

# FLUIDODINÂMICA COMPUTACIONAL APLICADA AO ESTUDO DA REAÇÃO DE GAS-SHIFT EM REATORES DE MICROCANALIS

F. A. ARNALDO<sup>1</sup>, J. P. S. ANDRADE<sup>2</sup>, A. S. SILVA<sup>3</sup>, E. JESUS<sup>1</sup>, A. L. D. RAMOS<sup>4</sup>, R. L. PAGANO<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Universidade Federal de Sergipe, Departamento de Engenharia Química

<sup>2</sup> Universidade Federal de Sergipe, Núcleo de Graduação em Engenharia de Petróleo

<sup>3</sup> Universidade Federal de Sergipe, Departamento de Matemática

<sup>4</sup> Universidade Federal de Sergipe, Departamento de Engenharia Ambiental

e-mail para contato: rpagano@ufs.br

**RESUMO** – Novas tecnologias vêm sendo estudadas para a obtenção de reatores mais eficientes e que ocupem menor área. Nesse contexto, a tecnologia de reatores de microcanais vem sendo bastante promissora devido a intensificação dos processos de transferência de massa e energia no interior do reator, bem como pelas menores dimensões de projeto. Um dos processos que podem utilizar este tipo de reator é processo GTL que visa a transformação de gás natural em compostos de cadeia longa e de maior utilização em escala industrial. Com o intuito de realizar um estudo teórico preliminar das condições de um reator de microcanais para o processo GTL, a reação de deslocamento gas-shift foi escolhida por ser uma das suas etapas. No presente trabalho, a simulação foi realizada utilizando o software ANSYS CFX. Inicialmente, um estudo de convergência de malha foi realizado. Em seguida, a cinética da reação foi introduzida no software e os perfis de temperatura de conversão foram determinados.

## 1. INTRODUÇÃO

Novas tecnologias vêm sendo estudadas para a obtenção de reatores mais eficientes e que ocupem uma menor área. Devido a essa necessidade, a tecnologia de microreatores vem impulsionando vários ramos da engenharia química nas últimas décadas.

De acordo com Ramos *et al.* (2011), o processo GTL (*gas-to-liquid*) visa a transformação de gás natural em compostos de cadeia longa e de maior utilização em escala industrial. Alguns destes compostos são a gasolina e o querosene, compostos que ocupam menor volume, facilitando assim a logística de transporte de seus produtos. É uma tecnologia amigável do ponto de vista ambiental, pois seus produtos possuem baixos teores de compostos poluentes. Além disso, os gases do efeito estufa são utilizados como matéria-prima para a síntese, entre outros processos. O processo do GTL é composto de três etapas principais: formação do gás de síntese, síntese de Fischer-Tropsch e *upgrading*. Sendo que a síntese de Fischer-Tropsch é a etapa-chave do processo GTL. Nela, o gás de síntese é transformados em hidrocarbonetos de cadeia longa e compostos oxigenados, através de reação catalítica, que, em geral, utiliza Fe ou Co como catalisadores, liberando energia (Arzamendi *et al.*, 2010). Ainda, segundo este autor o uso de reatores de microcanais em reações exotérmicas tem

sido bastante promissor, pois os reatores convencionais possuem baixa capacidade de remoção de calor se comparado aos microreatores. Os mesmos possuem altos coeficientes de transferência de calor possibilitando uma elevada distribuição da energia térmica prevenindo o surgimento de pontos quentes.

Neste cenário, o presente trabalho utilizou a técnica da fluidodinâmica computacional para obter resultados preliminares dos fenômenos de transporte associados a reação *gas-shift* em um reator de microcanais.

