

## MODELAGEM E SIMULAÇÃO DA SÍNTESE DE METANOL EM MICRORREACTORES COM LEITO FIXO: Parte I – Análise Fluidodinâmica

Gabriel BAIONI e SILVA<sup>1</sup>; Harrson S. SANTANA<sup>2</sup>; João L. SILVA JR.<sup>3</sup>

### RESUMO

O uso de microrreatores vem crescendo nos últimos anos devido às diversas vantagens de sua utilização como melhoria das características de transferência de massa e de calor, alta razão área superficial/volume, facilidade no controle de temperatura, necessidade de baixos tempos de residência, bom rendimento e seletividades em processos reativos, fazem a busca pelo desenvolvimento dessa tecnologia crescer a cada dia. A utilização desses microrreatores associados ao uso de leito fixo contendo catalizadores para síntese de metanol se mostra uma alternativa promissora e o uso da fluidodinâmica computacional pode ajudar na comprovação de sua efetividade. As simulações iniciais apresentaram resultados para perda de carga ao longo do reator muito próximos dos calculados pela Equação de Ergun. A análise numérica dos resultados demonstrou um aumento acentuado na perda de carga em função da velocidade de entrada dos reagentes, explicitando a necessidade de um balanço entre o tempo de residência, perda de carga e necessidade de produção para determinar futuramente as melhores condições operacionais.

#### Palavras-chave:

Metanol; Microrreator; Modelagem Matemática; Fluidodinâmica Computacional.

### 1. INTRODUÇÃO

A microfluídica, área da ciência que estuda o comportamento de fluidos em escalas micrométricas, tem se tornado uma ferramenta interessante para o desenvolvimento e escalonamento inteligente de processos. Microdispositivos incluindo microrreatores, micromisturadores e microtrocaadores de calor são alguns dos equipamentos que integram as chamadas microplantas químicas, apresentando como principais vantagens a melhoria das características de transferência de massa e de calor, alta razão área superficial/volume, facilidade no controle de temperatura, necessidade de baixos tempos de residência e bom rendimento e seletividades em processos reativos (KUKARD e SMITH, 2015; MARTÍNEZ-ARIAS, 2010). O metanol é um dos principais produtos químicos produzidos por catálise heterogênea. A sua síntese industrial é um processo cujo modo de operação não é claro, tem elevado poder exotérmico e limitação por equilíbrio termodinâmico, que possibilita aumentar a produtividade. Uma característica geral dessa produção é o uso de várias etapas catalíticas. Tendo em vista dificuldades da síntese do metanol e as diversas vantagens do uso de microrreatores, através da técnica de CFD é possível realizar simulações matemáticas que preveem o comportamento fluidodinâmico e cinético da reação ocorrendo no interior de um reator. Devido às limitações quanto ao uso de leitos

<sup>1</sup>Bolsista PIBIC/FAPEMIG, IFSULDEMINAS – Campus Pouso Alegre. E-mail: gabrielbaioni@hotmail.com.

<sup>2</sup>Colaborador Externo – Faculdade de Engenharia Química/UNICAMP. E-mail: harrison.santana@gmail.com.

<sup>3</sup>Orientador, IFSULDEMINAS – Campus Pouso Alegre. E-mail: joao.lameu@ifsuldeminas.edu.br.

fluidizados em simulações, o uso de leito fixo se mostrou uma boa alternativa para as etapas catalíticas para a produção de metanol. Nesta primeira etapa do projeto, foram validadas as condições do escoamento com base em equações da mecânica dos fluidos.

## 2. MODELAGEM MATEMÁTICA

Nas simulações CFD pode-se definir diversos domínios com resistência diferentes ao escoamento. Para simular leitos fixos/meios porosos, basicamente, o solver inclui no domínio poroso um termo extra no balanço de quantidade de movimento fundamentado na equação de Ergun, isto é, duas contribuições extras são calculadas em função das propriedades do leito como porosidade, e dos coeficientes de perda devido ao atrito (predominante em escoamentos em regime laminar) e outra devido a inércia do movimento (predominante em escoamento com números de Reynolds mais altos). A modelagem para um escoamento incompressível, isotérmico em estado estacionário em regime laminar é descrita a seguir. A porosidade do leito,  $\varepsilon$ , é definida como razão entre o volume onde o fluido pode escoar,  $V_f$ , pelo volume total do leito,  $V$ :

