste com funcionalidade idêntica à equação de Ergun. 33

Figura 22. Curvas F (acima) e E (abaixo) em função do tempo adimensionalizado para diferentes combinações de orientação da estrutura. 34

Figura 23. Gráfico das curvas F em função do tempo adimensional para vários ângulos de orientação da estrutura. 35

Figura 24. Campos de concentração de tracer para os diferentes valores de inclinação testados. Estes campos dizem cortes longitudinais para um tempo de simulação de 3τ 36

Figura 25. Coeficientes de dispersão adimensionais e percentagem de volume estagnado em função do ângulo de orientação de estrutura. 37

Notação e Glossário

A	Área	m^2
L	Comprimento	m
V	Volume	m^3
Q	Caudal	m^3/s
Re	Número adimensional de Reynolds	
K_1	Constante do termo linear da equação de Ergun	
K_2	Constante do termo quadrático da equação de Ergun	
D	Difusividade	m^2/s
D_M	Difusividade molecular	m^2/s
D_L	Dispersão axial	m^2/s
D_T	Dispersão radial	m^2/s
d	Diâmetro característico da célula	m
d_p	Diâmetro da partícula	m
u	Velocidade intersticial	m/s
U	Velocidade superficial	m/s
ΔP	Queda de pressão	Pa
Bo	Número adimensional de Bodenstein	
Pe	Número adimensional de Peclet	
Pe_L	Numero adimensional de Peclet axial	
Pe_T	Numero adimensional de Peclet radial	
C	Concentração	Kg/m^3
F	Concentração adimensional	
E	Distribuição dos tempos de residência	
z	coordenada longitudinal	m
r	Coordenada radial	m
R	Raio da coluna	m
R_i	Raio interno	m
t	tempo	s
J_0	Função de Bessel para ordem 0	
J_1	Função de Bessel para ordem 1	

Letras gregas

ε	porosidade	
ε_p	porosidade da partícula	
σ	desvio padrão	
τ	Tempo de residência	s
ρ	Massa volúmica	kg/m^3
μ	Viscosidade dinâmica do fluido	$Pa \cdot s$
θ	Tempo adimensional	
λ_n	Raiz positiva da função de Bessel de ordem 1	
α	Variação do valor dos ângulos de orientação da estrutura iguais	

Índices

p	Partícula
L	Direção axial
T	Direção radial
in	Inicial/À entrada
s	Saída
f	Fluido
$foam$	Malha

Lista de Siglas

3D	Tridimensional
CFD	Computational Fluid Dynamics
CAD	Computer Aided Design
TC	Tomografia Computorizada
RMN	Ressonância Magnética Nuclear
STL	Formato de ficheiro STereoLithography
RAM	Random Access Memory

1 Introdução

1.1 Enquadramento e Apresentação do Projeto

A presente tese incidiu sobre a caracterização do escoamento monofásico (fase líquida) em leitos preenchidos por estruturas tridimensionais abertas e reticuladas que resultam da repetição de células unitárias básicas (*open-cell foams*).

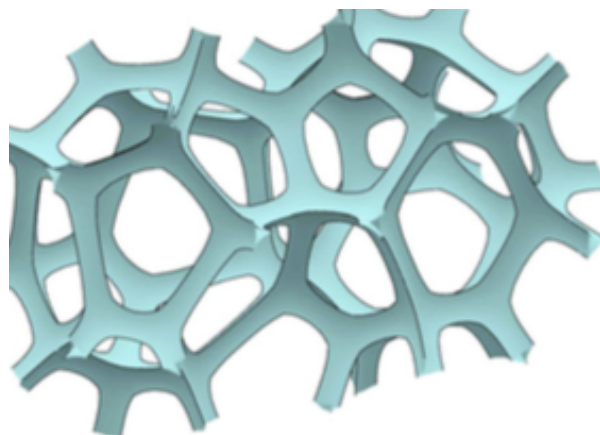


Figura 1. Exemplo ilustrativo da estrutura de uma open-cell foam (Wen-Yea Jang, et al. 2007)

As principais aplicações deste tipo de estruturas colocam-se no âmbito da engenharia das reações e de reatores, quer seja como suportes catalíticos com uma área superficial elevada, ou simplesmente como um enchimento que promova uma intensificação do nível de mistura no meio reacional.



Figura 2. Matriz catalítica de SiC com estrutura open-cell foam (Edouard et al. 2008)

É importante também notar que, dada a sua composição simples e repetitiva, e aproveitando a recente evolução das tecnologias de fabricação aditiva, as referidas estruturas podem ser otimizadas em função das necessidades/limitações de cada sistema e reproduzidas facilmente por impressão 3D.

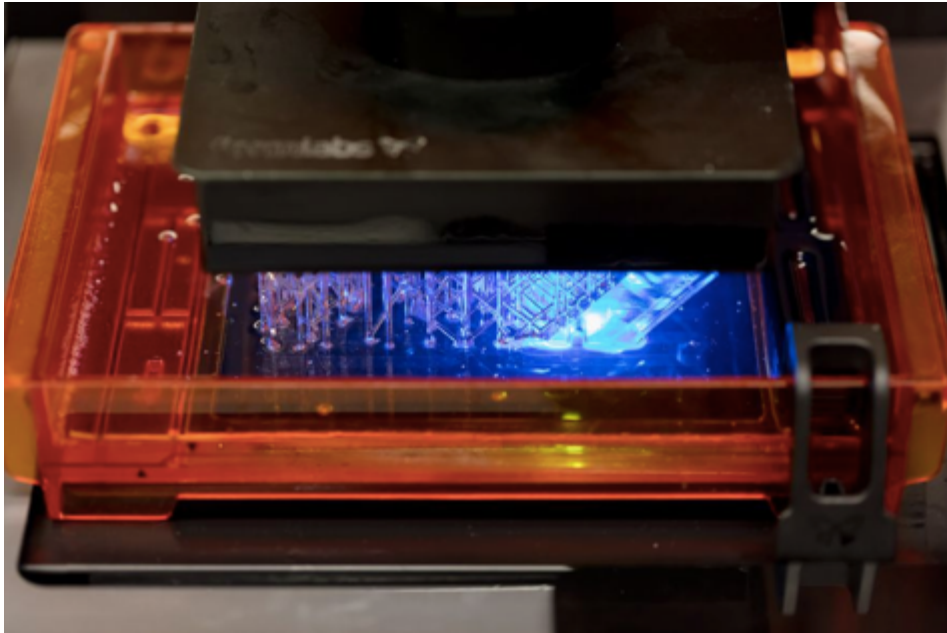


Figura 3. Impressão 3D em impressora comercial, por estereolitografia (FormLabs®)

O referido estudo hidrodinâmico foi baseado em simulações numéricas efetuadas com base em técnicas de Dinâmica dos Flúidos Computacional (CFD). Utilizou-se um *software open source* (código livre e aberto) de CFD - OpenFOAM® - e algumas das suas ferramentas associadas, nomeadamente para geração de malhas (BlockMesh e SnappyHexMesh) e tratamento de dados (ParaView®). Além disso, foi necessário gerar ficheiros em formato STL ((STereoLithography) para representar a geometria das estruturas em estudo. Neste caso, foi usado o Blender® que também é um *software* de código livre. Estes ficheiros STL são compatíveis com o OpenFOAM® e, apesar de fora do conteúdo deste trabalho, podem também ser utilizados diretamente para impressão 3D.

Os sistemas considerados nas simulações consistem em secções de tubos cilíndricos preenchidos com as estruturas mencionadas acima, de forma a ilustrar o que na indústria se observa como reatores de leito fixo. As células unitárias utilizadas nas estruturas (ou *open-cell foams*) deste trabalho têm uma geometria cúbica simples ou com inclinação em relação a planos perpendiculares que passam nos eixos, implicando diferentes orientações em relação ao escoamento de entrada o sistema. Todas as simulações efetuadas pretenderam replicar numericamente o que é normalmente denominado por experiências de distribuição de tempos de residência. Nestas simulações, as principais variáveis tidas em conta foram: o comprimento

total da *foam*, a velocidade média de líquido na entrada do sistema (diferentes caudais), e os ângulos de orientação da célula unitária. Os principais resultados globais obtidos foram a quantificação da dispersão axial, dispersão radial e queda de pressão neste tipo de estruturas, e os traços gerais da sua dependência em relação às variáveis referidas acima. Além disso, devido ao detalhe que se pode atingir com as técnicas de CFD, também foi possível prever a evolução temporal dos campos de escoamento (velocidade e pressão) e de concentração do *tracer*.

A elaboração de estudos hidrodinâmicos detalhados e pormenorizados em sistemas com leito fixo são essenciais em Engenharia das Reações, pois são a base que permite que se consiga chegar ao mais próximo possível da idealidade ou ótimo em diferentes meios reacionais. Nomeadamente, no que diz respeito a sistemas com *open-cell foams* com o tipo de geometria estudada, verifica-se uma quase inexistência de informação bibliográfica consistente e suficiente acerca dos referidos parâmetros hidrodinâmicos, o que valoriza a relevância deste trabalho e a necessidade de o aprofundar no futuro. Além do mais, este trabalho surgiu no seguimento de duas outras teses de Mestrado recentes, com a perspetiva de complementar os estudos com uma visão mais focada na componente numérica e de simulação.

Finalmente, é muito importante ter em conta que existiu uma considerável curva de aprendizagem na execução técnica da presente dissertação, indo além do plano curricular do mestrado integrado do qual esta faz parte, na medida em que tive de compreender com alguma profundidade o funcionamento dos *softwares* utilizados. Por conseguinte, uma fatia considerável do tempo da realização da dissertação foi dedicada a este aspeto. No entanto, uma vez que estamos a falar de ferramentas de utilização livre, a aquisição deste tipo de conhecimento poderá ser de uma importantíssima mais-valia no futuro, caso pretenda enveredar pela área da simulação numérica/CFD.

1.2 Apresentação do Instituto

O trabalho desenvolvido nesta tese foi realizado no Centro de Estudos de Fenómenos de Transporte (CEFT), que se encontra integrado na Faculdade de Engenharia da Universidade do Porto (FEUP).

O CEFT é uma unidade de investigação de investigação especializada no vasto domínio dos fenómenos de transporte (calor, massa e escoamento) que é comum às principais áreas de Engenharia Química e Engenharia Mecânica. Este grupo foi fundado em 1996 por 4 professores da FEUP e, neste momento, inclui 44 investigadores (dos quais 24 são membros permanentes) distribuídos por vários departamentos da FEUP e por outras instituições portuguesas. Esta unidade está preferencialmente vocacionada para a investigação fundamental onde atingiu um sucesso significativo e construiu um conhecimento científico de excelente qualidade. Como

principal *output*, este conhecimento fundamental tem contribuído positiva e frequentemente em várias aplicações práticas. Esta realidade tem permitido a colaboração e o enriquecimento através do contacto com um crescente número de investigadores ligados às mais variadas áreas científicas e pertencentes a uma vasta gama de instituições académicas, laboratórios de investigação privados e indústrias localizadas em Portugal e no estrangeiro.

A investigação que se faz no CEFT encontra-se estruturada em dois tópicos/ramos principais:

- Energia - neste ramo há um foco particular em combustíveis mais limpos, tais como gás natural e biomassa, e em questões relacionadas com o problema do carbono e a economia do hidrogénio. Estas questões prendem-se nomeadamente com a otimização e desenvolvimento de células de combustível e sistemas para a produção e armazenamento de hidrogénio.
- Fluidos - neste tópico são abordados vários temas que se relacionam e interagem bastante entre si: fluidos complexos, escoamentos multifásicos, fluidos inteligentes e biofluidos. Esta abordagem é suportada no elevado conhecimento dos investigadores do grupo tanto em técnicas experimentais apropriadas como em métodos computacionais avançados (particularmente CFD).

1.3 Contributos do Trabalho

Num plano pessoal, a grande mais-valia deste trabalho foi proporcionar a aquisição de competências em campos que extravasam o plano curricular do Mestrado Integrado em que a Dissertação se insere. Como por exemplo competências na área da ciência da computação, nomeadamente a programação em C++. Para além disso, a aquisição de conhecimentos em *software open-source*, neste caso o OpenFOAM®, acrescenta valor na medida em que é uma alternativa económica (e, por isso, atrativa para as empresas) aos *softwares* proprietários que são normalmente utilizados, dada a sua maior facilidade de operação, mas que acarretam custos consideráveis a nível de licenças anuais.

Neste trabalho, caracterizou-se, por intermédio de métodos de CFD, parâmetros que influenciam a eficiência de reatores químicos de leito fixo. Estudou-se a influência que o comprimento do meio catalítico, o caudal de fluido e a estrutura do enchimento têm em parâmetros como a dispersão axial, dispersão radial e queda de pressão. Este tipo de estudos em relação a estruturas do tipo *open-cell foam* ainda são um pouco escassos, não existindo uma base de dados ou correlações consistentes para os parâmetros referidos. Além do mais, no sentido de que os métodos utilizados, e desenvolvidos ao longo desta tese, são ainda pouco descritos na literatura, principalmente com o *software open-source* no qual se correram as simulações em CFD e se extraiu os dados a analisar, procura-se aprofundar este tipo de

abordagem à problemática da engenharia das reações recorrendo essencialmente a novas ferramentas computacionais.

1.4 Organização da Tese

No capítulo Contexto e Estado da Arte, os reatores químicos de leito fixo são introduzidos numa perspetiva técnica, sendo descritas as suas aplicações, funcionamento e características do foro hidrodinâmico. Ainda neste capítulo, apresentam-se as principais características da dinâmica de fluidos computacional, a sua importância, principais aplicações e funcionamento geral.

De seguida, em Materiais e Métodos, descrevem-se em detalhe o *software* no qual se realizaram as simulações e as metodologias aplicadas, bem como a forma como se analisaram os parâmetros em estudo: dispersão axial, dispersão radial e queda de pressão.

No capítulo dos Resultados e Discussão apresentam-se os dados relevantes extraídos das simulações executadas, começando por testes de malha e variando, como já foi dito anteriormente, os comprimentos da *foam*, velocidades média de entrada e ângulos de orientação. Discute-se também neste capítulo, de uma forma analítica e crítica, se os resultados obtidos vão de encontro ao que seria esperado.

Por fim, o capítulo reservado à Conclusão organiza a discussão feita no capítulo anterior de uma forma sumária e apresenta uma reflexão sobre a dissertação no seu todo, procurando apresentar possíveis melhorias para trabalhos futuros.

2 Contexto e Estado da Arte

2.1 Reatores químicos com leito fixo

É sabido que, na indústria química, os reatores são a base da maior parte dos processos industriais. Impera, portanto, uma necessidade constante de otimização destas unidades processuais, cujos objetivos variam conforme as necessidades e limitações de cada sistema. Alguns exemplos mais comuns deste tipo de objetivos são: melhorar eficiência térmica, diminuir a queda de pressão, aumentar a produtividade e/ou seletividade, diminuir a quantidade necessária de reagentes/catalisadores, etc.

Grande parte dos reatores utilizados na indústria são os chamados reatores com leito fixo, onde existe uma fase fluída que atravessa uma fase sólida, que pode atuar como meio catalítico ou potenciar/melhorar o grau de mistura da fase fluída. As principais razões da sua utilização e importância são devidas ao facto de permitirem a existência de uma considerável superfície de contacto entre a fase sólida e a líquida, mantendo uma queda de pressão aceitável ao longo do leito.

No contexto da aplicação de reatores com leito fixo, pode-se dar como exemplos de aplicação deste tipo de reator, os seguintes (Horneber et al. 2014; Ribeiro et al. 2010):

- Colunas de enchimento para limpeza de ar poluído (quando utilizado em regime de queda de pressão elevada);
- Utilização na indústria automóvel nos sistemas de escape para controlo de emissões gasosas dos motores;
- Tratamento de águas residuais;
- Indústria alimentar;
- Utilização sem reação química como permutador de calor.

Na Engenharia Química os meios porosos/enchimentos que compõem os catalisadores, são uma constante em reatores e reações catalíticas. Esses meios porosos apresentam características físicas e químicas próprias, e têm parâmetros de processo associados que assumem papéis de relevância no desenrolar das reações químicas, afetando decisivamente, a seletividade das reações químicas e a produtividade dos reatores. Torna-se necessário, então, controlar e prever a dinâmica do fluído dentro do reator, com vista a otimizar o rendimento pretendido e a obter condições de operação fiáveis, sobretudo em contexto industrial (Horneber et al. 2014).

Os tipos de enchimento num leito fixo eram constituídos na maior parte das vezes por um aglomerado desorganizado de partículas de geometria idêntica ou variável. No entanto, nas últimas décadas, as estruturas mais regulares e ordenadas (tais como os monólitos e estruturas

do tipo misturador estático) tornaram-se, em inúmeras situações, uma alternativa mais vantajosa do que enchimentos por partículas desordenadas. Mais recentemente, surgiu uma “família” de estruturas denominadas *open-cell foams* (estruturas 3D compostas pela repetição ordenada de células unitárias de geometria simples) (Horneber et al. 2014), que tem cativado bastante o interesse da comunidade científica. A utilização de leitos do tipo estruturados trouxe grandes vantagens aos reatores químicos (Bastos Rebelo et al. 2018). Comparativamente a enchimentos desordenados, os leitos estruturados oferecem baixas quedas de pressão, devido à sua elevada porosidade, boas propriedades de transferência de calor e grande capacidade de promoção de mistura radial. Estes dois últimos fatores são particularmente relevantes nas chamadas *open-cell foams* devido à elevada interligação que este tipo de estruturas oferece por possuir uma geometria reticulada e mais “aberta”.