## **1.1. Processo GTL (Gas-to-Liquid)**

O processo GTL tem como objetivo a conversão de gás natural ou outros hidrocarbonetos gasosos em hidrocarbonetos de cadeias maiores. Assim, ao converter o gás natural em um combustível sintético, a tecnologia GTL transforma um produto pouco visado no mercado num produto com maior impacto, já que o consumo mundial de gás natural corresponde a cerca de 20% do consumo de petróleo, mesmo ambos possuindo volumes aproximados em reservas recuperáveis (Santana, 2006). Segundo Ramos *et al.* (2011) a tecnologia GTL apresenta algumas vantagens em relação à produção de hidrocarbonetos derivados do petróleo. Dentre esses proveitos estão a produção de diesel de alta qualidade, alto rendimento de hidrocarbonetos lineares e o maior rendimento de produtos de alto valor agregado. Além disso, qualidade dos lubrificantes produzidos pelo processo GTL é bastante superior à dos derivados do petróleo. Logo pode substituir parcialmente o petróleo como matéria-prima para produção de combustíveis.

Além das vantagens já citadas, a tecnologia GTL oferece alternativa quanto ao alto custo do transporte do gás natural até o mercado consumidor através da diminuição considerável do volume a ser transportado. Assim, há possibilidade de acesso às reservas remotas, suprimindo a crescente demanda de energia.

## **1.2. Reator de Microcanais**

Dentro da tecnologia convencional GTL, são utilizados diversos tipos de reatores, cada um com suas vantagens e conveniências. Os principais tipos são os reatores de leito fluidizado, reator de lama e reatores tubulares de leito fixo. Novas tecnologias estão sendo estudadas para a obtenção de reatores mais eficientes e que ocupem menor área, nesse contexto a tecnologia microcanais vem sendo bastante promissora. Uma das vantagens de se utilizar reatores microestruturados é a precisão no controle da temperatura. Este controle é devido à alta razão entre área superficial e volume nos microcanais e o consequente acoplamento entre as temperaturas dos canais e das paredes. Isso pode ser explicado pela rápida dissipação do calor gerado em reações altamente exotérmicas ou pelo ajuste da temperatura para que a cinética da reação ocorra numa faixa considerável ótima (Baier e Gunther, 2007).

Aplicada a uma das etapas do processo GTL, especificamente na síntese de Fischer-Tropsch (FT), a tecnologia microcanais ajuda a minimizar alguns dos problemas enfrentados em reatores convencionais. Os microcanais apresentam altos coeficientes de transferência de calor, ajudando a

solucionar os problemas relacionados com a transferência de energia. A seletividade também é favorecida pelos pequenos comprimentos de difusão dos microcanais, prevenindo a depleção de CO, o que resulta também em cadeias menores (Arzamendi *et al.*, 2010).

### **1.3. Fluidodinâmica Computacional**

A Fluidodinâmica Computacional (CFD) é uma ferramenta baseada em um método numérico para simular o comportamento de sistemas que envolvem fluxo de fluidos, transferência de calor, e outros processos físicos relacionados. Ela baseia-se na resolução das equações de fluxo de fluido ao longo de uma região de interesse, com condições especificadas no contorno dessa região. Segundo Hu (2012), a técnica de CFD apresenta inúmeras vantagens quando comparado com a fluidodinâmica experimental, tais como a produção rápida e de baixo custo, produção de informações completas e de fácil acesso a todas as variáveis relevantes em cada domínio, permite a mudança de variáveis de forma rápida e fácil, simula condições realísticas e ideais (inacessíveis em estudos experimentais).

## **2. METODOLOGIA**

### **2.1. Software e Hardware**

Neste trabalho foi utilizado o pacote comercial de ANSYS CFX 14.0. As simulações foram realizadas em um servidor IBM com processador Intel Xeon six-core 2.0 GHz e 8,0 GB de memória RAM. A geometria foi criada com a ferramenta *Design Modeler*, utilizou-se a ferramenta *Meshing* para criação da malha e o pacote CFX para resolução das simulações, todos pertencentes à ANSYS.

