

REFINAMENTO ESPACIAL APLICADO A UM REACTOR DE LEITO FIXO

RAQUEL PINHO FERREIRA GUINÉ*

RESUMO

O presente trabalho tem por objectivo desenvolver um algoritmo de refinamento espacial baseado no método das linhas, para resolver um sistema de equações não lineares de derivadas parciais parabólicas, que traduz o comportamento de um reactor de leito fixo.

O algoritmo proposto tem como principal objectivo o melhoramento da solução nas zonas onde o valor do indicador de erro espacial definido for mais elevado. Esse melhoramento é feito em determinados sub-intervalos através do cálculo da solução em pontos que resultam de divisões sucessivas do passo de discretização.

O algoritmo apresentado revelou-se bastante eficiente na solução do problema descrito em estado transiente, permitindo a obtenção de soluções de boa qualidade em tempos relativamente baixos.

1 – INTRODUÇÃO

Os reactores de leito fixo são bastante utilizados na indústria química, particularmente para as reacções que ocorrem em fase gasosa, permitindo um bom compromisso entre o custo e a quantidade produzida. A maioria destas reacções é altamente exotérmica, obrigando à necessidade de um controlo bastante apertado de todas as variáveis intervenientes no processo, quer por razões de segurança, quer ainda por razões económicas. A eficiência desse controlo está directamente relacionada com a capacidade de previsão do comportamento do sistema face a perturbações exteriores, justificando a grande importância da simulação computacional, que envolve de

* Docente do Departamento das Indústrias Agro-Alimentares da Escola Superior Agrária de Viseu.

problemas matemáticos complexos, muitas vezes com equações diferenciais de derivadas parciais (PDE's) não lineares com termos convectivos dominantes. Apesar de ser bastante importante a determinação melhor possível da solução exacta do problema, esse não é o único aspecto a tomar em consideração, já que o tempo necessário à obtenção da mesma é igualmente importante (Guiné, 1996).

Muitos têm sido os métodos utilizados para resolver este tipo de problemas, nomeadamente: diferenças finitas (Eisenberg, 1976), colocação ortogonal (Ferguson, 1970) e colocação ortogonal de elementos finitos (Gardini, 1985). Contudo, é presentemente aceite que os métodos de grelha móvel ou adaptativa são os mais eficientes para resolver estes problemas, pelo facto de calcularem soluções relativamente exactas sem a necessidade de utilizar-se um número excessivo de pontos da grelha (Blom, 1986).

Os métodos de grelha móvel podem ser classificados em dois grandes grupos, consoante o movimento da grelha no domínio espaço/tempo é contínuo ou discreto. Uma vantagem deste último reside no facto de a integração numa grelha fixa não uniforme poder ser feita por software disponível, como o desenvolvido por Stewart, Caracotsios e Sorensen (Stewart, 1994 e 1994a).

Vários autores recorreram a métodos de elementos finitos adaptáveis para resolver PDE's parabólicas, como Gannon (Gannon, 1980), Sherman & Seager (Sherman, 1981), Davis & Flaherty (Davis, 1982) and Nowak, Frauhammer & Nieken (Nowak, 1996). Oliveira, Lopes & Castro (Oliveira, 1994) desenvolveram dois algoritmos de grelha adaptativa, baseados no método das linhas, onde o controlador do passo é baseado numa extrapolação de Richardson, conjuntamente com uma estratégia de adaptação da grelha espacial.

2 – ALGORITMO PROPOSTO

O algoritmo apresentado neste trabalho para a resolução de PDE's não lineares com variação do passo nos domínios espaço e/ou tempo é baseado no método das linhas, e utiliza uma estratégia de adaptação da grelha por divisão continuada do passo de integração em determinados sub-domínios onde a estimativa do indicador de erro é superior à tolerância especificada.

Considerando um sistema de $j=1, \dots, J$ PDE's com as correspondentes condições iniciais e fronteiras:

$$\begin{cases} \frac{\partial U(x,t)}{\partial t} = LU(x,t) & , \quad x \in]0,1[\quad , \quad t \in]0, t_f[\\ U^j(x,0) = f^j(x) & , \quad x \in]0,1[\\ BU(x,t) = 0 & , \quad x \in]0,1[\quad , \quad t \in]0, t_f[\end{cases} \quad (1)$$

onde,

$U(x,t) = [U^1(x,t), U^2(x,t), \dots, U^J(x,t)]$, L representa um operador diferencial espacial e B um operador fronteiro, e onde f^j são funções conhecidas.