As estruturas compostas por células unitárias, sendo materiais bastante relevantes por terem elevada porosidade, baixa densidade, boa resistência mecânica e grande área de superfície, tendo sido nestes últimos anos alvo de várias aplicações industriais que foram descritas acima (Lucci et al. 2014). Além disso, e dependendo das propriedades térmicas destas estruturas, a sua disposição em rede também poderá promover uma maior capacidade de transferência de calor, o que é essencial em sistemas muito exotérmicos e com tendência a criar zonas com temperaturas excessivas. No entanto, os autores referem também que nos numerosos trabalhos de investigação acerca deste tipo de estruturas, dada a sua grande variabilidade em propriedades químicas e geométricas, ainda não existe um sentimento de convergência nos resultados obtidos numa perspetiva comparativa. Não existem correlações aceites pelos pares, e, portanto, torna-se ainda pouco direta a sua utilização em aplicações de engenharia, colocando a descoberto a necessidade de investigação mais aprofundada nesta temática.

As simulações mecânicas, térmicas e de dinâmica de fluidos, requerem um modelo geométrico preciso, que normalmente derivam de imagens obtidas através de tomografias computadorizadas (TC) (Storm et al. 2013). Este método tem algumas desvantagens, como por exemplo, ser um processo caro e demorado, nem todos os materiais podem ser analisados, bem como a sua resolução nem sempre é suficientemente alta para por a descoberto detalhes importantes da estrutura. Como alternativa à TC, são usados modelos gerados computacionalmente, criando para isso o esqueleto da estrutura e passando-o para modelo tridimensional digital, que será falado mais em pormenor adiante (Storm et al. 2013). Estes modelos representam assim com maior precisão as principais características das estruturas, como o tamanho das células, a forma e espessura das arestas (*struts*), a abertura da janela da célula unitária, a área de superfície, o grau de anisotropia, etc.

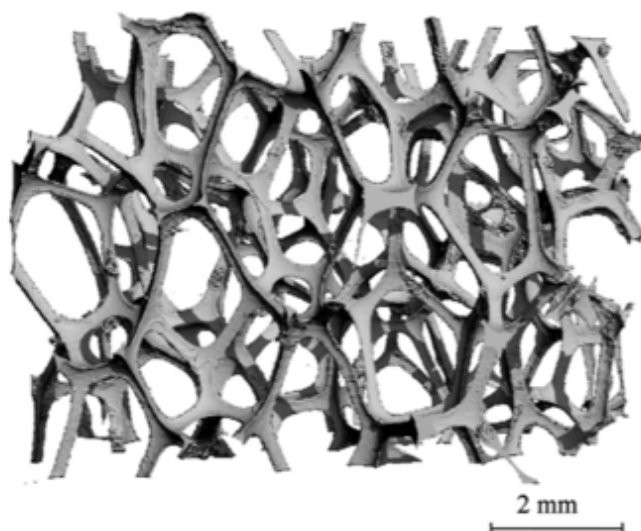


Figura 4. Imagem de TC de uma *open-cell foam* de poliéster (Wen-Yea Jang, et al. 2007)

Tendo em conta que a presente tese irá incidir sobre estruturas compostas por células unitárias iso-reticulares, ou *open-cell foams*, com vista a simplificar a análise e construção destas, as suas estruturas têm sofrido uma modelação com topologias simples e regulares, como a célula cúbica (Bastos Rebelo et al. 2018), ou, também com grande relevo atualmente, a célula tetracaidecátrica ou Kelvin-Cell, (Bianchi et al. 2015). Para além disso, este tipo de estruturas (do género *open-cell foam*) possuem uma flexibilidade geométrica interessante para se adaptar ao estudo que se pretenda realizar, bem como um bom leque de aplicabilidade em diversos campos da engenharia, como por exemplo o fabrico de componentes estruturais em material biomédico, a utilização em soluções de permutadores de calor ou substratos catalíticos (Della Torre et al. 2015).

2.2 Principais características hidrodinâmicas em reatores químicos de leito fixo

A caracterização hidrodinâmica do escoamento em leito fixo é um tema de central importância na engenharia química, sendo, por isso, tratada com o detalhe necessário. Para esse efeito, neste trabalho foram tidos em conta parâmetros relacionados com efeitos dispersivos e a queda de pressão.

2.2.1 Dispersão Axial e Radial

Por definição, é chamado de dispersão ao processo de “espalhamento” ou distribuição de uma dada substância (ou soluto) num determinado meio. O seu coeficiente, expresso em m^2/s , quantifica este processo de distribuição do fluido em escoamento de uma forma expedita, onde um maior coeficiente significa uma distribuição mais rápida no meio e um menor coeficiente

representa uma distribuição mais lenta. A um nível macroscópico, a dispersão é um fenômeno regulado pela hidrodinâmica do sistema, e poderá ser descrita quantitativamente por uma equação análoga à lei de Fick, substituindo o coeficiente de difusão molecular (D_m) pelo correspondente coeficiente de dispersão (Guedes de Carvalho e Delgado, 2003). Para velocidades de escoamento muito baixas, o fenômeno deixará de ser controlado por efeitos convectivos e, no limite, a dispersão será unicamente descrita pela difusão molecular. Também é importante notar que a dispersão ocorre em diferentes direções, pelo que, em reatores de leito fixo são normalmente considerados dois tipos de coeficientes dispersivos: axial ou longitudinal (D_L) e radial ou transversal (D_T).

O modelo da dispersão axial, ou pistão difusional, descreve desvios ao sistema ideal que é um reator do tipo pistão (Levenspiel, 1999). Pode ser aplicado em vários tipos de regime de escoamento, como os turbulentos em tubos, laminares em tubos muito longos, escoamento em leitos fixos, etc. Este modelo é também frequentemente usado para suportar o estudo da distribuição dos tempos de residência em reatores (Hutter et al. 2010).

Um dos grupos adimensionais utilizados para caracterizar a distribuição por todo o volume do meio é conhecido pelo inverso número de *Bodenstein* (Levenspiel, 1999):

$$\frac{1}{Bo} = \frac{D}{u \cdot L} \quad (1)$$

onde D corresponde ao coeficiente de dispersão, u corresponde à velocidade do fluido e L ao comprimento característico do meio em estudo.

Observa-se então que quando o inverso do número de *Bodenstein* tende para 0, a dispersão é desprezável, e estamos perante escoamento pistão. Na outra face da moeda, quando tende para infinito, existe um considerável grau de dispersão, estamos perante um escoamento com grande grau de mistura.

Existe, no entanto, um número adimensional mais comum para descrever a dispersão em meios porosos: o número de *Péclet* (Hutter et al. 2010). Que é dado por:

$$Pe = \frac{u \cdot d}{D} \quad (2)$$

onde u corresponde à velocidade no meio e d a uma dimensão característica. Em função do coeficiente de dispersão considerado D , este número poderá ser utilizado em diferentes versões (axial, radial e molecular):

$$Pe_m = \frac{u \cdot d_p}{D_m} \quad (3)$$

$$Pe_L = \frac{u \cdot d_p}{D_L} \quad (4)$$

$$Pe_T = \frac{u \cdot d_p}{D_T} \quad (5)$$

No que diz respeito à dispersão radial, os seus coeficientes, D_T , são geralmente medidos em condições na ausência de reação, visto que a transferência de massa, quando observada experimentalmente, tem dependência direta com o valor deste coeficiente. Por isso, uma técnica utilizada para a medição da dispersão radial, em leitos fixos, consiste em alimentar de forma contínua o *tracer* numa zona central da corrente de entrada, analisando em função do tempo a concentração na corrente de saída nessa mesma zona (Delgado 2006). Desta forma, consegue-se perceber e quantificar a distribuição do *tracer* para fora da referida zona central, i.e., o efeito do leito na dispersão radial.

2.2.2 Queda de Pressão

A queda de pressão entre dois determinados pontos, com fluido entre eles, pode ser definida como a diferença de pressão entre estes, devido a perdas de carga causadas pelas forças de atrito ao escoamento (Campos 2013).

O estudo da queda de pressão em reatores de leito fixo é igualmente importante no seu projeto. A queda de pressão de um reator de leito fixo é uma propriedade que depende em grande medida da geometria e do tamanho da estrutura utilizada no leito. Considera-se de importância elevada o parâmetro porosidade no que diz respeito à sua interferência na queda de pressão, sendo que a geometria e o tamanho da estrutura influenciarão em grande medida esse mesmo parâmetro, e prova disso é a conhecida equação de Ergun (Afandizadeh e Foumeny, 2001):

$$\Delta P = \frac{K_1 \mu L}{d_p^2} \frac{(1 - \varepsilon)^2}{\varepsilon^3} u + \frac{K_2 L \rho}{d_p} \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon^3} u^2 \quad (6)$$

Em que as constantes K_1 e K_2 são obtidas experimentalmente e, tipicamente, utiliza-se $K_1 = 150$ e $K_2 = 1,75$. A viscosidade cinemática é dada por μ , o comprimento do leito por L , a massa volúmica por ρ , a porosidade do meio por ε .

A equação anterior poderá também ser definida na forma $\Delta P/L$ em função do número de *Reynolds* (um dos mais importantes grupos adimensionais na caracterização do escoamento):

$$Re = \frac{\rho \cdot u \cdot d_p}{\mu} \quad (7)$$

Alterando, portanto, a geometria e o tamanho das estruturas utilizadas nos leitos, ajustará, também, a porosidade, mediante aquilo que se pretenda obter no que diga respeito aos parâmetros em estudo, não só os já falados (dispersão axial e radial) como também a queda de pressão. Pela análise da equação de Ergun facilmente se percebe que uma baixa porosidade do leito implicará uma maior queda de pressão, algo que vai contra aquilo que normalmente se pretende no projeto de um reator deste tipo. Por outro lado, se estiver em causa um reator catalítico com reação nas paredes do enchimento, é necessária uma área superficial elevada de sólido, pelo que terá que existir um compromisso entre esta (e implicitamente a porosidade) e a queda de pressão.

No entanto, normalmente, os reatores com enchimento desordenado apresentam uma baixa porosidade, e, por isso, para caudais mais altos obter-se-á uma queda de pressão alta (Edouard et al. 2008). Esses tipos de caudais são muitas vezes necessários para se operar este tipo reatores com valores de seletividade viáveis. Poderá ultrapassar-se esse tipo de questões utilizando geometrias *open-cell foam*, onde se podem conseguir porosidades mais elevadas (mediante controlo da geometria e tamanho da célula unitária e da largura dos respetivos *struts*) mantendo uma área superficial em valores interessantes.

Por isso, interessa estabelecer paralelismos, por intermédio da literatura, entre aquilo que acontece à queda de pressão em leitos ordenados e em leitos desordenados.

Começando pelo comportamento em estruturas ordenadas, interessa focar as *open-cell foams*. Como já foi anteriormente visto, estas estruturas apresentam matrizes porosas interligadas, cujo espaço vazio permite a passagem do fluido. Conforme o regime em que esteja o escoamento, é aceite na comunidade científica que, num meio poroso genérico, existe um número de *Reynolds* crítico para ocorrer a transição de regime laminar para turbulento, sendo que o regime de escoamento é bastante dependente dos parâmetros geométricos, da porosidade e do tamanho dos poros. O que, considerando que o fabrico destas estruturas pode criar uma grande variedade de porosidades e tamanhos de poros, torna as *open-cell foams* interessantes para utilizar em diversos tipos de aplicações. Por isso, a caracterização da queda de pressão nestas estruturas ordenadas, em função das suas características geométricas, torna-se muitíssimo relevante. Para isso, as abordagens por CFD poderão ser muito úteis, em que duas assumem principal destaque: uma é considerar uma estrutura idealizada e periódica, gerada para coincidir com certos parâmetros globais tais como a porosidade, a outra é adotar técnicas de tomografia axial computadorizada, por raio-X, para se obter modelos digitais das estruturas físicas em estudo (Della Torre et al. 2013).

Por outro lado, no caso dos leitos desordenados, como os enchimentos de partículas de tamanho macroscópico num determinado volume, forma-se uma estrutura irregular com espaços vazios por onde passará fluido em escoamento. Este tipo de leito é bastante utilizado em operações unitárias diversas tais como a absorção, o *stripping* gasoso e nas destilações. Estas partículas podem ter tamanhos e formas aleatórias, como o carvão e a areia, ou regulares, como esferas de tamanho uniformizado. A seleção das partículas afeta em grande medida o desempenho do enchimento, devido às alterações de volume de espaço vazio disponível para o fluido escoar, tal como pelas alterações à área de superfície do leito. Posto isto, interessa estudar os parâmetros deste tipo de leito, e por isso a queda de pressão assume lugar de primazia nesse estudo, bem como os tempos de residência e as interações entre fluido e partículas do enchimento. Os métodos tradicionais de medição da queda de pressão nestes sistemas envolvem a determinação *in-situ* à entrada e à saída do leito ou em intervalos ao longo do comprimento do leito, à medida que o fluido escoar. Existem, no entanto, inúmeras correlações para se obter a queda de pressão, desde a década de 20, até à década de 50, neste último caso, com as equações de Ergun, que preveem a queda de pressão por unidade de comprimento do leito, para regime laminar ou turbulento. No entanto, enquanto que as abordagens experimentais e teóricas conseguem obter boas aproximações da queda de pressão, não permitem uma análise quantitativa mais completa e por isso uma abordagem combinando as ferramentas do CFD com tecnologias de imagem por ressonância magnética, com vista a criar modelos digitais detalhados das malhas à semelhança das tomografias axiais computadorizadas, emergem como uma mudança de paradigma que procura aproveitar os avanços tecnológicos das áreas da computação e da imagiologia para melhor investigar e compreender o espaço vazio deste tipo de leitos, a sua densidade e, mais importante neste contexto, a queda de pressão. Existem, porém, algumas limitações à simulação tridimensional de equipamentos à escala industrial, sendo mais simples assumir um enchimento regular em detrimento de um enchimento de partículas aleatório e irregular. A estratégia para contornar esta questão passa por simular uma porção de volume que seja suficientemente representativa do leito, e a partir de aí extrapolar esses resultados a todo o enchimento. Outra abordagem para esse desafio técnico seria utilizar técnicas de ressonância magnética ou tomografia computadorizada do domínio e de seguida discretizar esses dados para um modelo geométrico digital da malha (Baker et al. 2011).

2.3 Mecânica de Fluidos Computacional e Simulação Numérica

A Mecânica de Fluidos Computacional, ou Computational Fluid Dynamics, na sua sigla “CFD” é uma subdisciplina da área dos Fenómenos de Transferência, que combina a mecânica de fluidos clássica com a matemática e a computação, importante para melhor compreender e analisar a dinâmica de fluidos. De um ponto de vista de contextualização histórica, nos primeiros passos

deste campo da ciência, na década de 60, o CFD era principalmente utilizado, de forma limitada, na engenharia aeronáutica e aeroespacial, onde diversos grupos públicos e privados começaram a realizar simulações de escoamento, utilizando métodos numéricos variados e o poder computacional disponível à época. A realidade atual é bem diferente, onde o CFD, ocupa lugares de destaque nas mais variadas áreas da indústria e da academia, na resolução de problemas de elevada complexidade em muitas áreas da Engenharia: aerodinâmica, hidrodinâmica, combustão, eletrotecnia, engenharia estrutural, engenharia biomédica, etc. com especial ênfase neste trabalho na engenharia química. De salientar que a grande disseminação que o CFD tem vivido se deve, em grande medida, à evolução do poder de processamento dos computadores e também dos avanços científicos na área da matemática aplicada, dos métodos numéricos e da engenharia de *software*, principalmente desde a década de 90, onde se verificou uma maior facilidade de acesso a computadores competitivos do ponto de vista econômico e performativo (Versteeg e Malalasekera 1995).

Visto ser difícil analisar sistemas complexos experimentalmente em detalhe, a Mecânica de Fluidos Computacional procura obter soluções de modelos matemáticos que traduzem os fenômenos em estudo, utilizando para isso ferramentas computacionais assentes em métodos numéricos, já que normalmente estamos a falar de sistemas de equações diferenciais não-lineares que carecem de resolução analítica simples, e têm de ser resolvidas de uma forma iterativa. Geralmente, essas equações traduzem fenômenos de transferência de massa, energia e escoamento (Tu et al. 2008). Impera, portanto, uma necessidade de desenvolver modelos numéricos, e ferramentas computacionais, que possam obter validação no contexto experimental, de modo a caracterizar o comportamento do fluido num dado meio, desde a sua dinâmica, às suas propriedades no que diz respeito a fenômenos de transferência de calor. Permitindo mudar condições, parâmetros experimentais, estratégias de otimização, etc. (Della Torre et al. 2014).

É, portanto, vantajoso seguir uma abordagem de complementaridade entre a componente experimental e a componente de simulação numérica através da Mecânica de Fluidos Computacional. Desse modo, haverá uma maior facilidade em compreender os resultados obtidos, assim como nos permitirá adereçar o problema com maior precisão nos dados. Principalmente, quando se estudam fenômenos com particularidades que adicionem complexidade ao sistema, tais como escoamento turbulento, reação química, transferência de calor, etc. Além disso, este tipo de soluções de complemento à componente experimental apresentam vantagens econômicas na medida que apresentam um custo-oportunidade interessante quando se comparam simulações efetuadas computacionalmente com aquelas que teriam de ser efetuadas experimentalmente para se obter o mesmo objetivo, e provavelmente com menor precisão e detalhe, principalmente considerando, como já foi dito anteriormente,

a constante evolução dos sistemas informáticos que, invariavelmente, levam a uma tendência de diminuição dos custos de *hardware*. Outra vantagem interessante do CFD é a sua versatilidade, que nos permite, por exemplo, a simulação de sistemas que são simplesmente impossíveis (ou de possibilidade remota) de simular com fiabilidade, desde dinâmicas de sistemas biológicos a cenários de desastres nucleares (Tu et al. 2008).