### **2.2. Geometria Reator Microcanais**

O reator foi construído seguindo as especificações de Arzamendi *et al.* (2010), constituído de um bloco de aço, com 17 mm de altura, 21 mm de largura e 21 mm de comprimento, contendo 80 microcanais arrançados de forma cruzada fornecendo 40 microcanais em cada direção, para a simulação da reação e água de resfriamento, respectivamente. Os microcanais são quadrados e têm 1 mm de lado, cada. A distância entre os microcanais e entre os microcanais mais externos e a superfície externa do reator é de 1 mm. O acesso à entrada e saída dos microcanais é através de câmaras retangulares com 17 mm de altura, 21 mm de largura e 10 mm de comprimento que são conectados à tubos circulares com 7,2 mm de diâmetro através de flanges piramidais com 10 mm de comprimento. Os fenômenos de transferência de massa e de energia foram restritos aos microcanais. A Figura 1(a) apresenta a geometria do reator.

### **2.3. Geração da Malha, Pré-Processamento e Solução**

A construção da malha foi realizada com as configurações predefinidas do software *Meshing*, para uma maior convergência dos resultados foi realizado um estudo de convergência de malha de acordo com a ASME (2008). A Figura 1(b) representa a malha final do reator. Na etapa de pré-processamento, foram criados três domínios: um domínio sólido, para o bloco de

aço, e dois domínios fluidos, um para o transporte de água e outro para o transporte de gás de síntese. Inicialmente, o objetivo foi o de apenas verificar como se comportava o perfil de temperatura nos microcanais, posteriormente, foi inserida a cinética de reação.

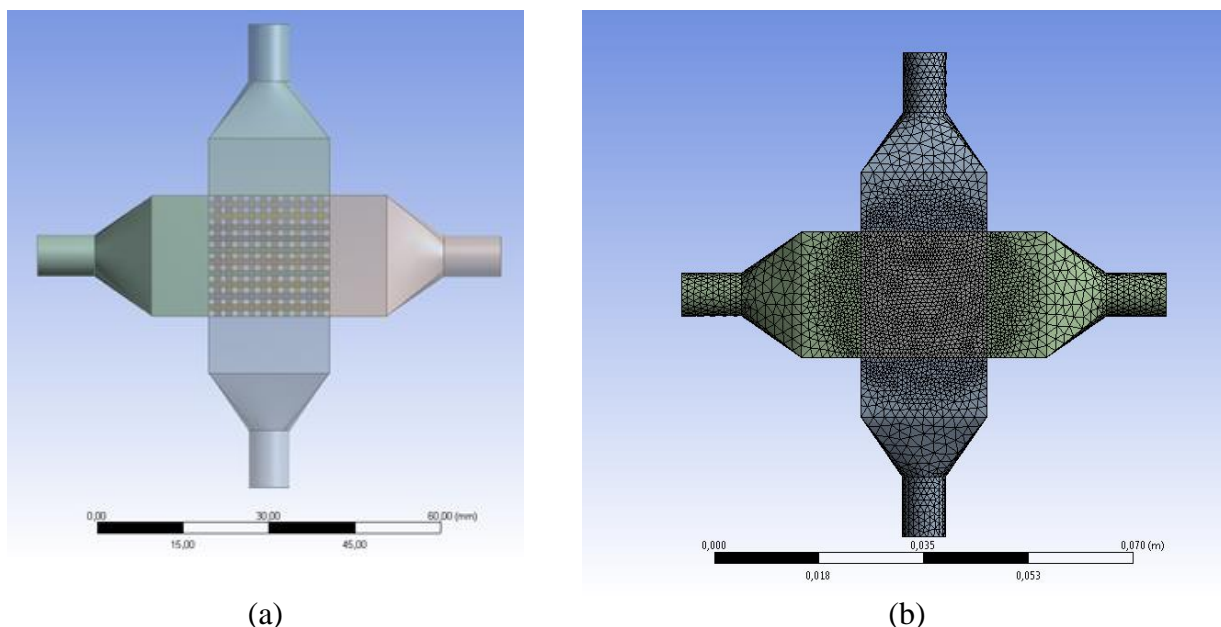


Figura 1 – Reator de microcanais (a) geometria e (b) representação dos volumes de controle na superfície do reator.