$$\varepsilon = \frac{V_f}{V} \quad (1)$$

Para domínios porosos, o solver assume que o vetor área  $\mathbf{A}'$  disponível para o escoamento através de uma superfície de contorno infinitesimal  $A$  é relacionada pelo tensor de segunda ordem  $\mathbf{K}$ , conforme a relação:

$$\mathbf{A}' = \mathbf{K} \cdot A \quad (2)$$

Na modelagem do tensor  $\mathbf{K}$  ( $K_{ij}$ ), assume-se que este é isotrópico, isto é, que a distribuição da porosidade no leito ocorre igual e normalmente nas três direções. As equações de transporte são então ponderadas pelo tensor  $\mathbf{K}$ , resultando nas equações de conservação de massa total, Navier-Stokes modificada para domínio poroso e balanço de massa das espécies:

$$\nabla(\mathbf{K} \cdot U) = 0 \quad (3)$$

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{K} \cdot U \cdot U) = -\varepsilon \nabla p + \mu \mathbf{K} \cdot (\nabla^2 \cdot U) + \varepsilon \rho g + \varepsilon S_M \quad (4)$$

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{K} \cdot U Y_i) = \rho D_i \mathbf{K} \cdot \nabla^2 Y_i + \varepsilon S_i \quad (5)$$

Em que  $\rho$  e  $\mu$  são a massa específica e a viscosidade dinâmica do fluido,  $p$  é a pressão,  $U$  a velocidade,  $g$  a aceleração da gravidade,  $D_i$  o coeficiente de difusividade mássica da espécie  $i$ ,  $Y_i$  a fração mássica da espécie  $i$ ,  $S_i$  a fonte de massa da espécie  $i$ ,  $S_M$  é o termo fonte de *momentum* detalhado abaixo, que representa a queda de pressão adicional devido a presença do leito poroso:

$$S_M = - \left( \frac{\mu}{K_{perm}} U + K_{loss} \frac{\rho}{2} |U| U \right) \quad (6)$$

Onde o primeiro termo do lado direito da Eq. 6 representa as perdas devido a permeabilidade do leito e o segundo termo, as perdas inerciais devido a resistência do leito. Os parâmetros  $K_{perm}$  e  $K_{loss}$  são constantes dependentes do diâmetro da partícula que compõe o leito e a porosidade deste, as quais podem ser obtidas pela Equação de Ergun (Eq. 7):

$$\frac{|\Delta P|}{L} = 150 \frac{\mu}{D_p^2} \frac{(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3} U_{sup} + 1,75 \frac{\rho}{D_p} \frac{(1-\varepsilon)}{\varepsilon^3} U_{sup}^2 \quad (7)$$

Em que  $D_p$  é o diâmetro médio do sólido particulado,  $\rho$  e  $\mu$  são propriedades do fluido, e  $U_{sup}$  é a velocidade superficial do fluido. Por comparação, têm-se:

$$K_{perm} = \frac{D_p^2}{150} \frac{\varepsilon^3}{(1-\varepsilon)^2} \quad [m^2] \quad K_{loss} = \frac{3,5(1-\varepsilon)}{D_p \varepsilon^3} \quad [m^{-1}] \quad (8)$$