A abordagem a um problema cuja resolução seja por intermédio de técnicas de CFD tem alguns passos importantes. Primeiramente é necessária uma discretização do problema em mãos, passando a geometria do sistema do domínio numérico para elementos de volume, onde é possível criar uma malha de duas ou três dimensões. A qualidade da malha na qual a simulação vai decorrer é de extrema importância para se obter bons resultados. O passo seguinte, passa por enquadrar os modelos matemáticos a utilizar para a simulação que se pretende emular, onde se pode, por exemplo, definir se nos encontramos em estado estacionário ou transiente, entre outros parâmetros que podem já estar, ou não, predefinidos no *software* de CFD a utilizar, e caso não estejam terão de ser devidamente programados. Por ultimo, há que estabelecer as condições-fronteira, e as condições iniciais, do problema, definindo todas as variáveis do domínio numérico do problema. A partir daí, a simulação corre, procurando resolver de forma iterativa as equações, até que se atinjam os critérios de convergência definidos pelo utilizador, e quando tal acontece, resta utilizar as ferramentas de pós-processamento dos resultados obtidos durante a simulação e deles extrair as ilações desejadas. Todo este processo varia, do ponto de vista do funcionamento, de acordo com o *software* que se está a utilizar, mas a abordagem geral é fundamentalmente a mesma (Blazek 2001).

Podemos dividir os *softwares* disponíveis no mercado para conduzir problemas de CFD em dois grupos: o *software* proprietário, de código privado (fechado), e o *software* de código aberto ou *open-source*. Normalmente, os *softwares* proprietários, são ferramentas mais intuitivas para o utilizador, bem desenvolvidas pelos fabricantes, contemplam um grande número de ferramentas e funcionalidades de processamento e pós-processamento de dados sem haver a necessidade de programação. A grande desvantagem destas opções comerciais são os seus custos, onde normalmente as suas licenças de utilização anual são da ordem dos milhares de euros. Um bom exemplo deste tipo de *software* é o conhecido ANSYS Fluent®. Por outro lado, os *softwares* de código aberto normalmente não têm custos para o utilizador, e permitem que se possa controlar com muito mais extensão toda a simulação, já que se tem acesso ao código fonte do programa, podendo-se adapta-lo conforme aquilo que se pretenda. No entanto, é bastante mais difícil de o fazer, requerendo conhecimentos de programação e matemática para que as simulações tenham o desempenho esperado, algo que nos *softwares* comerciais é facilmente controlado através da sua interface. Um exemplo bem conhecido deste tipo de *software open-source* é o OpenFOAM®, com o qual se realizou o trabalho desta dissertação.

No que diz respeito à caracterização do escoamento do fluido pelo meio poroso, a maioria dos trabalhos presentes na literatura utiliza uma estrutura periódica idealizada, p.e. a Kelvin-Cell, de modo a contornar o desafio que a modelização numérica de estruturas de geometria complexa em simulação CFD (Della Torre et al. 2014). Algum enfase tem sido dado na literatura às *open-cell foams*, principalmente à Kelvin-Cell, onde análises numéricas têm sido feitas, baseando-se em amostras que podem ir desde simulações da uma única célula unitária até à simulação de todo o leito do reator. Estudam-se os efeitos à entrada, tais como a queda de pressão, estudam-se os efeitos das variações dos números adimensionais (*Reynolds*, conforme a velocidade, por exemplo), etc. Existe também um foco no estudo das propriedades locais do escoamento no meio, tais como a existência de volumes mortos (i.e., volumes estagnados ou zonas de estagnação), a ocorrência de reação química, fenómenos de transferência de massa e de calor, etc. Embora que, para se obter resultados credíveis acerca deste tipo de propriedades, seja conveniente a simulação da totalidade do reator (Horneber et al. 2012).

De facto, métodos sofisticados de analisar esse tipo de estruturas começam a ser implementados, tais como tomografias computadorizadas que processam a imagem com elevado detalhe, de modo a evidenciar o tipo de estrutura e a criar modelos tridimensionais de malhas sobre as quais se pode partir para as simulações realizadas em *software* próprio. Esses modelos em formato digital, normalmente, são do formato STL, uma abreviação do termo anglo-saxónico de *stereolithography*, ou estereolitografia, em Português. Este tipo de ficheiro digital é bastante utilizado no âmbito de aplicações de desenho assistido por computador, o vulgo CAD, e, mais recentemente, em aplicações de impressão 3D, prototipagem rápida e fabricação assistida por computador (Hassanin e Jiang, 2015).

3 Materiais e Métodos

3.1 Distribuição de tempos de residência

A determinação da distribuição de tempos de residência (DTR) é uma ferramenta simples e bastante eficaz para detectar desvios a padrões de escoamentos ideais e caracterizar a hidrodinâmica de um sistema, com particular relevância para aquelas que traduzem alguma complexidade como o caso de reatores de leito fixo (Fogler, 2016). Esta metodologia foi reportada pela primeira vez por Danckwerts (Danckwerts, 1953) e, desde então, tem vindo a ser extensivamente usada e discutida na literatura. A forma mais expedita de medir a DTR consiste na alimentação de um *tracer* (marcador) ao sistema seguida pela monitorização da evolução temporal da sua concentração na corrente de saída. Existem três formas principais de introduzir ou alimentar o *tracer* ao sistema: através de um pulso, degrau, ou alimentação periódica.

No caso dos estudos de DTR baseados em degraus de *tracer*, no instante inicial (tempo zero), a corrente de entrada é substituída por uma com o mesmo caudal volumétrico, mas com uma concentração de *tracer* diferente, até que se atinja um novo estado estacionário. Os resultados obtidos com este tipo de alimentação são as denominadas curvas de tempo de residência cumulativo:

$$F(t) = \frac{C_{out}(t)}{C_{in}} \quad (8)$$

Onde C_{out} representa a concentração média de *tracer* na corrente de saída, e C_{in} é a concentração média na corrente de entrada (que se admite ser constante após o degrau).

Esta curva $F(t)$ pode relacionar-se diretamente com a função de distribuição de tempos de residência $E(t)$:

$$F(t) = \int_0^t E(t)dt \Rightarrow E(t) = \frac{dF(t)}{dt} \quad (9)$$

e quantifica a porção de elementos de fluido com um tempo de residência entre 0 e t .

Uma outra variável importante que se pode determinar indiretamente através dos dados da concentração média de saída (e da curva F) é o tempo de residência médio no sistema (\bar{t}_R):

$$\bar{t}_R = \int_0^{\infty} t \cdot E(t)dt \quad (10)$$

A comparação deste valor de \bar{t}_R com o chamado tempo espacial (τ - razão entre o volume do reator e o caudal volumétrico) poderá ser um importante indicativo da existência de curto-

circuitos no sistema ($\bar{t}_R > \tau$) e/ou zonas de estagnadas ($\bar{t}_R < \tau$). Convém também referir que, para facilidade de comparação, por vezes é conveniente representar ou determinar as curvas F e E em função do tempo adimensional θ ($= t/\tau$).

3.2 Modelização e simulação em CFD

No âmbito desta tese, estudou-se e caracterizou-se, através de técnicas de CFD, a hidrodinâmica do escoamento monofásico, através de um leito cilíndrico com um enchimento do tipo *open-cell foam*, em analogia ao que se poderá encontrar num reator catalítico de leito fixo.

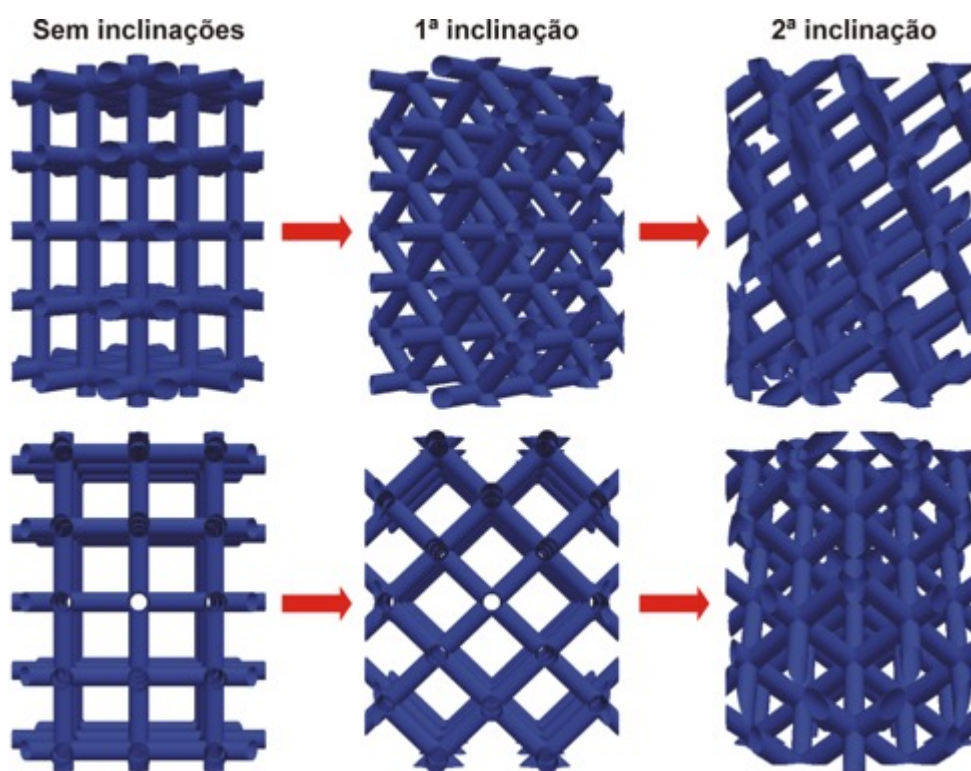


Figura 5. Ilustrações do tipo de geometrias utilizadas e os dois níveis de inclinação utilizados: vistas de cortes longitudinais na diagonal (linha superior) e frontal (linha inferior).

Esta estrutura é constituída por células unitárias com uma geometria cúbica e com diferentes inclinações/orientações em relação ao escoamento de entrada (ver figura 5). Foram também assumidas condições de sistema incompressível, isotérmico e fluídos Newtonianos. Foi realizado um conjunto de simulações que procuraram replicar numericamente as denominadas experiências de *tracer* de forma a produzir as correspondentes DTR (distribuições de tempo de residência), que são uma ferramenta essencial de diagnóstico de reatores, como já foi descrito na seção anterior. Estudou-se, então, o seu efeito em características importantes que influenciam a eficiência deste tipo de reatores, no caso a queda de pressão e os efeitos dispersivos, mais concretamente a dispersão axial e a dispersão radial.

Para o efeito, as simulações referidas foram feitas com base no *software open-source* OpenFOAM® e o leque de ferramentas incluídas. Antes de iniciar cada simulação, o primeiro passo para reunir as condições/informações necessárias a fornecer ao software, consiste na definição do domínio (volume de controlo) onde se irão desenvolver os cálculos. Esse domínio representa o volume por onde o fluido iria escoar e inclui duas partes: 1) a zona de espaço vazio entre a estrutura da *foam* e as paredes do reator; 2) duas pequenas câmaras (ou *buffers*) na entrada e saída do reator para conferir uma maior estabilidade aos cálculos e melhor definição das condições de alimentação do *tracer*. Deve-se então começar por criar um ficheiro digital (STL) que represente a estrutura da *foam* e, para todos os sistemas em estudo, isso foi feito previamente através do software livre Blender®. De seguida, com base no ficheiro STL e nas ferramentas BlockMesh e SnappyHexMesh, é gerada uma malha computacional que na prática consiste na divisão do domínio em pequenos elementos de volume. Estes passos estão ilustrados na figura 6.

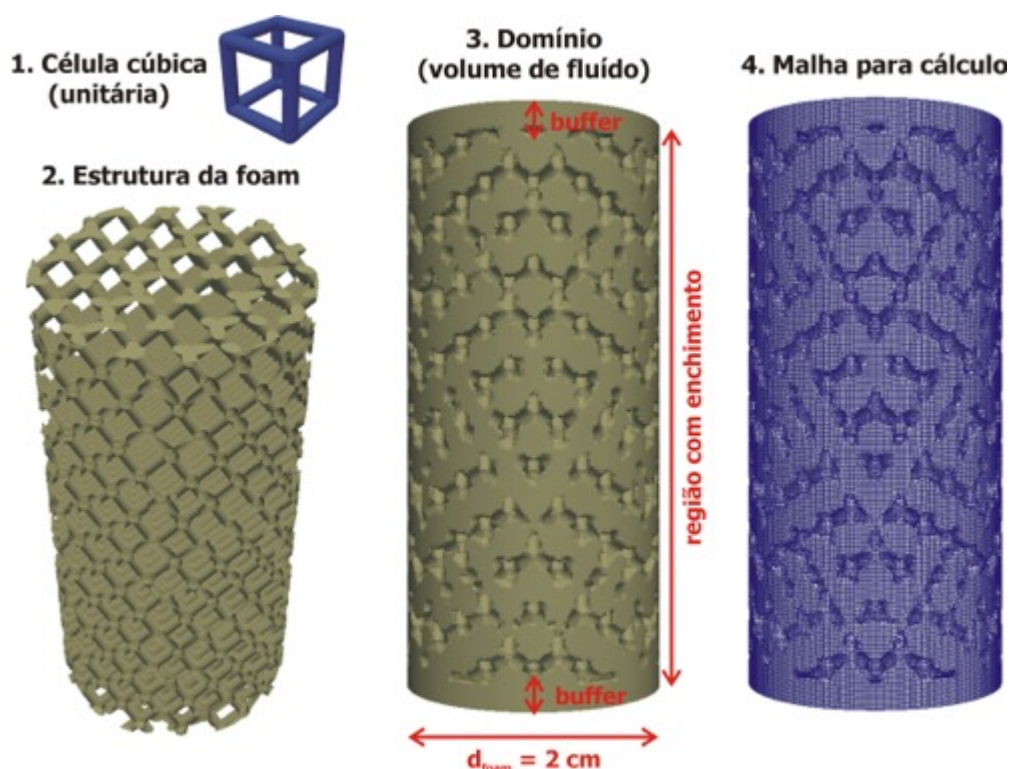


Figura 6. Representação dos passos necessários até chegar à malha para cálculo nas simulações: definir célula unitária, construir o STL da foam, criar o domínio que define o volume do sistema e divisão em pequenos elementos de volume

O *software* OpenFOAM® tem já uma série de programas base (*solvers*) com modelos implementados que poderão ser adaptados conforme as necessidades em causa. Para os sistemas em estudo, optou-se por um programa que inclui as equações de Navier-Stokes para escoamento monofásico e incompressível, em estado transiente e com possibilidade de ativar modelos de turbulência. No entanto, nesta tese foram utilizadas as definições do programa

para regime laminar. Em relação ao balanço ao *tracer*, foi necessário acoplar uma equação ao referido programa:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C = \nabla \cdot (D_m \nabla C) \quad (11)$$

onde C representa a concentração de *tracer* e D_m a difusividade molecular.

Em relação às propriedades físicas dos materiais, foi utilizada uma viscosidade cinemática do fluido de $1 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (semelhante à da água a $20 \text{ }^\circ\text{C}$) e uma difusividade molecular do *tracer* no fluido de $1 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$. Finalmente, antes de arrancar com as simulações em si, é necessário transmitir ao *software* quais são as condições-fronteira e iniciais dos campos de variáveis a calcular, isto é: componentes do vetor velocidade, pressão, e concentração de *tracer*. No instante inicial, todas estas variáveis são colocadas com um valor de zero. A velocidade média de entrada é definida na zona *inlet* como uniforme (e constante) e com um valor da sua coordenada em z (nas duas restantes será zero) que dependerá da simulação em causa. Em relação à pressão: gradiente igual a zero na entrada (*inlet*); zero na saída (*outlet*). Na concentração de *tracer*, foi assumido um valor de 1 kg/m^3 na zona central do *inlet* (com um raio de 0.25 cm) e de 0 kg/m^3 na restante secção de entrada. Na zona de saída, o gradiente de concentração foi definido como sendo também igual a zero. O sistema informático utilizado para efeitos de modelização e simulação CFD possuía uma unidade central de processamento Intel® Core i7-6700K com 4.0 Ghz de capacidade de processamento e 32 Gb de memória RAM.

3.3 Pós-processamento dos resultados numéricos

Os resultados das curvas DTR são frequentemente combinados com modelos unidimensionais de comportamento não ideal que derivam quer de balanços mássicos quer de modelos estatísticos e que, através de um ou vários parâmetros de ajuste, permitem estimar algumas grandezas características do sistema (Bittante et al. 2014).

No caso da quantificação da dispersão axial (ou longitudinal) é bastante comum utilizar o modelo de pistão difusional que, para um degrau de concentração à entrada de C_{in} , e resolvendo para a saída do leito ($z = L$), obtém-se a chamada equação de Danckwerts, deduzida em 1953:

$$\frac{C_{out}(t)}{C_{in}} = \frac{1}{2} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{L - u_{int}t}{2\sqrt{D_L t}} \right) \right] \quad (12)$$

Para os sistemas em estudo, as concentrações C_{out} e C_{in} foram calculadas como os valores médios nas secções retas imediatamente posteriores e anterior à zona da *foam*. Portanto, em cada uma das simulações, para a evolução temporal de C_{out} pode estimar-se a curva $F(t)$ e, de seguida, procurar ajudar essa curva à equação (12) tendo como parâmetro de ajuste o

coeficiente de dispersão axial (D_L). Estes ajustes foram efetuados por via da ferramenta *solver* do programa Microsoft *Excel* através do método dos mínimos quadrados.