**Modelagem da transferência de calor:** Para a simulação da transferência de calor foram criados três domínios: domínio água (em que passará o agente de arrefecimento), domínio gás de síntese (no qual ocorrerá a reação) e domínio cubo (que servirá como condutor de calor). As condições de contorno de entrada, saída foram propostas de acordo com Arzamendi *et al.* (2010). A Tabela 1 descreve os domínios e suas principais características. Para os diferentes domínios (água, sólido e gás de síntese) foram inseridas condições de contorno e inicialização. A Tabela 2 apresenta as condições empregadas em cada domínio.

Tabela 1- Configurações utilizadas para cada domínio.

Nome do Domínio	Tipo de Domínio	Transferência de Calor	Turbulência
Água	Fluido	Energia Térmica	Laminar
Sólido	Sólido	Energia Térmica	-
Gás de Síntese	Sólido	Energia Térmica com fonte de energia	Laminar

**Modelagem da cinética de reação:** Após o estudo da transferência de calor no reator, um estudo preliminar para o processo foi realizado com a inserção da cinética da reação de *gas-shift*

(cinética de reação de reforma a vapor proposta por Xu e Froment (1989)). Algumas configurações também estão apresentadas na Tabela 2.

Tabela 2- Condições de contorno e inicialização utilizadas nos domínios.

Condições de Contorno	Temperatura (K)	Vazão (kg/s)	Material	Pressão (atm)	Transferência de calor
Entrada Água	483 <sup>a</sup> 793 <sup>b</sup>	4,17.10 <sup>-5 a</sup>	Vapor de água	1 <sup>ab</sup>	Energia térmica
Saída Água	-	-	-	1 <sup>ab</sup>	Energia térmica
Paredes água	-	-	-	-	Conservativo no fluxo
Entrada Gás de Síntese	523 <sup>a</sup> 800 <sup>b</sup>	5,124.10 <sup>-6 a</sup> 0,125 <sup>b</sup>	CO (33%) ; H <sub>2</sub> (67%) <sup>a</sup> CH <sub>4</sub> (18,5%) ; CO (0,01%) ; CO <sub>2</sub> (2,8%) ; H <sub>2</sub> (0,3%) ; H <sub>2</sub> O (69,7%) <sup>b</sup>	1 <sup>a</sup> 29 <sup>b</sup>	Energia térmica
Saída gás de Síntese	-	-	-	1 <sup>ab</sup>	Energia térmica
Paredes gás de síntese	-	-	-	-	Conservativo no fluxo
Paredes Cubo	-	-	Aço	-	Conservativo no fluxo

<sup>a</sup>Valores referentes modelagem da transferência de calor.

<sup>b</sup>Valores referentes à simulação da cinética de reação.

### 3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

#### 3.1. Estudo de Malha

Para o estudo de convergência de malha foram proposta três refinamentos de malha com razão de refino médio de 1,2 e a variável de parâmetro escolhida para o estudo foi a temperatura. A Tabela 3 representa os parâmetros de cada refinamento assim como o índice de convergência (GCI) da malha entre os refinamentos.

No presente trabalho, um limite de CGI inferior a 0,1 adotado, deste modo, a malha com refinamento 1 foi utilizada nos estudos posteriores. Contudo, devido a oscilação nos valores da temperatura, um estudo mais detalhado será realizado para confirmar a estabilidade dos resultados.

### 3.2. Modelagem da Transferência de Calor

Após o estudo de convergência de malha foram simuladas as condições de Arzamendi *et al.* (2010). Com os resultados preliminares obtidos, pode-se observar a distribuição de temperatura ao longo do reator, no cubo de aço, as temperaturas de saída e entrada nos diferentes domínios e o tempo de residência do fluido. A Figura 2 mostra a distribuição de temperatura ao longo do cubo.

Tabela 3- Índices de convergência para diferentes refinamentos.

