

## MUTAGENICIDADE DOS POLUENTES PROVENIENTES DO MOTOR DIESEL EM PÊLOS ESTAMINAIS DO COLONE KU-20

### Deuzuita S. Oliveira

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
deuzuita@sc.usp.br

### Paula M. Crnkovic

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
paulam@sc.usp.br

### Josmar D. Pagliuso

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
josmar@sc.usp.br

**Resumo.** O propósito deste trabalho foi avaliar o potencial de risco mutagênico dos poluentes provenientes da exaustão de um motor diesel por meio da contagem de eventos mutagênicos surgidos em inflorescências do clone KU-20 de *Tradescantia* após exposição de curta duração. Nos experimentos, a exaustão do motor Diesel foi diluída com ar atmosférico de modo a atingirem concentrações típicas de uma atmosfera poluída (50, 100 e 150 ppm de CO). Obtidos estes níveis de diluição, as inflorescências foram expostas a esta mistura de poluentes por duas horas respectivamente, e, monitorada por meio de um analisador de gás Horiba. Para se avaliar o efeito mutagênico, foi feita uma comparação das inflorescências não expostas aos poluentes (grupo 1), com as inflorescências expostas aos poluentes (grupos 2, 3 e 4). Análises estatísticas mostraram que a frequência média de mutações do grupo 1 foi significativamente mais baixa do que aquela dos grupos 3 e 4, porém foi similar a do grupo 2. Por sua vez, os grupos 3 e 4 apresentaram um aumento percentual nas mutações em torno de 70 % em relação o controle. Os resultados indicaram que as emissões provenientes da exaustão do motor a diesel desempenham um papel significativo no desenvolvimento de mutações..

*Palavras chave:* motor diesel, poluição do ar, poluentes orgânicos e mutagenicidade.

### 1. Introdução

A variedade de substâncias lançadas na atmosfera é muito grande e freqüentemente os veículos automotores são os principais emissores de poluentes, nas cidades, com forte participação daqueles que utilizam motores diesel. Essa emissão é composta principalmente por gases como monóxido de carbono (CO), óxidos de nitrogênio (NO<sub>x</sub>), hidrocarbonetos totais (THC), óxidos de enxofre (SO<sub>x</sub>), e material particulado (MP) (CETESB 2004).

De acordo com D'Amato et al. (1994), os poluentes gasosos de origem veicular lesam os tecidos epiteliais, tornando-os mais sensíveis às infecções além de atuarem como irritantes das vias aéreas. Os produtos de combustão típicos de motor diesel mostraram associações com a mortalidade por câncer de pulmão (Abbey et al. 1999) e, segundo a Agência Internacional de Pesquisa sobre o Câncer (IARC 1989) são potencialmente carcinogênicos aos seres humanos. O efeito carcinogênico da exposição a estes gases ocorre principalmente devido à inalação de material particulado, pois é na sua superfície que são adsorvidos os compostos policíclicos aromáticos (HPAs), considerados mutagêneos e carcinógenos (Huisin et al. 1978).

Medidas físico-químicas podem ser utilizadas para fornecer dados sobre a qualidade do ar, porém não podem ser usados para se prever os riscos aos quais os seres vivos estão sujeitos.

O acompanhamento de reações mostradas por determinados seres vivos na presença de poluentes atmosféricos, metodologia denominada biomonitoramento, tem sido uma ferramenta útil e importante no fornecimento de informações rápidas e seguras quanto aos efeitos antropogênicos no meio ambiente e, ainda, para prever os riscos de danos aos ecossistemas naturais e à saúde dos seres vivos expostos aos poluentes. Além disso, estes organismos bioindicadores reagem aos poluentes e a outros fatores ambientais de maneira integrada, tornando a medida da qualidade do ar mais realista sob o ponto de vista biológico (Flores 1987, Arndt & Schweiger 1991).

Espécies vegetais, por serem mais sensíveis à poluição que os animais, têm sido muito usadas como bioindicadoras em programas de biomonitoramento da qualidade do ar. Dentre as principais características que fazem com que as espécies vegetais sejam bons bioindicadores, pode-se salientar: a capacidade de diferenciar e descrever mudanças

ambientais, relevância ecológica, facilidade de cultivo, capacidade de responder aos estímulos ambientais rapidamente, entre outros (Arndt & Schweiger 1991).