Da mesma forma, também se pode estudar o comportamento do escoamento de um *tracer* numa entrada em degrau, mas neste caso tomando em consideração a coordenada radial, em relação ao eixo de simetria. A equação diferencial que traduz o balanço de massa ao soluto, considerando a coordenada radial, é a seguinte (Guedes de Carvalho e Delgado 2005):

$$\frac{D_T}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C}{\partial r} \right) = u \frac{\partial C}{\partial u} \quad (13)$$

Considerando que a velocidade e a dispersão radial (ou transversal) são independentes da posição, e sendo o *tracer* alimentado numa zona central da corrente de entrada, a solução proposta para a equação anterior é a seguinte (Hilby e Schummer 1960):

$$\frac{\bar{C}}{C_0} = 4 \sum_{n=0}^{\infty} \frac{J_1^2(\lambda_n R_i/R)}{\lambda_n^2 J_0^2(\lambda_n)} \exp \left[-\frac{L d}{Pe_T} \left(\frac{\lambda_n}{R} \right)^2 \right] \quad (14)$$

Onde J_0 e J_1 correspondem às funções de *Bessel* para ordem 0 e 1, respetivamente, λ_n corresponde à raiz positiva da função de *Bessel* de ordem 1 e Pe_T corresponde ao valor do número adimensional de *Peclet* radial.

Com a ajuda do *software* ParaView®, foram calculadas as concentrações médias na zona central (raio de 0.25 cm) das secções retas imediatamente anterior (C_0) e posterior (\bar{C}) à região da *foam*. Da mesma forma que foi feito para o coeficiente de dispersão axial, estes resultados permitiram estimar um valor de D_T por ajuste à equação (13). Novamente, estes ajustes foram efetuados pelo *solver* do Microsoft *Excel* através do método dos mínimos quadrados.

Para o estudo da queda de pressão no leito, para cada simulação efetuada, através do *software* ParaView® pode obter-se a variação temporal dos valores da pressão média em qualquer secção ao longo do domínio. Sendo assim, para as mesmas secções retas consideradas nos cálculos para a dispersão axial (imediatamente antes e depois da *foam*), foram determinados os valores da pressão média permitindo, de uma forma expedita, calcular a diferença entre os mesmos e assim obter a estimativa da queda de pressão através do leito.

4 Resultados e Discussão

4.1 Visão Geral

Considerou-se, para efeitos de base de sistema de referência nesta secção, aquele em que o comprimento da estrutura é de 4 cm com dupla inclinação de 45° e a velocidade superficial de 0.03 m/s. Além disso, as respetivas células unitárias foram definidas com o diâmetro dos *struts* de 0.1 cm e uma distancia livre entre os mesmo de 0.35 cm, o que conduz a uma porosidade de estrutura de 0.71. Nesta secção pretende-se dar uma visão geral dos campos das variáveis em questão (velocidade, pressão e concentração do *tracer*) e do que se pode estimar em termos de distribuição de tempos de residência. Sendo assim, para o tempo final de simulação (cerca de $3 \times \tau$), na Figura 7 encontram-se representados os campos das variáveis referidas num corte longitudinal da malha.

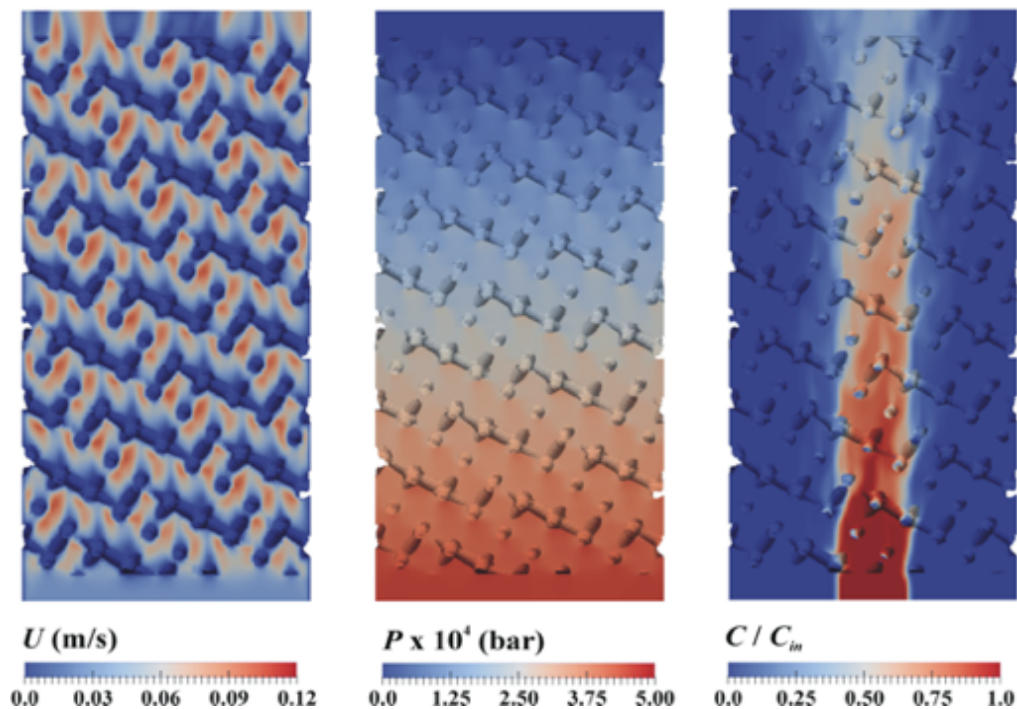


Figura 7. Representação dos campos de velocidade, pressão e concentração de *tracer* num corte longitudinal da malha. Estes campos dizem respeito a um tempo de simulação $3 \times \tau$.

Através da observação do campo de concentrações da Figura 7, pode-se inferir essencialmente um pouco de dispersão radial em termos qualitativos. Em relação à magnitude da velocidade, os seus valores atingem valores máximos cerca de 4 vezes superiores à velocidade média de entrada, e a queda de pressão parece ser relativamente baixa (na ordem 5×10^{-4} bar nos 4 cm de *foam*). Estas observações podem ser reforçadas através das representações na figura 8: campos de velocidade e concentração de *tracer* num corte imediatamente posterior ao final da *foam*.

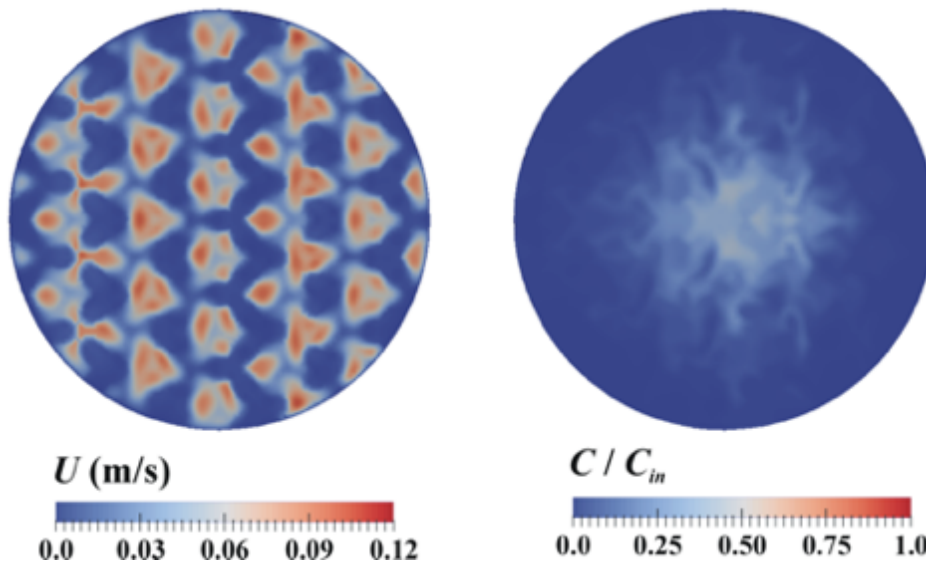


Figura 8. Campos de velocidade e concentração numa secção reta imediatamente posterior à saída da foam. Resultados para o final da simulação ($3 \times \tau$).

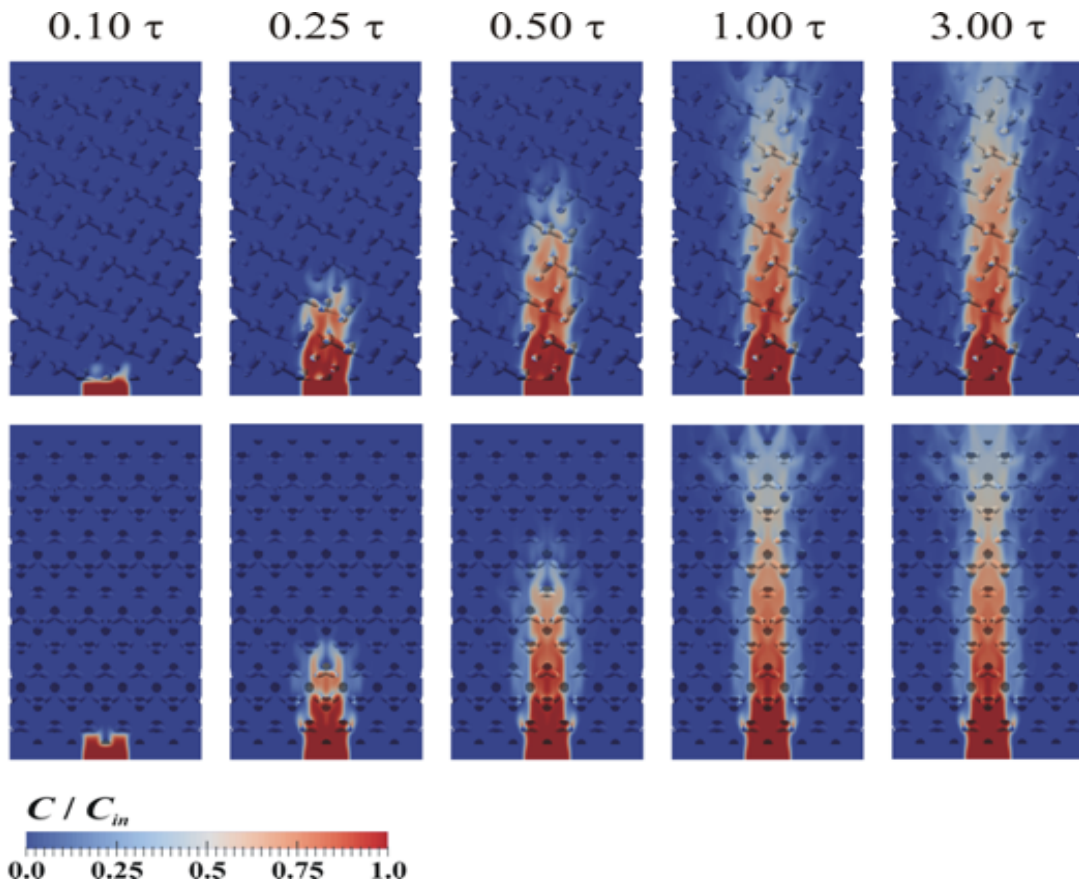


Figura 9. Evolução temporal dos campos de concentração de tracer em dois cortes diferentes: longitudinal frontal (acima) e longitudinal diagonal (em baixo).

Pela análise da figura 9, além de ser bem visível a esperada tridimensionalidade/assimetria do escoamento nestas estruturas (comparar as duas linhas de imagens), também se pode verificar que para um tempo de $0.5 \times \tau$, algum do *tracer* já ultrapassava a metade da estrutura, e para um tempo de residência (τ), a onda de concentração de *tracer* já teria chegado ao final da mesma. Isto será um indicativo da esperada não idealidade do sistema, ou seja, presença de uma dispersão axial considerável em detrimento de um escoamento puramente pistão.

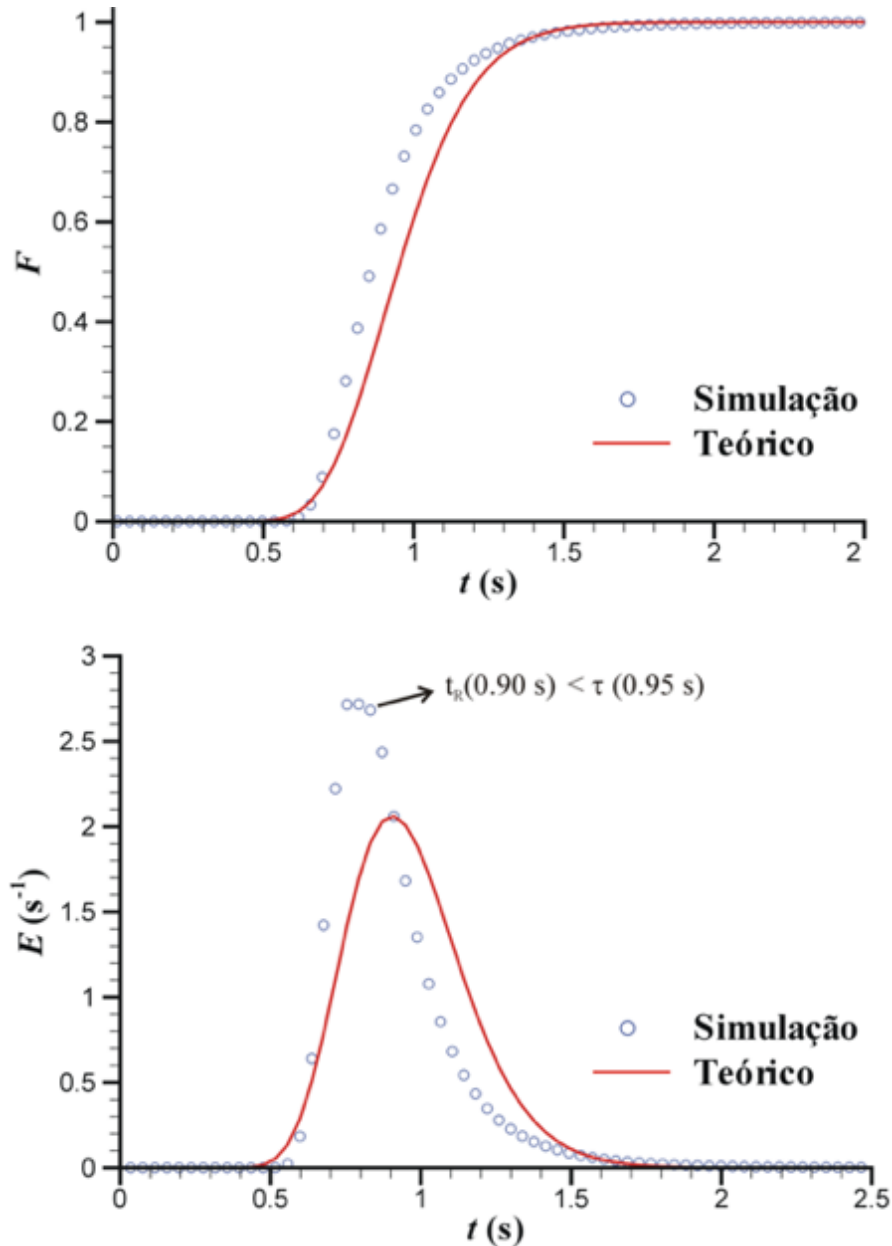


Figura 10. Representação da curva $F(t)$ obtida numericamente e da prevista pela equação (12) apresentada na secção anterior (gráfico acima). Curva da função $E(t)$ resultante da derivação dos resultados correspondentes de $F(t)$ (gráfico abaixo).

De seguida, passamos para a informação a extrair acerca da distribuição de tempos de residência a partir dos resultados numéricos obtidos, através da aplicação dos métodos de pós-processamento descritos na secção 3 da tese. Na Figura 10 estão representadas a evolução de

$F(t)$ baseada nos resultados da simulação à saída da *foam* (círculos azuis), e a curva análoga obtida pela equação (12) usando um valor de D_L após ajuste à $F(t)$ de simulação (linha vermelha). Pode-se observar uma espécie de desfasamento temporal entre as duas curvas de $F(t)$ referidas, o que levou a calcular a função $E(t)$ para ambas de forma a confirmar esta tendência (gráfico inferior da Figura 10). De facto, esse desfasamento é confirmado por dois fatores: 1) o tempo de residência médio obtido pelos dados de simulação (\bar{t}_R) é inferior ao valor de τ ; 2) a $E(t)$ calculada pelos mesmos dados apresenta assimetria (não é uma curva Gaussiana) e uma ligeira cauda à direita. Estes fatores são reveladores que o sistema provavelmente possui zonas estagnadas e que, portanto, o modelo de pistão difusional com um parâmetro não será o mais indicado para descrever as DTR obtidas. Por esse motivo, para contornar este problema, optou-se por introduzir mais um parâmetro (t_{stag}) na equação (12) para tentar contabilizar esta questão:

$$\frac{C_{out}(t)}{C_{in}} = F = \frac{1}{2} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{L - u_{int}(t + t_{stag})}{2\sqrt{D_L(t + t_{stag})}} \right) \right] \quad (15)$$

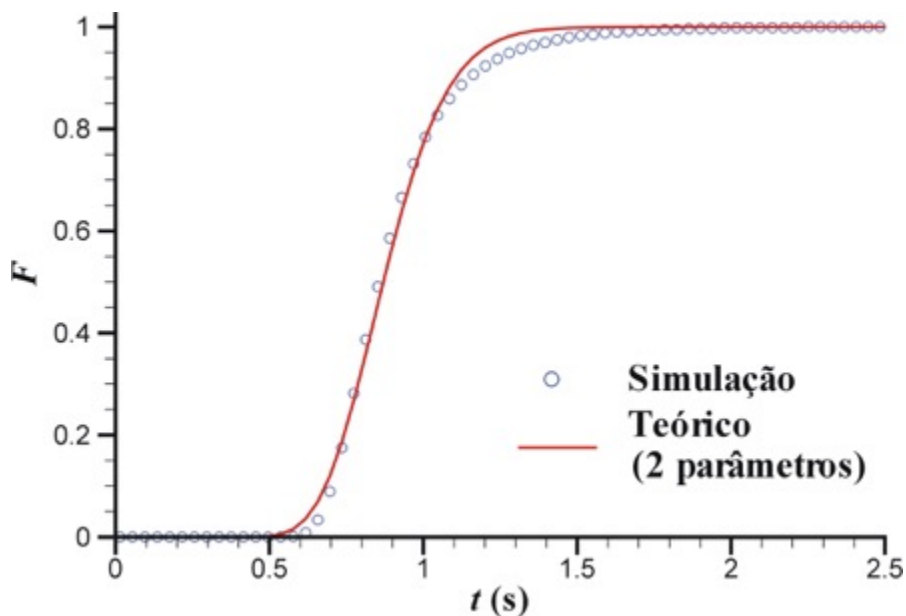


Figura 11. Representação da curva $F(t)$ obtida numericamente e prevista pela equação (15).