Aplicando discretização espacial por diferenças finitas de passo h ao sistema (1), ele transforma-se num sistema de $(N+1)*J$ ODE's ou um sistema misto de ODE's e equações algébricas representado por:

$$\begin{cases} \frac{\partial u(t)}{\partial t} = L_h u(t) + b_h \\ u^j(0) = f^j \end{cases} \quad (2)$$

onde,

$u(t) = [u^1(t), \dots, u^J(t)]^T$ representa uma aproximação a $U(x,t)$, $f^j = [f^j(x_0), \dots, f^j(x_N)]^T$, L_h é um operador de diferenças finitas que discretiza L e b_h é um vector de dimensão $(N+1)*J$ que representa as condições fronteiras.

Quando a solução inicial não é conhecida, a solução estacionária nos pontos da grelha fixa, $W_k^h 0$, é determinada para $t_k=0$:

$$W_k^h 0 = [w_{00}^1, w_{10}^1, \dots, w_{N0}^1; w_{00}^2, w_{10}^2, \dots, w_{N0}^2; \dots; w_{00}^J, w_{10}^J, \dots, w_{N0}^J]^T$$

onde,

$$w_{i0}^j \text{ representa uma aproximação para } U^j(x_i, 0), \text{ com } x_i = x_{i-1} + h.$$

A solução no estágio de tempo seguinte, W_{k+1}^h , é estimada por integração do sistema a partir da solução em t_k nos pontos a grelha fixa.

O indicador de erro em t_{k+1} , estimado em metade dos pontos da grelha fixa, é dado por:

$$ETS_{k+1} = W_{k+1}^h - W_{k+1}^{2h}$$

onde,

$$W_{k+1}^{2h} \text{ é a solução integrada em } t_{k+1} \text{ com um passo de } 2h.$$

Se um qualquer dos io componentes do vector ETs satisfizer a condição $\|ETs^{(io)}\| > \text{tolerância}$, então é necessário refinar a solução nos sub-domínios $[x_{io-1}, x_{io+1}]$.

Para cada sub-domínio o refinamento é feito por integração do sistema numa grelha baseada no passo $h/2$. A qualidade da solução é determinada pelo valor do indicador de erro: $ERR_{h/2} = W_{k+1}^{h/2} - W_{k+1}^h$ e se algum dos componentes do vector ERR exceder a tolerância e o número de iterações ainda não for excessivo, o passo de integração é novamente dividido para metade ($h/4$) e a nova solução e o correspondente erro são estimados.

Na última iteração, Ni , a solução obtida, $W_{k+1}^{h/2(Ni)}$, satisfaz uma das condições:

$$\|ERR_{h/2}^{(Ni)}\| = \|W_{k+1}^{h/2(Ni)} - W_{k+1}^{h/2(Ni-1)}\| \leq \text{tolerance}$$

ou

o número de iterações excedeu o limite

e é utilizada para actualizar a solução no estágio t_{k+1} nos pontos da grelha fixa, e a integração prossegue para o estágio de tempo t_{k+2} .

3 – SISTEMA A RESOLVER

O sistema que serviu de base ao estudo apresentado corresponde a um modelo de pistão pseudo-homogénio, com um termo de reacção química com cinética de 1ª ordem, representado por:

$$\begin{cases} \left(\frac{\partial u}{\partial t}\right) = \alpha_1 \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right) + \alpha_2 \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}\right) + \alpha_3 e^{\alpha_4/v} u \\ \left(\frac{\partial v}{\partial t}\right) = \beta_1 \left(\frac{\partial v}{\partial x}\right) + \beta_2 \left(\frac{\partial^2 v}{\partial x^2}\right) + \beta_3 e^{\beta_4/v} u + \beta_5 (v_w - v) \end{cases} \quad (3)$$

obedecendo às condições iniciais e fronteiras descritas por:

$$\begin{cases} \text{em } t = 0, & u(x,0) = u^0(x) \\ & v(x,0) = v^0(x) \\ & v_w(0) = v_w^0 \\ \text{em } x = 0, & \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right) = \frac{L\alpha_1}{\alpha_2} [u_F(t) - u_0(t)] \\ & \left(\frac{\partial v}{\partial x}\right) = \frac{L\beta_1}{\beta_2} [v_F(t) - v_0(t)] \\ \text{em } x = 1, & \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right) = \left(\frac{\partial v}{\partial x}\right) = 0 \end{cases} \quad (4)$$

onde os coeficientes α_i e β_i são definidos no Apêndice A, e as variáveis u , v e v_w são reduzidas:

$$u = \frac{CA}{CA_{ref}} ; \quad v = \frac{T}{T_{ref}} ; \quad v_w = \frac{T_w}{T_{ref}} ; \quad x = \frac{z}{L}$$

com

$$CA_{ref} = CA(x=0, t=0) \quad e \quad T_{ref} = T(x=0, t=0).$$

4 – ESTIMATIVA DA SOLUÇÃO ESTACIONÁRIA

Foram utilizados quatro modelos distintos para determinar a solução do sistema descrito pela equação (3) em estado estacionário, diferindo no tipo de aproximação utilizada para calcular as 1ª e 2ª derivadas, e ainda no modo como as equações relativas aos pontos fronteiros foram resolvidas: conjuntamente com o sistema de equações algébricas ou separadamente.

Na Tabela 1 é apresentado um resumo das condições de resolução para os quatro modelos.

Tabela 1 – Resumo das condições de resolução dos 4 modelos de estado estacionário.

Modelo		A	B	C	D
Derivadas aproximadas por diferenças finitas em	Pontos interiores	2ª ordem	4ª ordem	2ª ordem	2ª ordem
	Pontos fronteiros	2ª ordem	4ª ordem	2ª ordem	1ª ordem
Resolução das equações relativas aos pontos internos e fronteiros		Conjunta	Conjunta	Separada	Conjunta

Dos resultados obtidos com os quatro modelos foi possível concluir que o que melhor representa o comportamento do sistema em estado estacionário é o modelo A, cujos resultados são apresentados na Figura 1, e representam a solução inicial para o problema transiente.

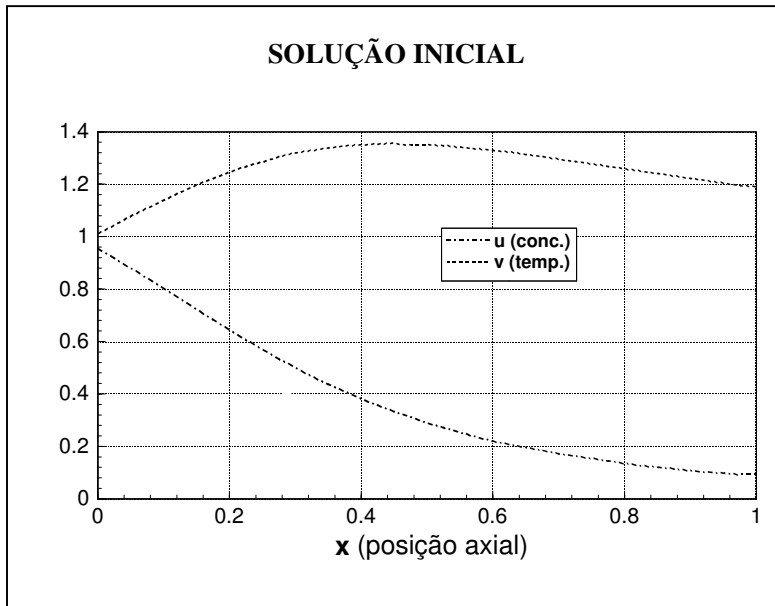


Figura 1 – Solução estacionária do sistema (3) calculada com o modelo A.

5 – SOLUÇÃO DO PROBLEMA TRANSIENTE

O desempenho do algoritmo é avaliado por comparação das soluções estimadas com o refinamento e as respectivas soluções de referência. Uma vez que a solução exacta do problema é desconhecida, a solução de referência é também calculada numericamente, mas com um passo de discretização muito pequeno ($h \rightarrow 0$).