	Refinamento 1	Refinamento 2	Refinamento 3
Numero de elementos	124.109	69.759	32.750
Parâmetro	$\phi_1$	$\phi_2$	$\phi_3$
Valor	572,33	611,33	608,22
Índice de convergência de Malha (%)	0,07		0,53

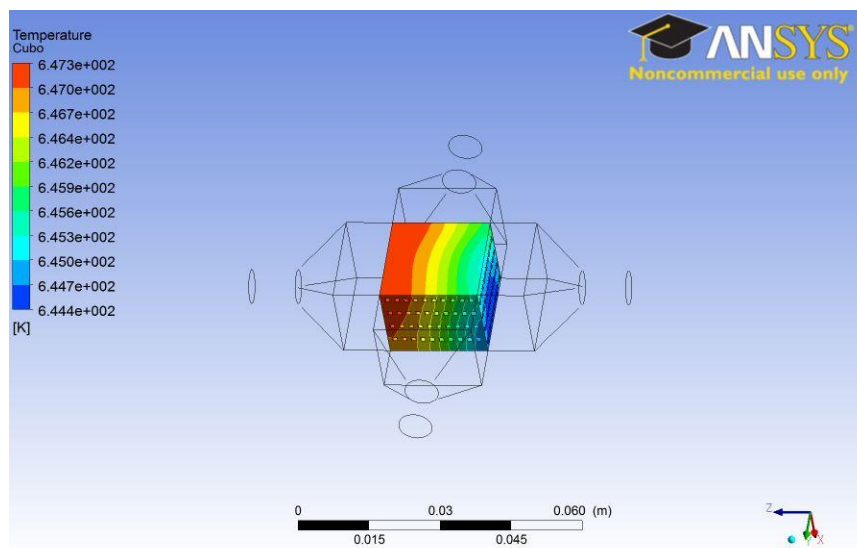


Figura 2 - Perfis de temperatura no interior do reator.

A Tabela 4 apresenta os valores simulados da temperatura em diferentes pontos do reator, bem como os valores para o tempo de residência do fluido. Verificou-se que a variação de temperatura no cubo de aço é pequena, este fenômeno pode ser explicado devido a um elevado coeficiente térmico global, alcançando valores médios de  $264,7 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ . Além da alta

transferência de calor, nos dados, observa-se que os valores de tempo de residência para o reator de microcanais estão na ordem de centésimos de segundos.

Tabela 4 - Valores de temperatura e tempo de residência para os diferentes domínios

	Domínio Vapor de água	Domínio Gás de Síntese	Domínio Cubo
Temperatura de Entrada (K)	300,0	523,0	-
Temperatura de Saída (K)	486,0	486,8	-
Temperatura de Máxima (K)	504,8	523,0	644,4
Temperatura Mínima (K)	486,1	504,4	647,3
Tempo de Residência (s)	0,20	0,14	-

A Figura 3(a) descreve o decaimento da temperatura na região dos microcanais. As simulações para o reator de microcanais gerou resultados que corroboram com os obtidos de Arzamendi *et al.* (2010). Alta eficiência térmica aliada a tempos de residência inferiores quando comparado a reatores convencionais comprovam a viabilidade do uso de microreatores em situações que exigem alto controle térmico.

### 3.3. Modelagem da Cinética de Reforma a Vapor

Inserida as taxas da reação de Xu e Froment (1989), foram avaliadas as frações dos componentes ao longo do reator e as taxas de conversão para o metano e hidrogênio. A Figura 3(b) representa as frações molares dos componentes no microreator.