Na figura 11 pode-se então observar a melhoria do ajuste teórico aos resultados de simulação após a introdução de um novo parâmetro que tenta contabilizar possíveis zonas estagnadas. No caso deste sistema de referência (comprimento da *foam* de 4 cm, dupla inclinação de 45° e velocidade de entrada de 0.03 m/s), os valores obtidos para os dois parâmetros são: D_L de $2.53 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ e um t_{stag} que equivale a um volume estagnado ($V_{stag} = t_{stag} / \tau$) de cerca de 8% do volume total no interior da estrutura.

4.2 Testes de malha

Quando se inicia um estudo de CFD sobre um determinado fenômeno num sistema, a primeira etapa deverá passar sempre pela definição de uma densidade de malha apropriada para descrever esse mesmo fenômeno com credibilidade. Desta forma, devem-se efetuar testes de malha para tentar eliminar (o mais possível) os erros de precisão de cálculo e, idealmente, obter resultados independentes da densidade da mesma.

Por esse motivo, foram efetuados testes de malha neste trabalho, que se basearam na simulação do sistema de referencia usando várias densidades de malha (mais concretamente três), e a partir de aí compreender qual seria a malha mais apropriada para se correr as restantes simulações deste estudo.

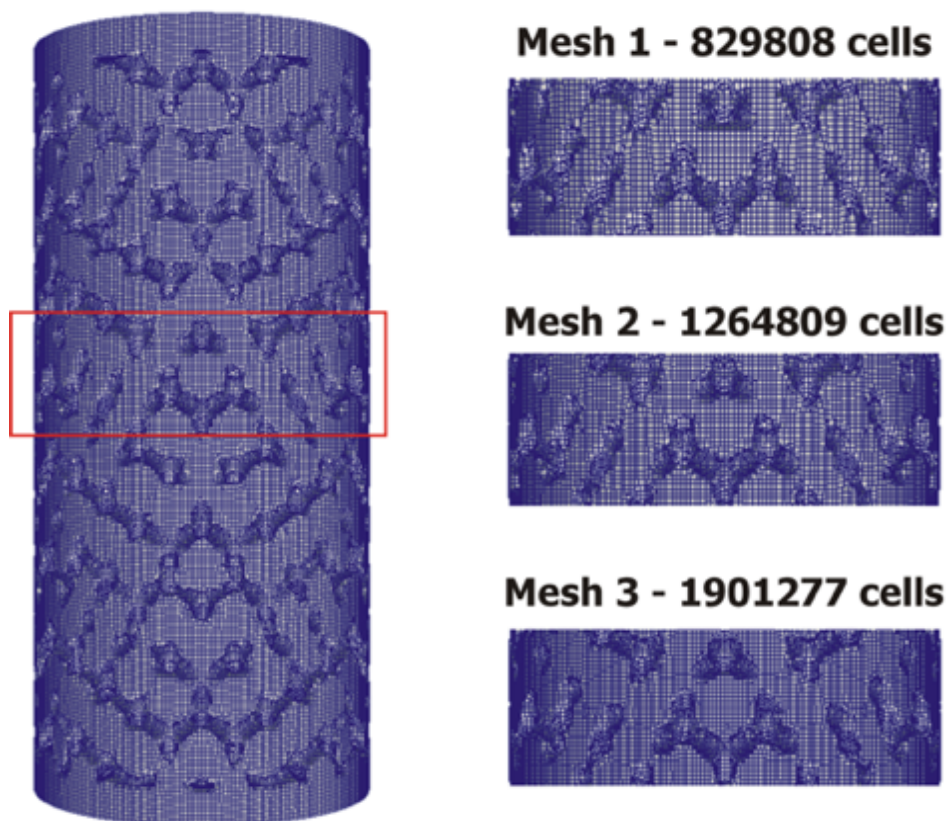


Figura 12. Ilustração das diferentes densidades das três malhas consideradas nos testes.

No entanto, numa vertente mais prática, não será só a precisão ideal dos resultados de simulação que deverá pesar na balança. Tendo em conta que quanto mais densa for a malha, maior será o seu nível de detalhe, o que levará a tempos de simulação cada vez maiores e a necessidades crescentes de poder de processamento, este aspeto também será muito relevante aquando da escolha. Para se ter uma noção mais real, em relação às 3 malhas testadas e representadas na figura 12: na malha 1 o tempo total por simulação foi de aproximadamente um dia, na 2 esse tempo subiu para cerca de três dias e na 3 foi chegou a ultrapassar uma semana.

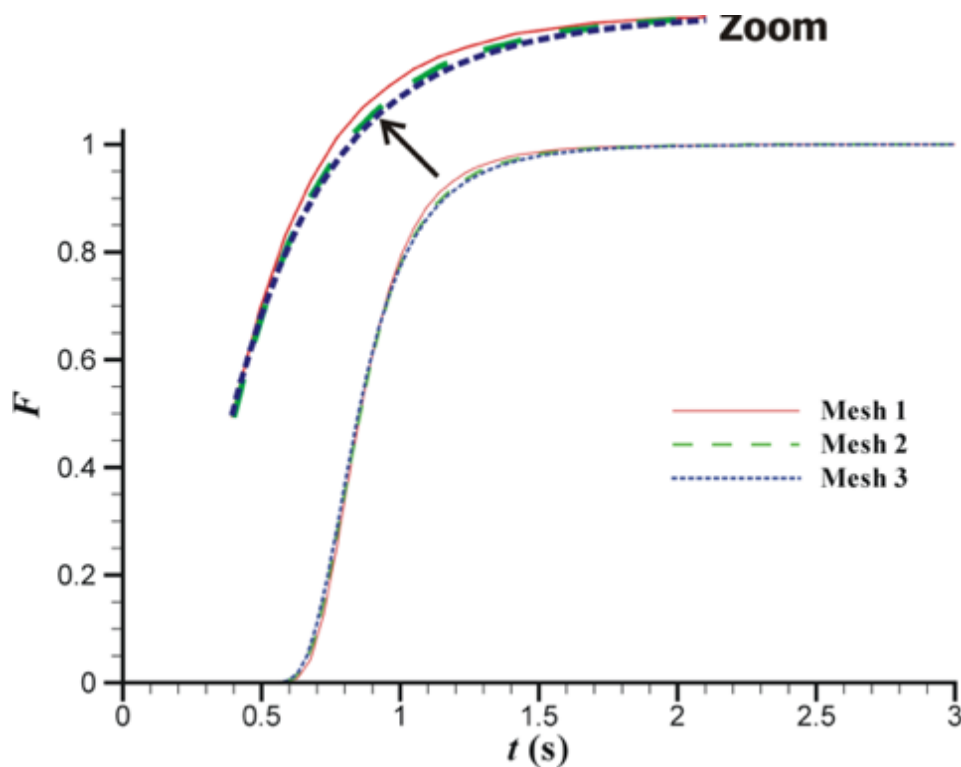


Figura 13. Comparação dos resultados de $F(t)$ obtidos nas simulações com as três malhas testadas.

Pela análise da figura 13, através da observação da zona onde a curvatura de $F(t)$ é mais acentuada (a zoom), consegue-se perceber que a malha 1 produz resultados um pouco mais distantes das outras duas. Em função disto, esta malha poderá ser uma candidata a ser descartada, em virtude de ter uma densidade mais baixa que poderá afetar demasiado a qualidade dos resultados.

Os gráficos de barras presentes na Figura 14 representam os valores das dispersões axial e radial e do volume estagnado estimados através dos resultados das simulações com as 3 malhas em testes. Além disso, tomando os valores para a malha mais densa como referência nesses gráficos, são também apresentadas as porcentagens dos restantes resultados em comparação com as respectivas referências (valores acima das barras). Os valores da queda de pressão não foram apresentados nesta figura pois são praticamente coincidentes entre as 3 malhas (cerca de 1.1×10^{-2} bar/m). Os resultados apresentados na Figura 14 vêm reforçar que a malha 1 deverá ser definitivamente descartada. Em relação à malha 2, esta apresenta uma boa aproximação àquela que, sendo a malha mais densa, teoricamente, deveria apresentar a melhor precisão: a malha 3. No entanto, tal como já foi referido, sem grande prejuízo para a qualidade dos resultados, é também preciso considerar que para a realização deste trabalho existem constrangimentos a nível de tempo e que, por isso, tempos de simulação muito elevados são proibitivos. Deste modo, entendeu-se que o melhor compromisso seria utilizar a malha 2 para as restantes simulações a executar neste trabalho.

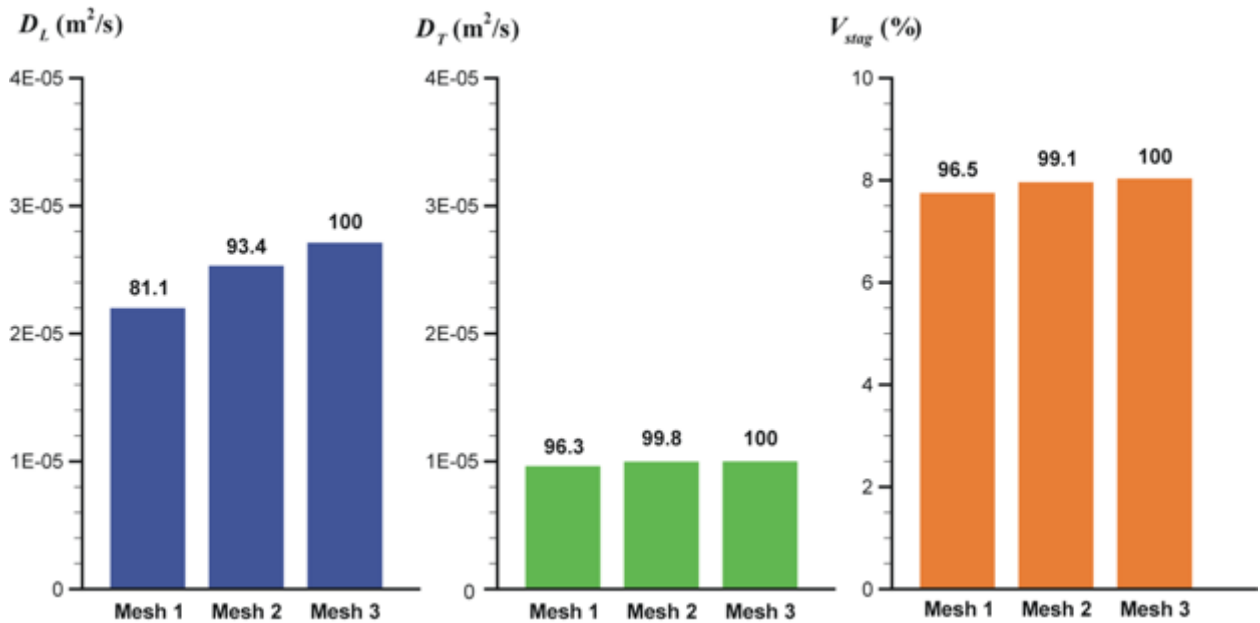


Figura 14. Gráficos de barras representativos da dispersão axial, dispersão radial e percentagem de volume estagnado obtidas com as três malhas em teste.

4.3 Testes de comprimento de estrutura

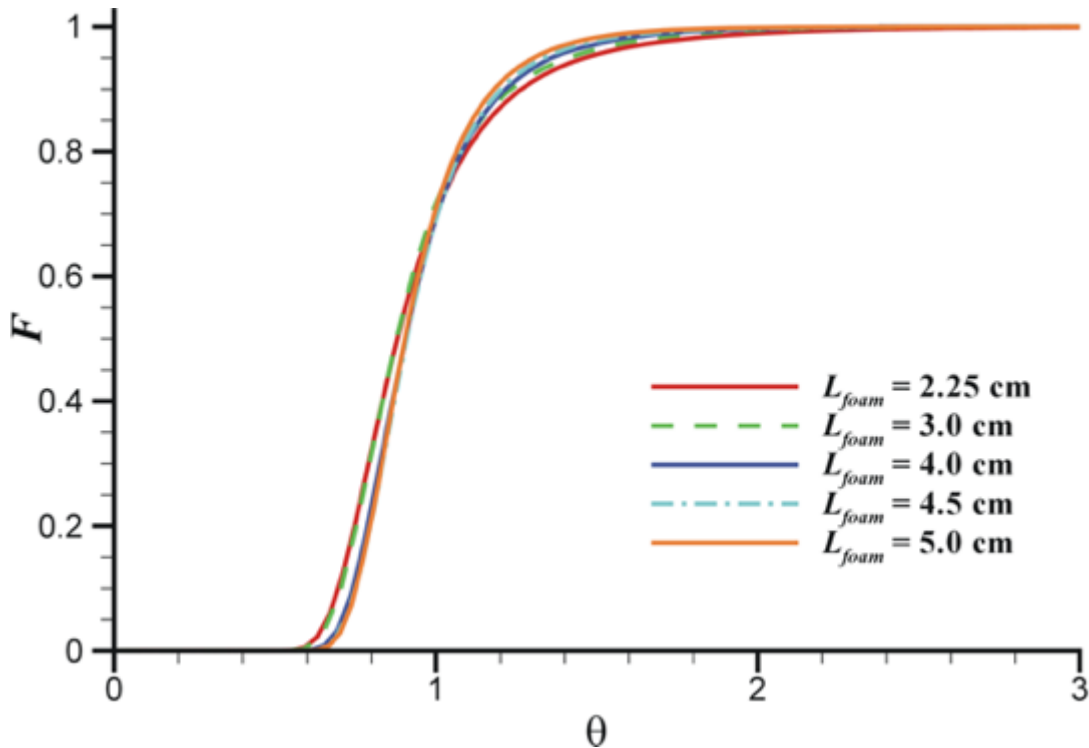


Figura 15. Curvas F em função do tempo adimensionalizado obtidas para simulações com diferentes comprimentos de estrutura e velocidade superficial de 0.03 m/s

Numa das séries de simulações (com velocidade superficial de 0.03 m/s e dupla inclinação de 45°), procurou-se testar vários comprimentos da *foam* com vista a compreender qual o valor mínimo que ainda seja representativo do escoamento através da estrutura e que, simultaneamente, também se enquadre na realidade deste trabalho de dissertação. Para isso, tem-se, igualmente, em conta as limitações que podem comprometer as simulações, uma vez que, da mesma maneira que uma densidade de malha maior acrescenta complexidade, e, por isso, aumenta o tempo de simulação, um aumento do comprimento da estrutura poderá levar, de forma semelhante, a tempos de simulação bastante acrescidos.

Na Figura 15 estão representadas as curvas numéricas de F em função do tempo adimensionalizado para os vários comprimentos de *foam* testados. Em virtude do observado nesta figura, percebe-se que para um comprimento de 4 cm já se começa a obter um bom compromisso uma vez que a curva de F respetiva se encontra razoavelmente sobreposta com as obtidas com comprimentos superiores.

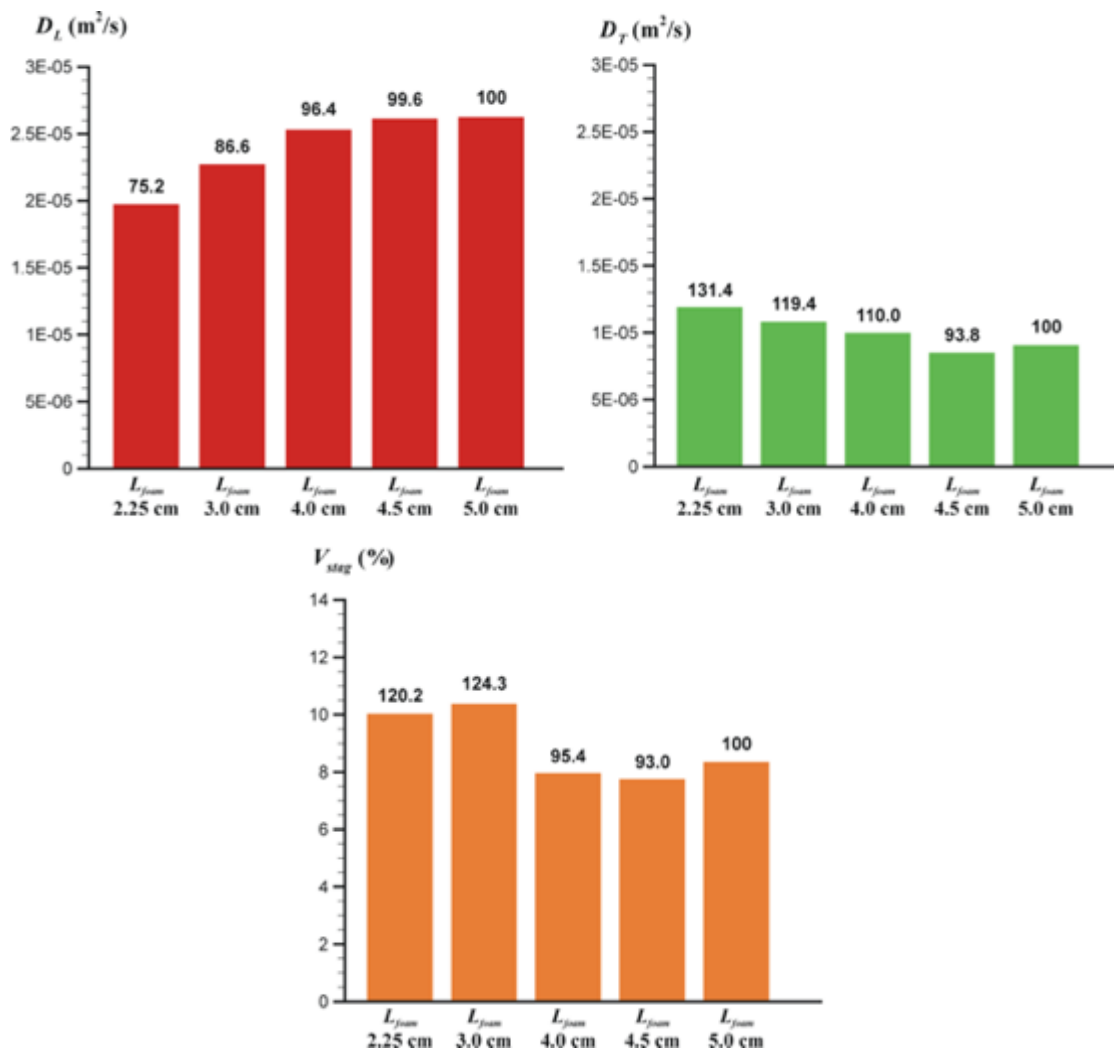


Figura 16. Gráficos de barras com os valores da dispersão axial, dispersão radial e percentagem de volume estagnado obtidos nas simulações com diferentes nos comprimentos e velocidade superficial de 0.03 m/s.