Neste trabalho a solução de referência foi determinada por dois métodos, usando dois tipos de software: DDASAC e PDASAC (desenvolvidos por Stewart, Caracotsios e Sorensen, (Stewart, 1994 e 1994a) e com um passo de discretização de 1/100.

A solução de referência foi determinada quer para um incremento quer para uma diminuição de 20% nas variáveis de entrada do processo: u_F , v_F e v_w , e os resultados mostraram que ambos os métodos são igualmente satisfatórios.

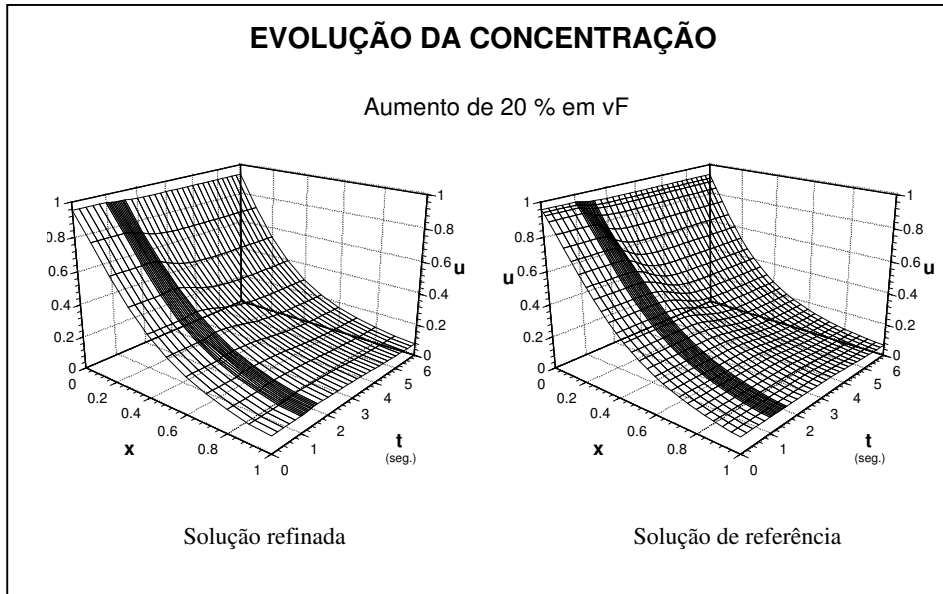
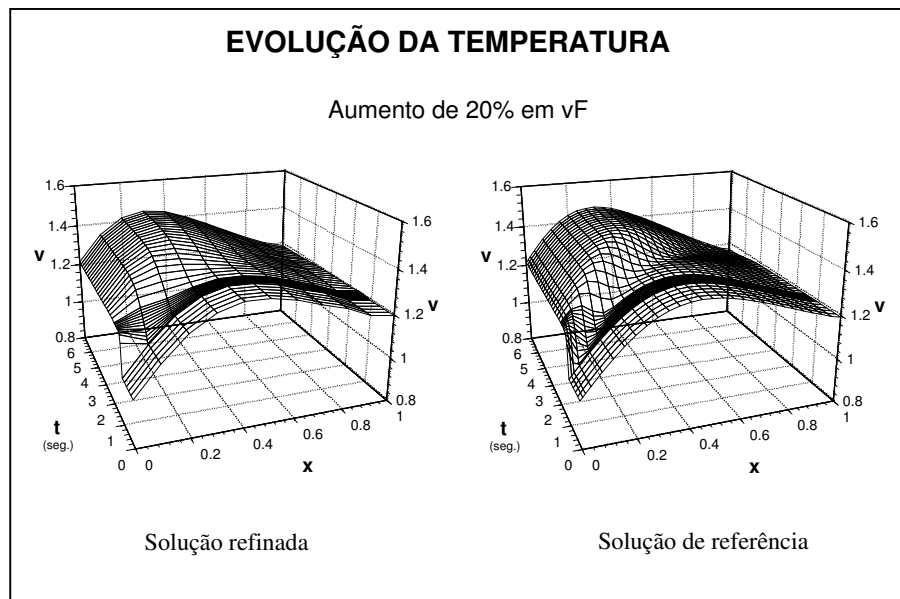
A solução refinada foi calculada para as mesmas situações que foram descritas anteriormente para o cálculo da solução de referência (+20% e -20% em u_F , v_F e v_w), utilizando uma grelha fixa de apenas 10 sub-intervalos de discretização. Para $t \in [0, 1]$ o

sistema encontrava-se em estado estacionário e em $t = 1 \text{ seg.}$ a perturbação foi introduzida. A escala de tempo escolhida não é uniforme para permitir uma melhor reprodução do comportamento do sistema imediatamente a seguir à introdução da perturbação.