Batalha et al. (1999) prepararam soluções com amostras de MP obtidas do ar do centro de São Paulo e incubaram inflorescências de *Tradescantia pallida* e verificaram que houve um aumento significativo na frequência de micronúcleos em células mães de grãos de polens (bioensaio Trad-MCN) na medida em que as soluções tornavam-se mais concentradas.

Há bioensaios bem padronizados com clones de plantas do gênero *Tradescantia* em que são utilizadas quebras cromossômicas em células mãe de grãos de pólen e eventos mutagênicos em pelos estaminais, denominados como bioensaios Trad-MCN e Trad-SH respectivamente. Para o segundo caso, os riscos mutagênicos são indicados pela mudança de cor das células.

Esses bioensaios podem ser considerados indicadores gerais de contaminação, por não responderem de maneira específica a certos poluentes atmosféricos. Porém, além de serem muito sensíveis, já mostrando reações em baixos níveis de contaminação ambiental, e rapidamente responderem aos agentes genotóxicos, foram padronizados para plantas geneticamente uniformes (clones), o que proporciona reduções na variabilidade das respostas e, conseqüentemente, uma interpretação mais segura dos resultados. São ainda de fácil execução, uma vez que não há necessidade de uso de infra-estrutura complexa de laboratório, além de serem bastante versáteis podendo ser utilizados para delimitação do potencial genotóxico de agentes presentes no ar, água e solo.

Em vista desse cenário, o objetivo deste estudo é empregar o bioensaio Trad-SH para avaliar o risco mutagênico de doses agudas de gases provenientes da exaustão de motor diesel.

## 2. Materiais e Métodos

A planta bioindicadora utilizada nos experimentos foi o clone KU-20 de *Tradescantia* (Fig. 1), desenvolvida na universidade de Kyoto-Japão (Ichikawa 1984). Sua origem exata é desconhecida, contudo, apresenta parte das características de *T. Ohiensis* parecendo originar-se de um híbrido entre essa espécie e uma outra não determinada (Ichikawa 1992). Para este trabalho as primeiras mudas foram cedidas pela Faculdade de Medicina da USP-SP, as quais foram cultivadas nos canteiros do NETeF da Escola de Engenharia de São Carlos (EESC).



Figura 1. Clone KU-20 da *Tradescantia*.

Nos ensaios, as inflorescências do clone KU-20 de *Tradescantia* foram expostas às emissões resultantes da exaustão do motor diesel (Fig. 2), em diferentes diluições, por 2 horas.

Para se obter as diluições desejadas, os gases do motor foram misturados com ar atmosférico, através de um misturador de gases fabricado no próprio NETeF (Fig. 2), cuja vazão foi ajustada por válvulas manuais. Estabelecido o ajuste, a mistura era continuamente conferida por um analisador de gás específico para CO (HORIBA ENDA 1400, modelo VIA-510 – Fig. 3).

Foram estabelecidos quatro grupos experimentais conforme descrito abaixo:

*Grupo um (controle)*: inflorescências colhidas no canteiro do NETeF, inseridas na câmara por duas horas, porém não submetidas à exaustão do motor.

*Grupo dois*: inflorescências intoxicadas com as emissões da exaustão do motor diluídas com ar atmosférico. A diluição foi feita com base na concentração de CO, que ficou em torno de 50 ppm.

*Grupo três*: Semelhante ao grupo dois, porém a diluição foi feita com base na concentração de CO, fixada em torno de 100 ppm.

*Grupo quatro:* Semelhante ao grupo dois, porém com concentração de 150 ppm. Os experimentos foram feitos no período de maio a novembro de 2004.

Após a intoxicação, as inflorescências foram retiradas das câmaras e mantidas em um becker com água sob um sistema de aeração, por aproximadamente três dias. Durante este período e diariamente, à medida que as flores se abriam, estas eram coletadas e analisadas quanto ao número de eventos de mutação nos pêlos estaminais. As coletas e análises eram feitas no período matutino, quando as flores estavam abertas.



Figura 2. Motor a diesel 2.0.



Figura 3. Misturador de gases.



Figura 4. Analisadores de gases (HORIBA).