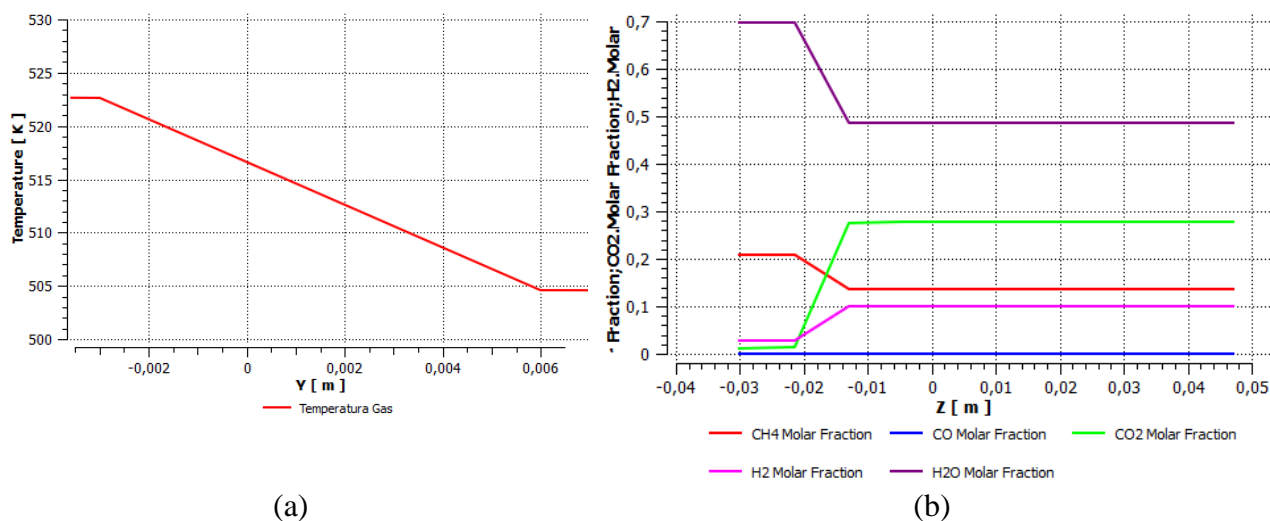


Figura 3 – Perfis de (a) temperaturas e (b) fração molar dos componentes ao longo do reator de microcanais.



A simulação da reação restringida aos microcanais possibilitou uma conversão de 28 % para metano e 32% para o hidrogênio. Observa-se que na região de microcanais a cinética de equilíbrio não alcançou o equilíbrio, sendo necessário um estudo mais aprofundado para a otimização do reator.

#### **4. CONCLUSÃO**

Baseado nos resultados preliminares percebe-se que aplicação da fluidodinâmica computacional pode gerar resultados satisfatórios para o processo GTL, tanto para os fenômenos de transferência de calor como de reação química. Nota-se que o estudo de convergência de malha auxiliou na obtenção dos resultados, uma vez que quantifica a melhoria alcançada com o aumento do número de volumes de controle. Além disso, esses resultados preliminares indicam que reatores de microcanais são bastante promissores em processos que venham a exigir um controle avançado de temperatura, devido aos seus altos índices de transferência de calor.

#### **5. AGRADECIMENTOS**

A Petrobras S/A, ao CNPq e a FAPITEC pelo incentivo financeiro através dos projetos de pesquisa aprovados.

#### **6. REFERÊNCIAS**

ARZAMENDI, G.; DIÉGUEZ, P. M.; MONTES, M.; ODRIZOLA, J. A.; FALABELLA SOUSA-AGUIAR, E.; GANDÍA, L.M. Computational Fluid Dynamics Study of Heat Transfer in a Microchannel Reactor for Low-Temperature Fischer-Tropsch Synthesis. *Chem. Eng. J.*, v. 160, n. 3, p. 915-922, 2010.

ASME, Procedure for Estimation and Reporting of Uncertainty Due to Discretization in CFD Applications. *J. Fluid. Eng.*, v. 130, p. 1-4, 2008.

BAIER, T.; GUNTHER, K. Temperature Control of Gas Shift Reaction in Microstructured Reactors. *Chem. Eng. Sci.*, v. 62, p. 4602-4611, 2007.

HU, H. H. Computational Fluid Dynamics. In: ELSEVIER INC. *Fluid Mechanics*, 5 ed., cap. 10, 2012.

RAMOS, A. L. D.; MARQUES, J. J.; SANTOS, V.; FREITAS, L. S.; SANTOS, R. G. V. M.; SOUZA, M. M. V. M. Atual Estágio de Desenvolvimento da Tecnologia GTL e Perspectivas para o Brasil. *Quím. Nova*, v. 34, p. 1704-1716, 2011.

SANTANA, C. N. Síntese de Fischer-Tropsch: Processos Industriais e Adsorção de CO em Aglomerados Metálicos. Projeto Final de Curso. Escola de Química/UFRJ, 2006.

XU, J., FROMENT, G. F. Methane steam reforming, methanation and water-gas shift: I. Intrinsic kinetics, *AIChE Journal*, v.35, p. 88-96, 1989.