Em virtude de os resultados obtidos serem muito vastos, e tendo em linha de conta que são semelhantes, apenas uma das situações simuladas é apresentada, e que corresponde a um aumento de 20% na temperatura da alimentação, v_F .

Na Figura 2 a evolução da concentração é apresentada para ambas as soluções: referência e refinada. É visível a reacção da concentração a uma alteração da temperatura, movimentando-se com rapidez de um estado estacionário para um novo estado estacionário. Também é de salientar que não há diferenças a registar entre as soluções refinada e de referência.

Na Figura 3 são apresentadas as soluções refinada e de referência correspondentes à evolução da temperatura para o mesmo aumento de 20% em v_F e, embora aparentemente as soluções difiram ligeiramente dando a ideia de que a solução refinada é menos precisa do que a solução de referência, na verdade a solução refinada é de facto bastante melhor do que a representação gráfica apresentada. Na verdade, a representação gráfica é limitada aos pontos da grelha fixa (somente 11), embora a solução refinada seja efectivamente conhecida em muitos mais pontos, resultantes do refinamento efectuado em cada sub-domínio. Uma vez que esses sub-domínios variam no tempo e a grelha correspondente é sempre diferente, a representação gráfica é simplificada à forma mais simples.

Figura 2 – Evolução da concentração para um aumento de 20% em v_F .Figura 3 – Evolução da temperatura para um aumento de 20% em v_F .

Na Figura 4 é apresentada a evolução da solução refinada para o mesmo aumento de 20% em v_F . A temperatura rege quase instantaneamente, mas as alterações ocorrem a princípio apenas no início do reactor. A curva para $t = 1.05$ segundos evidencia a transição de um estado estacionário (em $x = 0.1$ v está no estado estacionário inicial) para o segundo, estado estacionário (em $x = 0.0$ v tende para o estado estacionário final) e na curva para $t = 1.5$ seg. é visível a presença simultânea das duas ondas térmicas no interior do reactor. No que respeita à concentração, a evolução de u é mais rápida e não tão significativa, como esperado face a um aumento de temperatura.

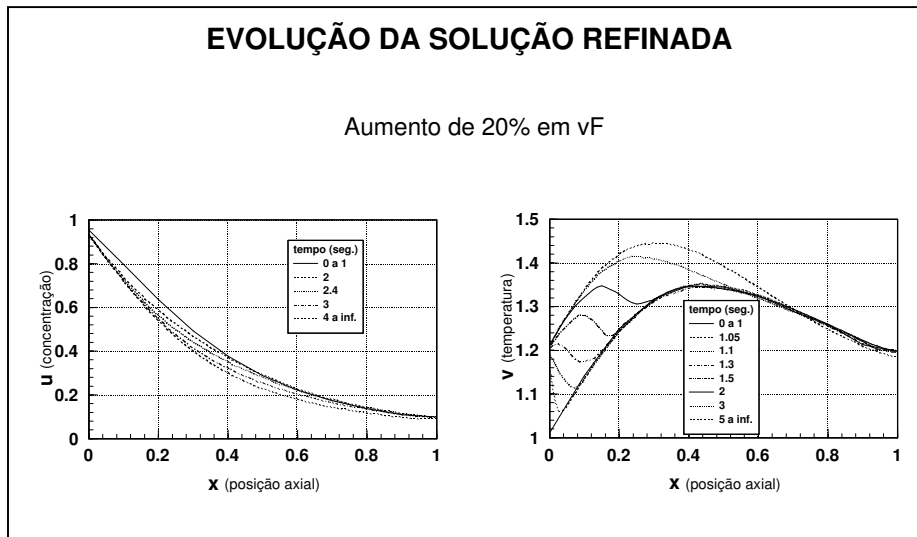


Figura 4 – Evolução da solução refinada.