Analisando os resultados da Figura 16, observa-se que há um aumento da dispersão axial com o aumento do comprimento da estrutura, com uma diferença inferior a 5% entre os resultados para os 3 comprimentos mais elevados (4, 4.5 e 5 cm). No que respeita à dispersão radial, observa-se um comportamento oposto, onde a dispersão radial vai diminuindo com o aumento do comprimento da estrutura até ao caso de 4.5cm. Além disso, a diferença entre os valores para os 3 comprimentos acima referidos aumenta para 10%. No entanto, convém mencionar que a equação de ajuste para D_T (equação (14) na secção 3) resulta de uma derivação para sistemas em que há alguma homogeneidade na distribuição do enchimento. Nos casos em estudo, devido à inclinação das estruturas, haverá uma assimetria clara do escoamento em relação a uma zona central junto ao eixo do tubo, o que poderá influenciar a quantidade de *tracer* que passa nessa mesma zona central à saída para além dos próprios fenómenos dispersivos. Isto poderá ser particularmente relevante para diferentes comprimentos da estrutura, uma vez que esse comprimento influencia onde a estrutura é “cortada” (no topo e base). Sendo assim, os valores de D_T obtidos neste trabalho deverão ser olhados com algum cuidado, e assumir que, em alguns casos, a fiabilidade dos mesmos poderá estar limitada à sua ordem de grandeza. Quanto ao volume estagnado, existe novamente uma diferença inferior a 5% entre os resultados para os 3 comprimentos mais elevados (4, 4.5 e 5 cm). Tal como aconteceu nos testes de malha, os valores da queda de pressão não foram apresentados na Figura 16 pois são bastante próximos para todos os comprimentos (valores entre 1.1×10^{-2} e 1.2×10^{-2} bar/m).

Assim sendo, pela análise dos resultados das Figuras 15 e 16, assumiu-se que para um comprimento de *foam* de 4 cm se consegue um compromisso razoável no que diz respeito a um valor mínimo a admitir como representativo da estrutura, além de manter tempos de simulação e qualidade dos resultados também aceitáveis para o contexto desta dissertação.

4.4 Efeito da velocidade superficial

Neste trabalho avaliou-se também o efeito da velocidade superficial na DTR e nos valores dos parâmetros até aqui analisados (coeficientes de dispersão, zona estagnada e queda de pressão). Para isso, utilizou-se como sistema de referência aquele que consiste numa *foam* de 4 cm de comprimento e dupla inclinação de 45°.

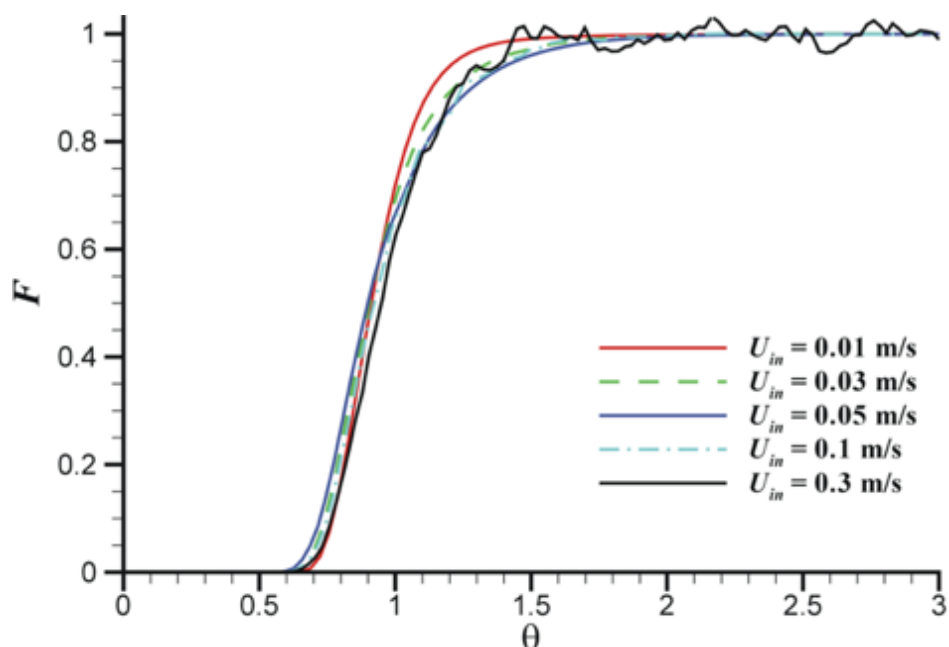


Figura 17. Curvas F em função do tempo adimensionalizado para cada velocidade superficial simulada. A estrutura considerada tinha 4 cm de comprimento e dupla inclinação de 45° .

No gráfico da Figura 17, as curvas F em função do tempo adimensionalizado denotam uma sobreposição razoável para as diferentes velocidades superficiais do fluido em estudo, o que seria de esperar caso a hidrodinâmica não sofresse grandes alterações. No entanto, há uma exceção a apontar para a velocidade de 0.3 m/s, que é particularmente visível para tempos mais elevados pois não se obteve uma curva estável, o que poderá ser explicado com a possibilidade de, com esta velocidade, o escoamento estar a sair do regime laminar e a entrar em regime de transição.

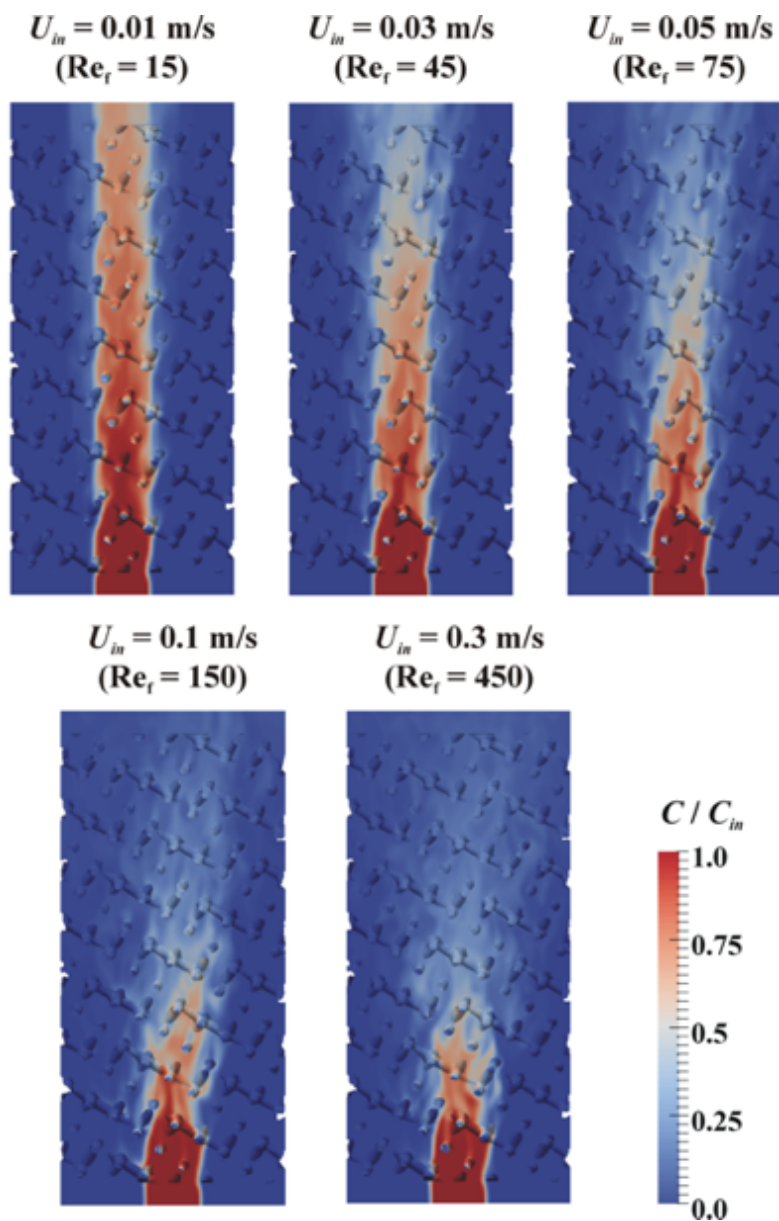


Figura 18. Campos de concentração de tracer para as velocidades simuladas em $t=3\tau$ vistas em cortes longitudinais diagonais.

A partir da visualização da Figura 18, consegue-se perceber qualitativamente que os fenômenos dispersivos vão aumentando à medida que a velocidade aumenta. É visível uma maior distribuição do *tracer* pelo meio conforme se vai aumentando a velocidade.

Portanto, passando à quantificação dos coeficientes dispersivos e também das zonas estagnadas, os valores obtidos para estes parâmetros são representados na Figura 19: 1) D_L e D_T adimensionalizados pela difusividade molecular em função do número de *Péclet* molecular baseado na distância livre entre *struts* (0.15 cm) - gráfico acima; 2) percentagem de volume estagnado em função do número de *Reynolds* baseado na mesma dimensão característica (0.15 cm) - gráfico abaixo.

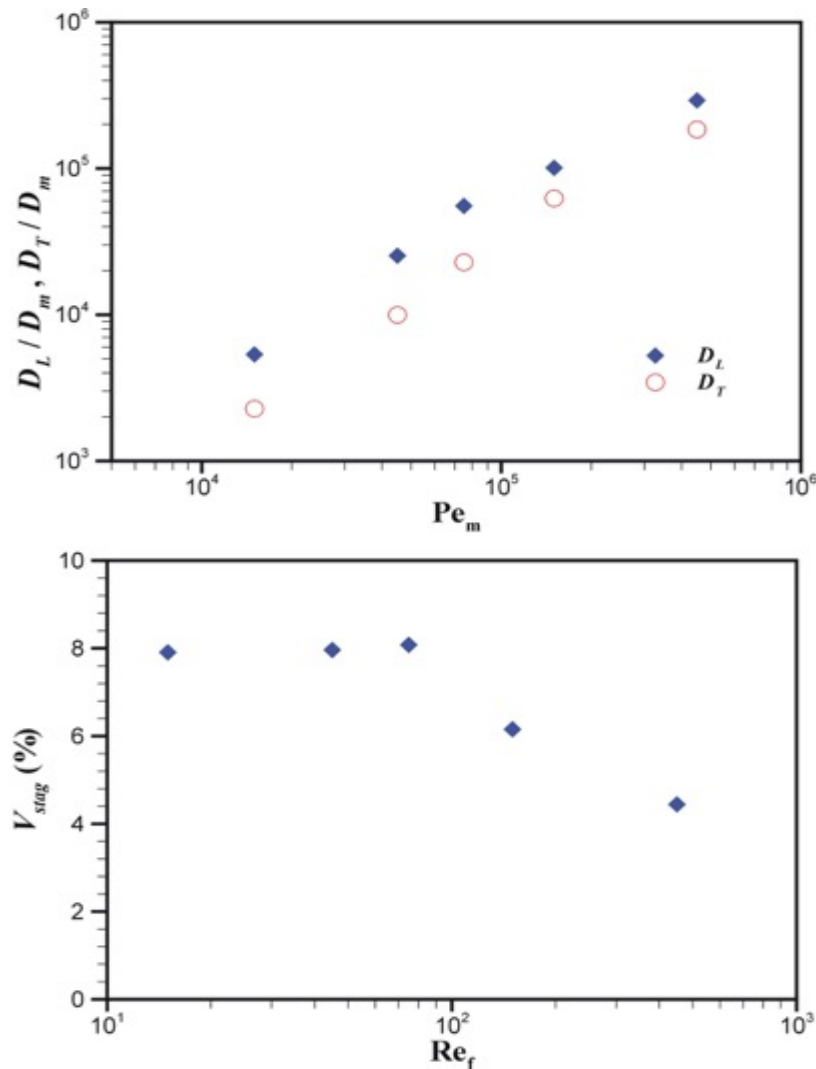


Figura 19. Coeficientes de dispersão na forma adimensional em função do Pe molecular baseado na distância livre entre struts (acima). Percentagem de volume estagnado em função do Re baseado na mesma dimensão característica (abaixo).

No que diz respeito ao gráfico superior da Figura 19, denota-se que existe uma tendência de aumento dos efeitos dispersivos com o aumento do número de *Péclet* molecular, que é, em si, um indicador de que os efeitos dispersivos vão aumentando com o aumento da velocidade, o que é um resultado que se esperaria obter. No gráfico inferior, de igual forma, analisa-se o comportamento do volume estagnado em função do número de *Reynolds*, e, por consequência, da velocidade, onde claramente se consegue constatar que até certo valor de *Reynolds* existe alguma estabilidade da percentagem de volume estagnado., algo que pode ser implicitamente explicado por se estar em regime de escoamento laminar. A partir de certos valores de velocidade (neste caso, os dois mais elevados), o volume estagnado começa a diminuir com o *Reynolds*, o que poderá estar relacionado com o escoamento indiciar uns primeiros desvios ao comportamento laminar e o surgimento de alguma oscilação nos campos de velocidade. No que

diz respeito à queda de pressão, onde de acordo com a equação de *Ergun* esta é dependente da velocidade, procurou-se saber qual seria o valor de velocidade para a qual esta seria a mais baixa.

Passando para a queda de pressão, onde de acordo com a equação de *Ergun* esta é dependente da velocidade, começou-se por mostrar o perfil axial de pressões médias ao longo da *foam* para as diferentes velocidades em estudo (Figura 20), para que se tenha uma primeira noção da ordem de grandeza das mesmas.

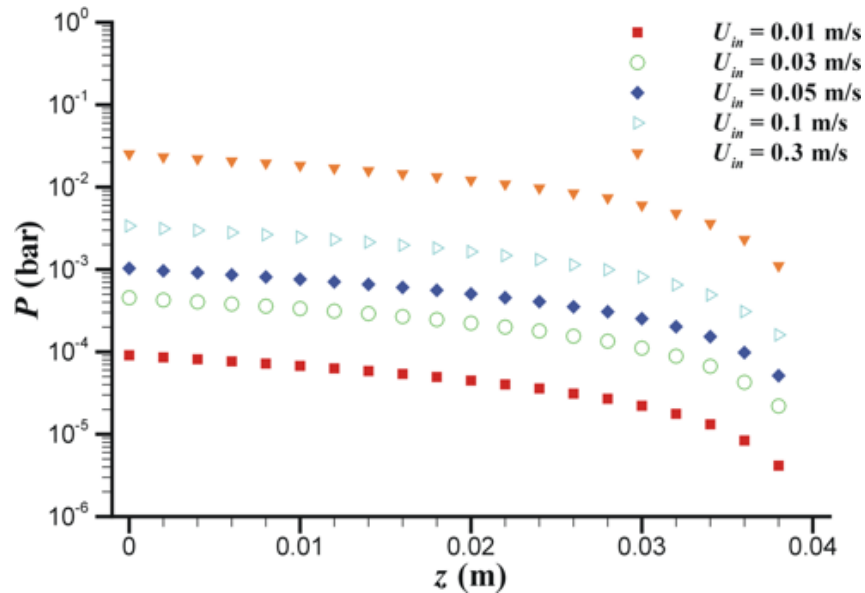


Figura 20. Perfis de pressão média ao longo do leito para as diferentes velocidades superficiais em estudo.