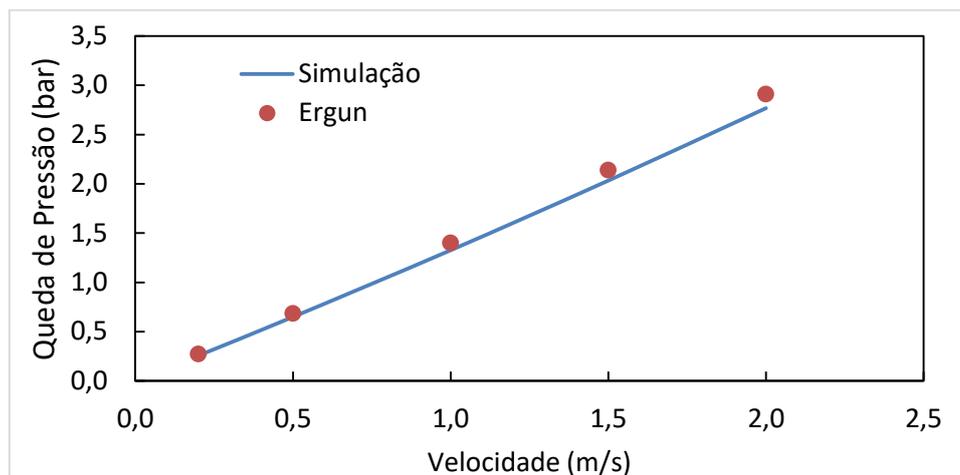
Como caso de estudo inicial o modelo matemático foi simulado um microcanal com entrada em Y, de diâmetro 1 mm, e comprimento do leito fixo de 15 mm, com partículas de diâmetro 50  $\mu$ m e porosidade 0,5. Os resultados deste foram validados com comparação aos valores fornecidos pela equação de Ergun, para a faixa de velocidade média de 0,1 a 1 m/s a 10 bar e 527 K. Além disso, primeiramente um teste de independência numérica foi realizado, e o método do índice de convergência (índice GCI) foi usado para quantificar a incerteza numérica da discretização espacial (CELIK *et al.*, 2008).

### 3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Para o teste de independência numérica, refinamentos de aproximadamente 28, 48 e 60 mil elementos foram avaliados. A análise pelo método GCI resultou em incertezas de aproximadamente 0,01% para as malhas com refino médio ou alto. Os valores baixos das incertezas indicam que as malhas numéricas estão suficientemente refinadas, e a solução numérica apresenta grande proximidade com a solução exata do escoamento. Isto pode ser fundamentado nas características do escoamento laminar, monofásico, isotérmico em estado estacionário. Com base nisto, a malha numérica com 48 mil elementos será utilizada nas demais etapas do projeto, desde que apresenta uma incerteza igual da malha mais refinada com um menor custo de processamento computacional.

Foram realizadas simulações do escoamento dos gases através do leito em diferentes velocidades, obtendo um comportamento da queda de pressão conforme mostrado na Figura 1. Por esta observa-se um comportamento condizente entre o modelo matemático (simulação) com os valores obtidos pela equação clássica de Ergun (Equação 7). Isto mostra que o modelo fluidodinâmico consegue prever corretamente o padrão de escoamento no leito fixo, fornecendo a base para implementação dos fenômenos de transferência de massa e reação química, os quais serão abordados nas próximas etapas do projeto.

Figura 1: Queda de pressão em função da velocidade média do gás. Fonte: Elaborada pelo autor.



#### 4. CONCLUSÕES PARCIAIS

As simulações iniciais apresentaram resultados para perda de carga ao longo do reator muito próximos dos calculados pela Equação de Ergun. A análise numérica dos resultados demonstrou um aumento acentuado na perda de carga em função da velocidade de entrada dos reagentes, explicitando a necessidade de um balanço entre o tempo de residência, perda de carga e necessidade de produção para determinar as melhores condições operacionais. Os próximos passos serão a realização de simulações considerando a cinética da reação, visando entender seu comportamento e assim determinar as melhores condições de velocidade e a razão de entrada dos reagentes.

#### AGRADECIMENTOS

O presente trabalho foi realizado com apoio da Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior - Brasil (CAPES) - Código de Financiamento 001. Os autores agradecem à FAPEMIG pelo apoio financeiro (PIBIC Edital 82/2017) e Processo TEC-APQ-02144-17 e ao IFSULDEMINAS Campus Pouso Alegre.

#### REFERÊNCIAS

CELIK, I. B., GHIA, U., ROACHE, P. J., FREITAS, C. J., COLEMAN, H., & RAAD, P. E. Procedure for Estimation and Reporting of Uncertainty Due to Discretization in CFD Applications. **Journal of Fluids Engineering**. 130, 078001-1-4, 2008.

KUKARD, R., SMITH, K. Slurry-Phase Batch Microreactor for Hydroconversion Studies. **Energy Fuels**, 29 (8), pp 5274–5281, 2015.

MARTÍNEZ-ARIAS, E. L. M. **Desenvolvimento e Avaliação de Microreatores: Aplicação para Produção de Biodiesel**. 2010. Dissertação (Mestrado em Engenharia Química) – Universidade Estadual de Campinas, Campinas.