Um aspecto de particular interesse é apresentado em pormenor na Figura 5 em que se comparam as soluções para $t = 1.05$ seg. e um degrau de +20% em v_F . As soluções comparadas são as soluções de referência calculadas com 11 e 101 pontos de discretização (respectivamente *refer-10i* e *refer-100i*) e a solução refinada calculada com uma grelha fixa base de 11 pontos (*refin-10i*). No início do reactor as soluções *refer-10i* e *refer-100i* são praticamente iguais. Para $x > 0.2$ as curvas *refin-10i* e *refer-10i* são muito similares, com excepção para a parte final do reactor, onde um ligeiro refinamento foi também efectuado. Na zona crítica, o início do reactor, a solução refinada é mesmo melhor do que a solução de referência e demora somente metade do tempo a obter.

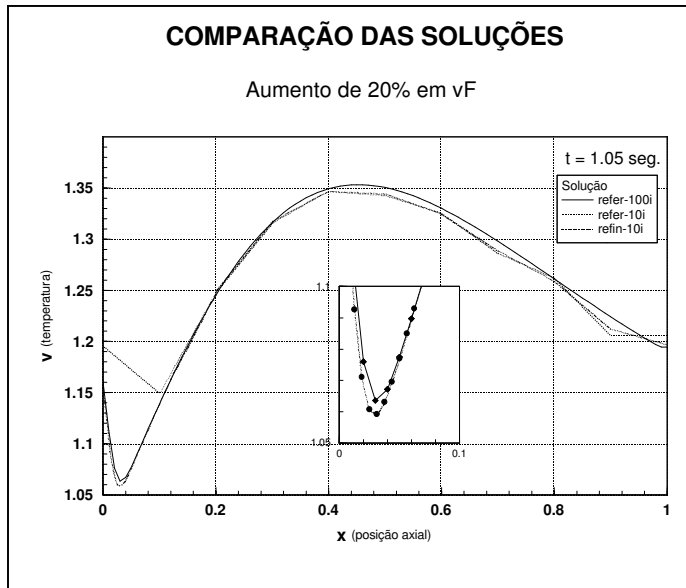


Figura 5 – Comparação de Soluções.

6 – CONCLUSÕES

Do presente trabalho é possível concluir que a solução transiente calculada com o algoritmo proposto mostra que uma grelha fixa de apenas 11 pontos é suficientemente satisfatória, embora origine alguma dissipação em locais de baixa concentração de pontos da grelha. Por outro lado, permite obter melhores soluções em locais de maior actividade, correspondentes à presença simultânea das duas ondas que viajam dentro do reactor. Mais importante a salientar é ainda o facto de permitir uma economia de 50 % no tempo de computação, representando uma grande vantagem e permitindo uma rápida resposta às modificações induzidas nas variáveis de entrada no sistema, contribuindo para minimizar os efeitos indesejáveis que essas alterações poderiam ter no sistema reaccional e na atmosfera que o envolve.

BIBLIOGRAFIA

Blom, JG, Sanz-Serna JM, Verwer JG. On Simple Moving Grid Methods for One Dimensional Evolution Partial Differential Equations. *Journal of Computational Physics* 1986; **74**:191-213.

Davis S, Flaherty J. *SIAM Journal on Scientific and Statistical Computing* 1982, **3**:6.
Eisenberg G, Butt JB. A Modified Crank-Nicholson Technique with Non-Equidistant Space Steps. *Chemical Engineering Science* 1976; **31**:681-691.

Ferguson NB, Finlayson BA. Transient Chemical Reaction Analysis by Orthogonal Collocation. *The Chemical Engineering Journal* 1970; **1**:327-336.

Gannon D. Self Adaptive Methods for Parabolic Partial Differential Equations, Department of Computer Science, UIUCDCS-R-80-1020, University of Illinois-U.C., 1980.

Gardini L, Servida A, Morbidelli M, Carra S. Use of Orthogonal Collocation on Finite Elements with Moving Boundaries for Fixed Bed Catalytic Reactor Simulation. *Computers & Chemical Engineering* 1985; **9**(1):1-17.