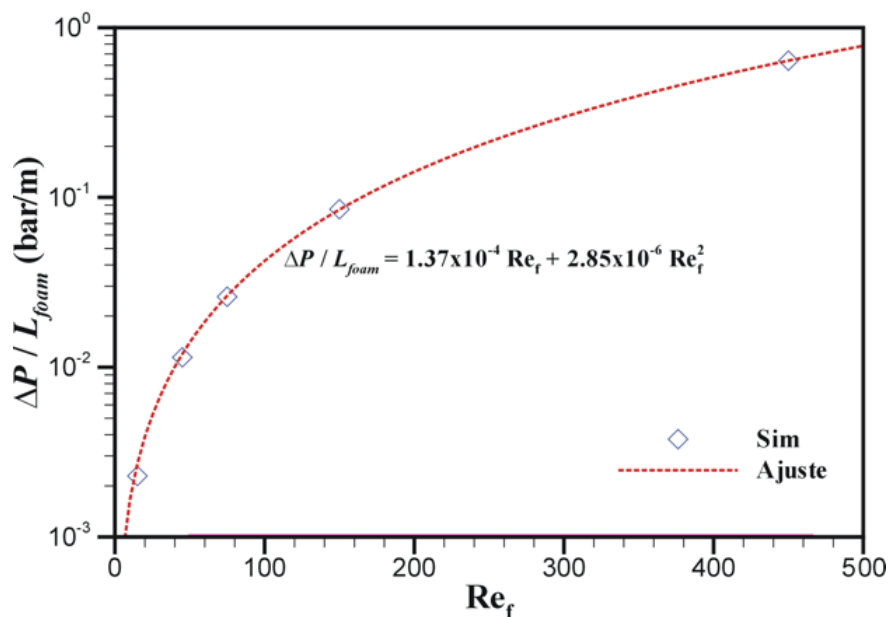


Figura 21. Representação em escala logarítmica da queda de pressão em função do Re . Apresenta-se também um ajuste com funcionalidade idêntica à equação de *Ergun*.

Tendo como base os valores apresentados na Figura 20, foi possível construir uma representação da queda de pressão por unidade de comprimento em função da velocidade ou número de *Reynolds* (Figura 21). Na mesma figura apresentou-se também um ajuste da queda de pressão em função do Re_f com uma funcionalidade semelhante à que se verifica na equação de *Ergun*, em que a qualidade do referido ajuste evidencia um comportamento análogo da queda de pressão com a velocidade.

4.5 Efeito do ângulo de orientação da estrutura

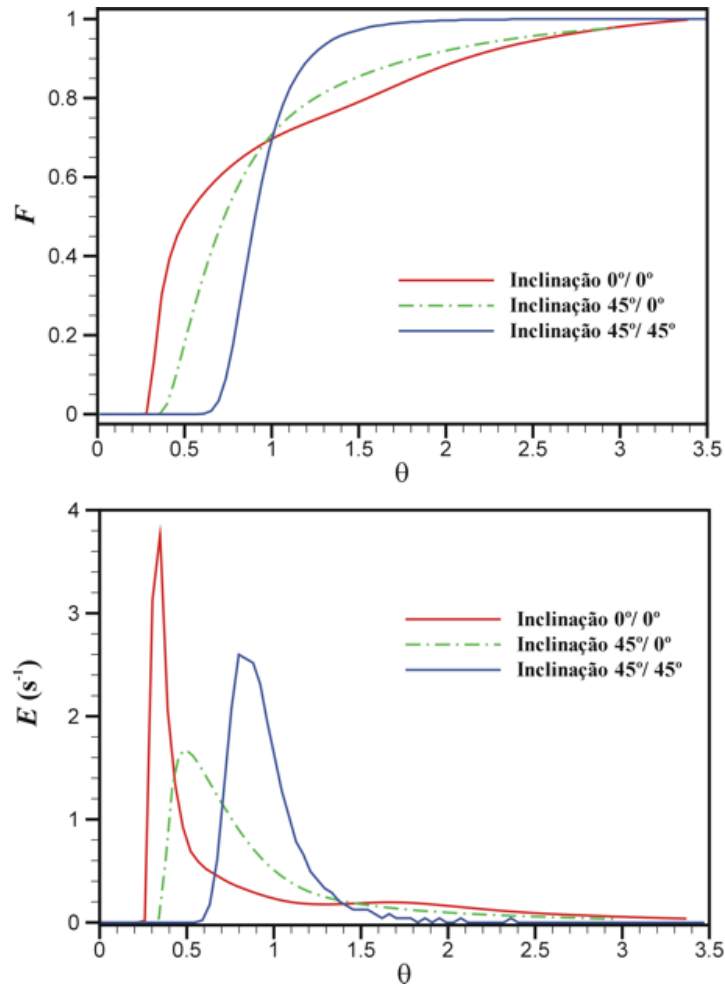


Figura 22. Curvas F (acima) e E (abaixo) em função do tempo adimensionalizado para diferentes combinações de orientação da estrutura.

Para o estudo do efeito que os ângulos de orientação da estrutura têm no escoamento testaram-se várias combinações de inclinações da estrutura sobre o seu próprio eixo, começando por analisar, primeiramente, qual o efeito do número de inclinações, isto é: 1) um sistema de células cúbicas sem inclinação, $0^\circ/0^\circ$; 2) variando um ângulo de inclinação, $45^\circ/0^\circ$; 3) e com dois ângulos de inclinação, $45^\circ/45^\circ$. As simulações para estes sistemas foram efetuadas para uma velocidade superficial de 0.03 m/s e um comprimento total da *foam* de 4 cm.

Deste modo, representaram-se as curvas F em função do tempo adimensional para as três estruturas referidas (gráfico superior da Figura 22). Pela análise deste gráfico, percebe-se que as curvas F para as inclinações $0^\circ/0^\circ$ e para $45^\circ/0^\circ$ exibem uma maior assimetria que a observada para $45^\circ/45^\circ$, o que em termos de hidrodinâmica do sistema, poderá indicar um comportamento com mais desvios à idealidade o que poderá ser claramente menos vantajoso. Para confirmar estas suspeitas, foram também estimadas as respectivas curvas E (gráfico inferior da Figura 22), que claramente indiciam a presença de maiores volumes estagnados e caminhos preferenciais (particularmente para o caso $0^\circ/0^\circ$). Deste modo, em termos do comportamento hidrodinâmico de um reator, será benéfico utilizar estruturas com dois ângulos de inclinação. Analisando, então, o que acontece com o escoamento para dois ângulos de inclinação idênticos, com valor α , procuramos perceber a influência deste valor sobre os parâmetros em estudo. Novamente, considerou-se como base para as simulações, uma velocidade superficial de 0.03 m/s e um comprimento total da *foam* de 4 cm.

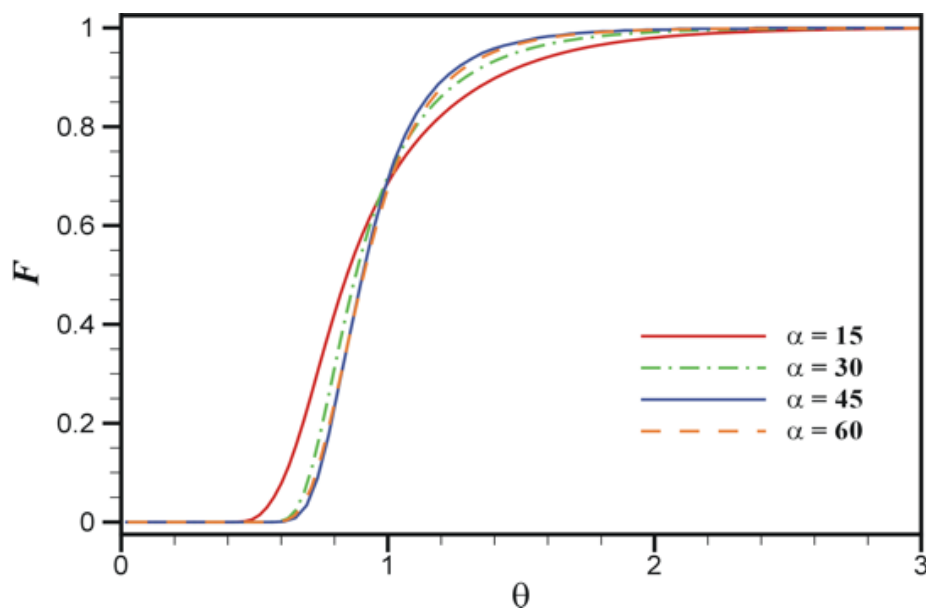


Figura 23. Gráfico das curvas F em função do tempo adimensional para vários ângulos de orientação da estrutura.

Pela análise das curvas F apresentadas no gráfico da Figura 23, observa-se que para os ângulos de 30° , 45° e 60° , essas curvas se aproximam bastante e, para 15° , parece existir uma maior distribuição de *tracer* pelo sistema o que poderá indicar valores mais elevados da dispersão axial.

Para uma visualização dos campos de concentração de *tracer* nos diferentes sistemas abordados na Figura 23, representaram-se os mesmos num corte longitudinal para um tempo de simulação igual a 3 tempos de residência (Figura 24).

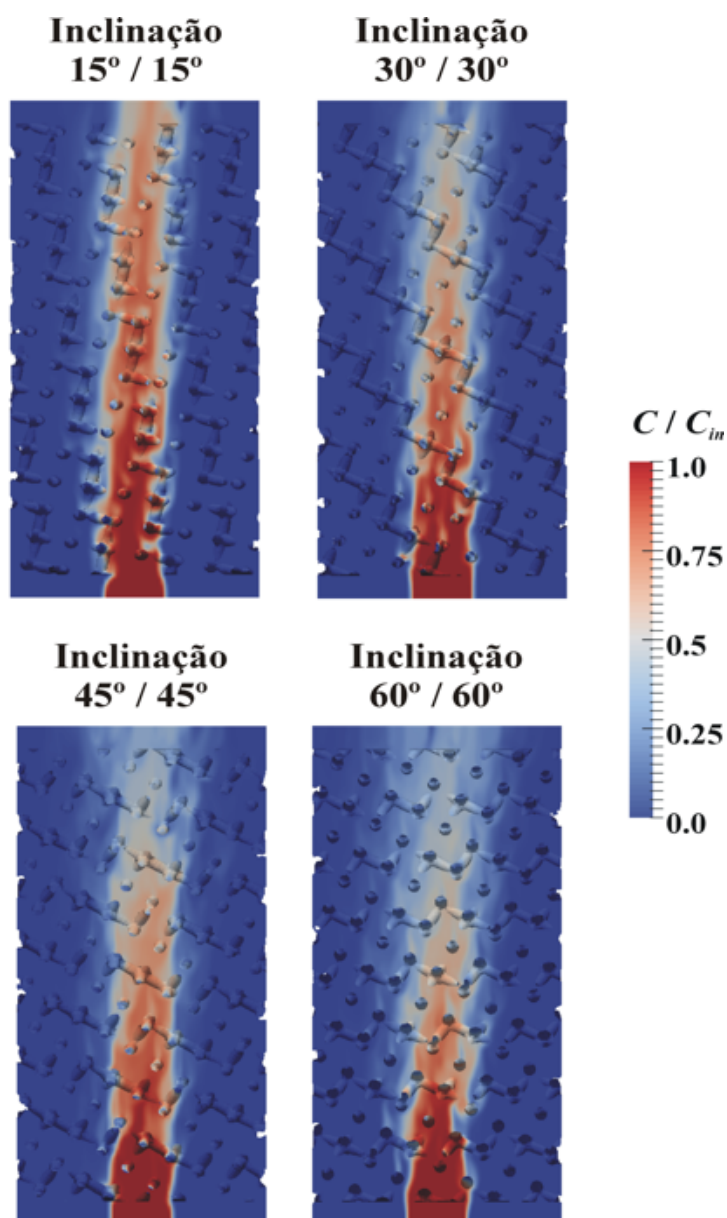


Figura 24. Campos de concentração de tracer para os diferentes valores de inclinação testados. Estes campos dizem cortes longitudinais para um tempo de simulação de 3τ .

Pela observação da Figura 24 poderá depreender-se, de forma qualitativa, que a dispersão radial parece aumentar com o valor do ângulo de inclinação. Passando para a quantificação destes parâmetros, representaram-se na Figura 25 os valores obtidos para os coeficientes de dispersão (adimensionalizados pela difusão molecular) e volume estagnado em função do ângulo de inclinação.

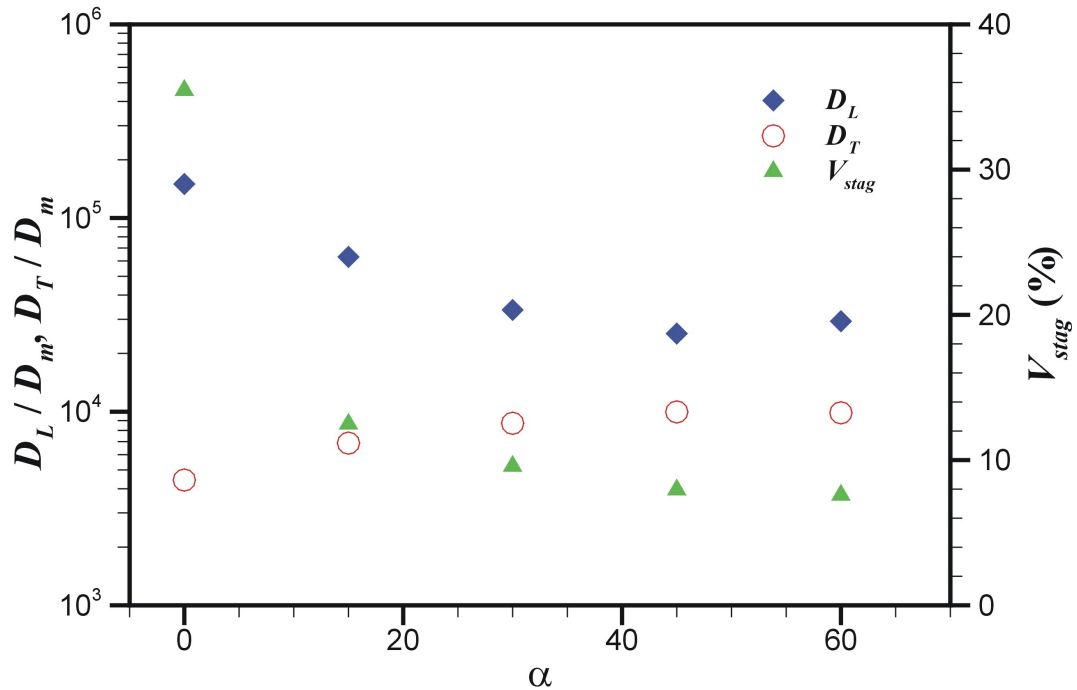


Figura 25. Coeficientes de dispersão adimensionais e porcentagem de volume estagnado em função do ângulo de orientação de estrutura.

Pela Figura 25, verifica-se uma tendência para a diminuição da dispersão axial à medida que o ângulo de orientação da estrutura vai aumentando, até que estes valores parecem estabilizar para um α superior a 45° , confirmando o que já havia sido dito acerca das respectivas curvas F . Contrariamente, a dispersão radial vai aumentando com o aumento do referido ângulo, apesar de ser uma tendência mais suave. No que diz respeito à porcentagem de volume estagnado, esta parece ter um comportamento semelhante ao do coeficiente de dispersão axial. Novamente, a queda de pressão mantém-se relativamente inalterada com os valores dos ângulos de inclinação para o nível de porosidades em causa (aproximadamente idênticos e iguais a 0.71). Em suma, a partir desta compilação de resultados, pode concluir-se que, para a velocidade superficial de 0.03 m/s, será mais vantajoso optar por duplas inclinações de $45^\circ/45^\circ$ ou ligeiramente superiores. Para estender estas conclusões a outras condições de escoamento, teria que se efetuar um estudo mais exaustivo e aprofundado que está fora das possibilidades do trabalho desta tese.

5 Conclusões

No âmbito desta dissertação, estudou-se o escoamento em modelos de reator de leito fixo com enchimentos do tipo *open-cell foam*, por intermédio de ferramentas computacionais, denominadas por *Computational Fluid Dynamics*, ou dinâmica de fluidos computacional. Desde os primórdios da indústria química que se procura obter reatores químicos o mais otimizados quanto possível. Para isso, existem parâmetros acerca destes que têm de ser devidamente estudados para se obter a máxima eficiência no processo. Entre esses parâmetros encontram-se aqueles que quantificam a mistura (ou os fenómenos dispersivos) e a queda de pressão no reator. Neste estudo, foi analisado o impacto do comprimento da estrutura, velocidade superficial de fluido e ângulos de inclinação na orientação da estrutura nos parâmetros referidos.

Em primeiro lugar, efetuou-se um teste de malha numérica necessário para definir uma densidade apropriada a utilizar ao longo do estudo em questão. Nesse teste foram consideradas três malhas diferentes, e comparando os resultados das respetivas simulações, concluiu-se que a segunda mais densa (constituída por 1264809 elementos de volume) seria um bom compromisso entre a qualidade dos resultados e o tempo de simulação.

De seguida, avançou-se para um conjunto de simulações com diferentes comprimentos de estrutura. Após análise dos resultados obtidos, e ponderando nos mesmos fatores tidos em conta nos testes de malha (qualidade dos resultados e duração das simulações), verificamos que o comprimento de 4 cm será uma hipótese bastante aceitável para representar a hidrodinâmica de toda a estrutura.

Relativamente aos efeitos da velocidade superficial, os resultados denotam que os efeitos dispersivos aumentam à medida que se aumenta a velocidade e que a percentagem de volume estagnado começa por ser constante, mas, a partir de certo valor de *Reynolds*, tem uma tendência a diminuir. Isto poderá ser explicado pelo aparecimento de algumas oscilações no escoamento que aumentam o grau de mistura e poderão eliminar certas zonas do leito onde o volume se encontraria estagnado. Quanto aos efeitos da velocidade na queda de pressão, percebe-se que, quanto menor for a velocidade, menor será a queda de pressão, seguindo uma relação do mesmo tipo da conhecida equação de *Ergun*.

Quanto à orientação da estrutura, variando primeiro apenas o número de inclinações, ou seja, por comparação dos resultados para os sistemas de $0^\circ/0^\circ$, $45^\circ/0^\circ$ e $45^\circ/45^\circ$, e para uma velocidade superficial de 0.03 m/s, verificou-se que os dois primeiros apresentam sinais de não idealidades bastante relevantes e indesejáveis no contexto da engenharia do reator, como possíveis caminhos preferenciais e elevadas percentagens de zonas estagnadas. Portanto, numa perspetiva da hidrodinâmica, parece ser bastante mais atrativo utilizar estruturas cúbicas com

dupla inclinação. Por outro lado, para as simulações realizadas com dupla inclinação na orientação da estrutura e ângulos idênticos (15°, 30°, 45° e 60°), as curvas F de três das quatro simuladas estão muito próximos no que diz respeito a resultados, nomeadamente as referidas curvas para 30°, 45° e 60°. Verificou-se também uma diminuição dos valores de dispersão axial e de percentagem de volume estagnado com o aumento do valor do ângulo, ao contrário do coeficiente de dispersão radial que aumenta com esse mesmo valor. Perante o conjunto de dados disponíveis neste estudo, poderá concluir-se que duplas inclinações com valores de ângulo iguais ou ligeiramente superiores a 45° poderão trazer vantagens em termos de mistura no meio reacional.

Em suma, considera-se que foi retratada com uma boa visão geral, e com um nível de detalhe aceitável, a hidrodinâmica do escoamento monofásico através de estruturas do tipo *open-cell foam* com geometria cúbica. Este trabalho integra em si um bom ponto de partida para adquirir um conhecimento mais aprofundado destas temáticas que, como já foi referido, carecem com alguma urgência de investigação mais extensiva e sistemática. Por esse motivo, no futuro, seria interessante dar seguimento a este trabalho para alargar o leque de resultados para um maior de condições do sistema, i.e., ângulos de inclinação, velocidades superficiais, propriedades físicas dos fluídos, geometria das células unitárias da *foam*, etc. Além disso, será também importante melhorar e afinar as técnicas de pós-processamento para agilizar todo o processo. Seria útil também poder replicar estas condições em contexto experimental para se conseguir validação para a precisão dos resultados obtidos por simulação CFD, portanto, estudos adicionais nesse sentido seriam proveitosos no futuro.

6 Avaliação do trabalho realizado

6.1 Objetivos Realizados

O principal objetivo desta dissertação foi o estudo dos efeitos dispersivos e da queda de pressão em reatores de leito fixo utilizando ferramentas computacionais de simulação de dinâmica de fluídos computacional.

Para se estudar esses efeitos, simulações com variação de diferentes parâmetros como velocidade superficial do fluido, comprimento da estrutura e ângulos de inclinação da mesma, foram utilizadas com vista a se procurar obter resultados indicativos das respectivas dependências.

6.2 Outros Trabalhos Realizados

Como já foi referido, existiu uma componente importante de aprendizagem no que diz respeito ao funcionamento do *software* de dinâmica de fluidos computacional utilizado, o OpenFOAM®. O que requereu o conhecimento e aprofundamento de conhecimentos de programação, especificamente de programação orientada a objetos utilizando a linguagem C++. Foi necessário programar e/ou modificar alguns módulos de código fonte nesta linguagem de maneira a que o programa executasse as simulações da forma pretendida.

Para além disso, outra das ferramentas utilizadas é o ParaView®, para visualização e análise de dados das simulações efetuadas. Mais uma vez, existiu a necessidade de perceber e refinar de uma forma sistemática a utilização desta ferramenta em proveito do que seria necessário para o âmbito desta dissertação.

6.3 Apreciação Final

O trabalho realizado foi, de um ponto de vista pessoal, motivante e desafiante, pois permitiu colocar em prática, de uma forma multidisciplinar, inúmeras matérias abordadas durante o Mestrado Integrado em Engenharia Química, abrangendo temáticas variadas da Engenharia Química e integrando-os neste trabalho. Por outro lado, permitiu-me também ir além das matérias do curso e mergulhar noutras áreas da engenharia, nomeadamente a programação numa linguagem nova.

Do ponto de vista científico, o trabalho realizado foi relevante no sentido da compreensão de alguns fenómenos que influenciam de forma relevante a *performance* de reatores catalíticos de leito fixo em sistemas reais, com a vantagem de não haver a necessidade de conduzir ensaios experimentais físicos, quer seja em instalações piloto ou em reatores industriais reais,

recorrendo para isso a ferramentas computacionais para se apurar as condições mais próximas de idealidade.

Considero também que o poder computacional, em particular o poder de processamento, das máquinas ao dispor para a realização deste tipo de simulações constituem um dos principais *bottlenecks* ao nível de rigor e detalhe das simulações efetuadas. Sugestões para trabalhos futuros nesta área inserem-se na utilização de malhas, ilustrativas do leito catalítico, de maior complexidade, tirando partido da evolução constante dos sistemas informáticos comerciais, no que diz respeito a capacidade de processamento, para obtenção de resultados satisfatórios de uma forma mais rápida e rigorosa em simulações de maior complexidade. Limitando assim a gama de resultados obtida.

Posto isto, os objetivos do trabalho foram cumpridos de uma forma bastante positiva.

7 Referências

- Afandizadeh, S., Foumeny, E. A. “Design of packed bed reactors: guides to catalyst shape, size, and loading selection”. *Applied Thermal Engineering*, **21**, 669-682 (2001).x
- Baker, M. J., Young, P. G., Tabor, G. R. “Image based meshing of packed beds of cylinder at low aspect ratios using 3D MRI couple with computational fluid dynamics”, *Computers and Chemical Engineering*, **35**, 1969-1977 (2011).
- Bastos Rebelo, N. F., Adreassen, K. A., Ríos, L. I. S., Camblor, J. C. P., Zander, H., Grande, C. “Pressure drop and heat transfer properties of cubic iso-reticular foams”. *Chemical Engineering & Processing: Process Intensification*, **127**, 36-42 (2018).
- Bittante, A., Garcia-Serna, J., Biasi, P., Sobrón, F., Salmi, T. “Residence time and axial dispersion of liquids in Trickle Bed Reactors at laboratory scale”, *Chemical Engineering Journal*, **250**, 99-111 (2014).
- Bianchi, E., Schwieger, W., Hannsjorg, F. “Assessment of Periodic Open Cellular Structures for Heat Conduction in Catalytic Fixed-Bed Reactors”, *Advanced Engineering Materials Journal* (2015).
- Blazek, J., “Computation Fluid Dynamics: Principles and Applications”, Elsevier (2001).
- Campos, J. M. “Notas para o Estudo da Mecânica dos Fluidos”, 1ª edição, FEUP Edições (2013).
- Danckwerts, P. V. “Continuous flow systems”, *Chemical Engineering Science*, **2**, 1-13 (1953).
- Della Torre, A., Montenegro, G., Tabor, G. “CFD characterization of flow regimes inside open cell foam substrates”, *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 1-47 (2013).
- Della Torre, A., Montenegro, G., Brusiani, F., Bianchi, G.M. “Characterization of flow regimes and heat transfer inside Kelvin-Cell type foams by means of OpenFOAM”. *11th World Congress on Computational Mechanics*, Barcelona, Espanha, Julho de 2014.
- Della Torre, A., Montenegro, Tabor, G. “CFD characterization of pressure drop and heat transfer inside porous substrates”. *Energy Procedia*, **81**, 836-845 (2015).
- Delgado, J. M. P. Q. “A critical view of dispersion in packed beds”, *Heat Mass Transfer*, **42**, 279-310 (2006).
- Edouard, D., Lacroix, M., Huu, C. P., Luck, F. “Pressure drop modeling on solid foam: State-of-the-art correlation”. *Chemical Engineering Journal*, **144**, 299-311 (2008).
- Fogler, H. S. “Elements of Chemical Reaction Engineering”, 5ª edição, Pearson Education (2016).

- FormLabs®, “The Ultimate Guide to Stereolithography (SLA) 3D Printing”, retirado a 24 de Janeiro de 2019, de <https://formlabs.com/blog/ultimate-guide-to-stereolithography-sla-3d-printing/>.
- Guedes de Carvalho, J. R. F., Delgado, J. M. P. Q. “Effect of fluid properties on Dispersion in Flow through Packed Beds”. *AIChE Journal*, **49**, 1980-1985 (Agosto de 2003).
- Guedes de Carvalho, J. R. F., Delgado, J. M. P. Q. “Overall map and correlation of dispersion data for flow through granular packed beds”. *Chemical Engineering Science*, **60**, 365-375 (2005).
- Hassanin, H., Jiang, K. “Net Shape Manufacture of Freestanding Ceramic Micro-Components through Soft Lithography”, *Micromanufacturing Engineering and Technology (Second Edition)*, Capítulo 10, William Andrew Publishing: 239-256 (2015).
- Hiby, J.W., Schummer, P. “Zur messung der Transversalen Effektiven Diffusion in durchstromten Fullkorpersaulen”, *Chemical Engineering Science*, **13**, 69-74 (1960).
- Horneber, T., Rauh, C., Delgado, A. “Fluid dynamic characterisation of porous solids in catalytic fixed-bed reactors”, *Microporous and Mesoporous Materials*, **154**, 170-174 (2012).
- Horneber, T., Rauh C., Delgado, A. “Numerical simulations of fluid dynamics in carrier structures for catalysis: characterization and need for optimization”. *Chemical Engineering Science*, **117**, 229-238 (2014).
- Hutter, C., Zenklusen, A., Lang, A., Rudolf von Rorh, Ph. “Axial dispersion in metal foams and streamwise-periodic porous media”, *Chemical Engineering Science*, **66**, 1132-1141 (2011).
- Jang, W., Kraynik, A. M., Kyriakides, S. “On the microstructure of open-cell foams and its effect on elastic properties”. *International Journal of Solids and Structures*, **45**, 1845-1875 (2008).
- Levenspiel, O. “Chemical Reaction Engineering”, 3ª edição, John Wiley and Sons (1999).
- Lucci, F., Della Torre, A., Rickenbach, J. v., Montenegro, G., Poulidakos, D., Eggenschwiller, P. D. “Performance of randomized Kelvin-Cell structures as catalytic substrates: mass-transfer based analysis”. *Chemical Engineering Science*, **112**, 143-151 (2014).
- Ribeiro, A. M., Neto, P., Pinho, C. “Mean Porosity and Pressure Drop Measurements in Packed Beds of Monosized Spheres: Side Wall Effects”, *International Review of Chemical Engineering*, Vol. 2, N.1, (2010).
- Storm J., Abendroth M., Emmel M., Liedke Th., Ballaschk U., Voigt C., Sieber T., Kuna M. “Geometrical modelling of foam structures using implicit functions”. *International Journal of Solids and Structures*, **50**, 548-555 (2013).

- Tu, J., Yeoh, G. H., Liu, C., “Computational Fluid Dynamics: A Practical Approach”, 1ª edição, Elsevier (2008).
- Versteeg, H. K., Malalasekera, W., “An introduction to computational fluid dynamics: The finite volume method.”, 1ª edição, John Wiley and Sons Inc. (1995).

Apêndice A - O OpenFOAM®

A ferramenta principal utilizada para levar a cabo esta tese foi o OpenFOAM®, um *software open-source* em linguagem C++ que tem diversas aplicações para as suas capacidades de análise numérica e tratamento de dados, sendo que a área de maior relevo para a execução desta tese é a Dinâmica de Flúidos Computacional, onde o software consegue correr simulações de Mecânica de Flúidos resolvendo as respetivas equações diferenciais que traduzem os fenómenos de escoamento ocorridos.

A.1 Breve apontamento histórico

Inicialmente conhecido por FOAM, o OpenFOAM® foi criado na década de 80 no Imperial College London pelo engenheiro químico Henry Weller, com o objetivo de substituir os métodos numéricos e computacionais existentes na altura na linguagem FORTRAN por algo mais flexível, polivalente e poderoso. A escolha, na altura, recaiu então sob a linguagem C++ que, dada a sua modularidade, se assumiu como uma alternativa que cumpria com os requisitos propostos à substituição dos programas alicerçados em FORTRAN. Desde então, graças à sua qualidade, versatilidade e ao facto de ser *open-source*, o OpenFOAM® tem sido extensivamente utilizado e está em evolução constante, existindo também cada vez mais ferramentas externas que podem ser integradas neste software. Ser *open-source* faz com que o código esteja disponível a todos, havendo já inúmero conteúdo *online* em comunidades bastante grandes de utilizadores que desenvolvem cada vez mais e melhores aplicações para o OpenFOAM®. Por esse motivo, desenvolver aplicações ou funcionalidades em OpenFOAM® para aquilo que cada um pretende é uma tarefa mais facilitada pela comunidade e pela filosofia *open-source*.

A.2 Curva de aprendizagem necessária e funcionamento geral do software

Apêndice B - Uma fatia de tempo importante do trabalho realizado no âmbito desta tese foi aquela dedicada à aquisição dos conhecimentos necessários para poder tirar algum partido do potencial que o OpenFOAM® tem. Foi um processo bastante demorado e algo complexo, que contou com o auxílio do orientador de tese, e que se baseou em processos de tentativa-erro e execução de tutoriais.

Apêndice C - Primeiramente, o OpenFOAM® apenas corre em sistema operativo Linux, portanto um dos primeiros passos para criar condições à realização desta tese foi a instalação no meu computador, por via de um sistema de máquina virtual, o sistema operativo gratuito e *open-source* Ubuntu, baseado em Linux.

Apêndice D - De seguida, procedeu-se à instalação do OpenFOAM® através de, como é normal em sistemas operativos baseados em Linux, linha de comandos. Os pacotes de instalação incluem o software OpenFOAM® e a ferramenta de visualização gráfica ParaView®, desenvolvido pelos laboratórios governamentais americanos de Los Alamos e Sandia, em colaboração com a empresa privada Kitware Inc. A ferramenta ParaView® é utilizada para visualização e para pós-processamento de dados, algo que será visto mais em detalhe.

Apêndice E - Posto isto, seguiu-se o começo de exercícios de aplicação prática de problemas de CFD, primeiramente mais simples indo depois aumentando a complexidade. Para isso, recorreu-se ao manual do utilizador disponibilizado pela OpenFOAM Foundation e por tutoriais já existentes em vários sítios da internet, desde fóruns da comunidade até vídeos presentes plataformas de partilha de conteúdo como o *Youtube*.

Apêndice F - O funcionamento do OpenFOAM® assenta numa dinâmica de criação de programas em linguagem C++, ou de edição de já existentes, de forma a criar aplicações que venham de encontro àquilo que se pretenda simular. É um exercício de alguma complexidade, principalmente para utilizadores que não provenham de backgrounds com formação em programação orientada a objetos, estar a criar de raiz programas completos. O que se faz, portanto, é pegar nos códigos-fonte disponibilizados pelos tutoriais que veem com o OpenFOAM® e editá-los a ir de encontro ao pretendido.

Apêndice G - Para cada simulação existe sempre um conjunto de ficheiros associados ao “solver” e um outro conjunto de ficheiros associados ao “caso”.

Apêndice H - Os “solvers” são os executáveis que correm a simulação e resultam da compilação de um ficheiro programado na linguagem C++, com extensão “.c”, alicerçados em bibliotecas de funções, os chamados “header files” com extensão “.h”, próprias e também elas desenvolvidas ou editadas pelo utilizador com vista às suas pretensões. Como é apanágio dos sistemas operativos Linux, a compilação destes ficheiros ocorre por linha de comandos, onde por vezes são devolvidos erros e o compilador não consegue criar o executável, e nesse caso é então imperativo ir rever os códigos e perceber onde está o(s) erro(s), e resolvê-lo(s). Adicionalmente, alguns “solvers” podem ter também ficheiros adicionais que traduzem, por exemplo condições-fronteira do sistema, a posição de entrada do escoamento e respetivas dimensões (o diâmetro da entrada, por exemplo), etc.

Apêndice I - Por outro lado, como já disse, existem os ficheiros associados ao “caso”, nas suas respetivas pastas. Ora, estes ficheiros no fundo estabelecem as condições nas quais a simulação vai decorrer. Dentro da pasta destinada ao caso, encontramos três outras pastas: “0”, “constant” e “system”. A pasta “0” é constituída por ficheiros devidamente programados em C++ que basicamente conferem as condições fronteira e iniciais para a simulação decorrer. Por sua vez, na pasta “constant”, encontramos os ficheiros que ditam as propriedades do sistema que vamos simular, por exemplo as propriedades físicas, as propriedades do transporte ou as

propriedades do escoamento turbulento (se for caso disso). Encontramos também na pasta “constant” a pasta “polymesh”, resultante do comando que cria a malha onde os cálculos serão feitos, com os respectivos ficheiros que traduzem a sua geometria. Por último, temos a pasta “system”, onde se encontram os ficheiros que traduzem condições específicas do sistema ao nível macro, tais como o ficheiro “blockMeshDict” ou “snappyHexMeshDict” que possuem a informação para gerar a malha que vamos utilizar, o ficheiro “controlDict” onde se impõe condições de simulação tais os *time steps* e o tempo final da mesma, o ficheiro “fvSchemes” onde fundamentalmente se diz ao sistema a forma como se pretende que as equações diferenciais complexas sejam resolvidas (que métodos numéricos devem ser utilizados), e por último o ficheiro “fvSolution” que basicamente estabelece as tolerâncias numéricas e critérios de convergência com que o “solver” vai resolver a simulação.

Apêndice J - O software já traz consigo um número bastante grande de casos pré-definidos, cada um para o estudo de um dado fenómeno, p.e. combustão, escoamento compressível, incompressível, etc., que podem ser alterados conforme os objetivos traçados pelo utilizador a serem obtidos na sua simulação. Para isso, é necessário saber o que queremos alterar, que adaptações pretendemos fazer ou não. E essas adaptações são realizadas ao nível do código-fonte de cada um desses casos.