Guiné RPF. Resolução de Sistemas de Equações Diferenciais de Derivadas Parciais. Algoritmos de Refinamento Espacial. *Master Thesis*, Dep. Chemical Engineering, Faculty of Science, University of Coimbra, Portugal, 1996.

Nowak U, Frauhammer J, Nieken U. A Fully Adaptive Algorithm for Parabolic Partial Differential Equations in One Space Dimension. *Computers & Chemical Engineering* 1996, **20**(5):547-561.

Oliveira F, Oliveira P, Lopes MC, Castro JAAM. Two Adaptive Grid Methods for Fixed Bed Systems Simulation. *Computers & Chemical Engineering* 1994, **18**(3):227-243.

Sherman A, Seager M. Advances in Computer Methods for Partial Differential Equations, IV. *Intl. Assoc. for Math. And Comp. In Simulation* 1981; **88**, Vichnevetsky and Stepleman, Eds.: New Jersey.

Stewart WE, Caracotsios M, Sorensen JP. DDASAC Software Package Documentation, 26 May 1994.

Stewart WE, Caracotsios M, Sorensen JP. PDASAC Software Package Documentation, 26 May 1994a.

NOMENCLATURA

A – constante de Arrhenius [s^{-1}]

B – representa o operador fronteiro

CA – concentração do componente [mol/m^3]

CA_{ref} – concentração de referência de A [mol/m^3]

$D_{e,z}$ – coeficiente de difusão [m^2/s]

d_p – diâmetro das partículas de catalisador [m]

d_t – diâmetro do tubo [m]

Ea – energia de activação [J/mol]

ETs – vector que representa o indicador de erro espacial

$K_{c,z}$ – condutividade térmica [$W/m K$]

L – comprimento do reactor [m]

L – representa um operador diferencial espacial

N – número de intervalos de discretização

R – constante dos gases [$J/mol K$]

t – tempo [s]

T – temperatura [K]

T_{ref} – temperatura de referência [K]

T_w – temperatura da parede [K]

u – concentração reduzida

U – coeficiente global de transferência de calor [$W/m^2 K$]

$u^0(x)$ – variação de u com x para $t=0$

$u_0(x)$ – variação de u com t para $x=0$

u_{it} – velocidade intersticial do fluido [m/s]

v – temperatura reduzida

$v^0(x)$ – variação de v com x para $t=0$

$v_0(x)$ – variação de v com t para $x=0$

v_w^0 – temperatura da parede reduzida for $t = 0$

x – posição axial (x_0, \dots, x_N)

W – vector contendo os valores de u e v nos vários pontos de discretização

W_k^h – vector de estado no tempo k , para discretização com passo h

z – dimensão longitudinal do reactor [m]

α_A – coeficiente estequiométrico

$(-\Delta H)$ – calor de reacção [J/mol]

ε - porosidade

ρ_b – massa volúmica do catalisador [kg/m^3]

$(\rho cp)_f$ – referente ao fluido [$J/m^3 K$]

$(\rho cp)_{med}$ – valor médio entre (ρcp) do fluido e do catalisador [$J/m^3 K$]

APÊNDICE A

$$\alpha_1 = -\frac{u_{ii}}{L} = -0.33$$

$$\beta_1 = -\frac{\varepsilon u_{ii}}{L} \frac{(\rho cp)_f}{(\rho cp)_{med}} = -0.18$$

$$\alpha_2 = \frac{D_{e,z}}{L} = 0.01$$

$$\beta_2 = \frac{K_{e,z}}{L (\rho cp)_{med}} = 1.5e-3$$

$$\alpha_3 = \frac{\alpha_A \rho_b A}{\varepsilon} = -0.90$$

$$\beta_3 = \frac{(-\Delta H) A \rho_b}{(\rho cp)_{med}} \frac{CA_{ref}}{T_{ref}} = 5.00$$

$$\alpha_4 = -\frac{E_a}{R T_{ref}} = -3.00$$

$$\beta_4 = -\frac{E_a}{R T_{ref}} = -3.00$$

$$\beta_5 = \frac{4 U}{d_t (\rho cp)_{med}} = 0.50$$