Para se fazer a leitura ao microscópio foi feito o seguinte procedimento:

1- Primeiramente os seis estames de cada flor foram colocados lado a lado sobre uma lâmina e, sobre cada estame acrescentou-se uma gota de água;

2- Em seguida, os pêlos estaminais foram alinhados manualmente com uma pinça de modo a facilitar sua visualização.

3- Após o procedimento anterior, os pêlos estaminais foram observados sob microscópio estereoscópico marca ZEISS, modelo Stemi 2000-C acoplado com câmara AxioCam marca ZEISS modelo MRRC.

4- Após a contagem, foi feita uma estimativa do número de eventos de mutação por 1000 pêlos estaminais.

Todo esse procedimento, desde a exposição até a contagem de mutações em pêlos estaminais de *Tradescantia*, é referido comumente na literatura como bioensaio Trad-SH e está descrito em detalhes em Oliveira (2005).

Na Fig. 5 é apresentada a câmara usada para a intoxicação das plantas com os poluentes gasosos. As mesmas foram montadas com recipientes plásticos fechados com tampa rosqueável com dois orifícios, sendo um para entrada e outro para saída dos gases. estas câmaras possuem as seguintes dimensões: 12 cm de diâmetro, 19 cm de altura, conferindo um volume de 1,8 litros.



Figura 5. Câmara contendo as inflorescências da KU – 20.

Para a determinação das diferenças entre a frequência de mutações entre os grupos foi feita inicialmente a adequação do modelo estatístico. Os dados originados nos testes, por apresentarem igualdade de variância e distribuição normal, foram avaliados por análise de variância, seguida por análise de comparações múltiplas (teste de Duncam), para verificar se houve diferenças significativas entre as frequências de mutações observadas nos grupos experimentais.

### 3. Resultados e discussões

Embora tenha sido usada a concentração de monóxido de carbono como parâmetro para monitorar a simulação de uma atmosfera poluída, a exaustão dos motores diesel contém outros poluentes, por isso, não somente as concentrações de CO foram medidas, mas também as de THC e SO<sub>2</sub>.

As concentrações de CO, THC e SO<sub>2</sub> nas emissões do motor diesel, diluídas com base na concentração de 100 ppm de CO, são mostradas na Fig. 6. Nota-se que a emissão de THC variou entre 50 e 120 ppm, estabelecendo-se um valor médio em torno de 60 ppm, enquanto que a emissão de SO<sub>2</sub> ficou constante em torno de 75 ppm.

Os resultados dos bioensaios indicam que a exaustão do motor diesel diluída para alcançar a concentração de 50 ppm de CO, não promoveu um aumento significativo de mutações em inflorescências do clone KU-20. Entretanto, para valores de 100 e 150 ppm os resultados apontaram um aumento nas frequências de mutações (Fig. 7).

Cabe ressaltar que as plantas das quais foram retiradas as inflorescências, tanto para o controle quanto para a exposição à exaustão do motor, encontravam-se num local onde há um fluxo considerável de veículos. Isto pode indicar certa aclimatação ao ambiente poluído, diminuindo a capacidade de resposta das plantas. Observa-se, entretanto, que a concentração de CO no local onde as plantas são cultivadas está em torno de 8 ppm, média de 24 horas de aquisição e que o trânsito neste local é majoritariamente de veículos leves, com pouca presença de motores diesel.

Nota-se que os resultados apresentados pelos Grupos três e quatro indicam que, na atmosfera contendo mais do que 100 ppm de CO o índice de mutação aparentemente atingiu um limite máximo de alterações no material genético. Estes dados mostram que pode haver uma limitação no emprego do bioensaio como feito neste estudo, com perda progressiva e assintótica de sensibilidade na resposta. A exploração mais detalhada da faixa de concentração até 100 ppm, associada ao uso de diferentes tempos de ensaio pode mostrar onde o método é mais efetivo.

As inflorescências expostas a 100 ppm e 150 ppm de CO apresentaram um aumento percentual nas mutações em torno de 70% em relação ao grupo controle. Nestas emissões encontram-se, os hidrocarbonetos policíclicos aromáticos

(HPAs) e outros compostos orgânicos, além dos óxidos de enxofre, que são conhecidos como agentes mutagênicos e carcinogênicos.

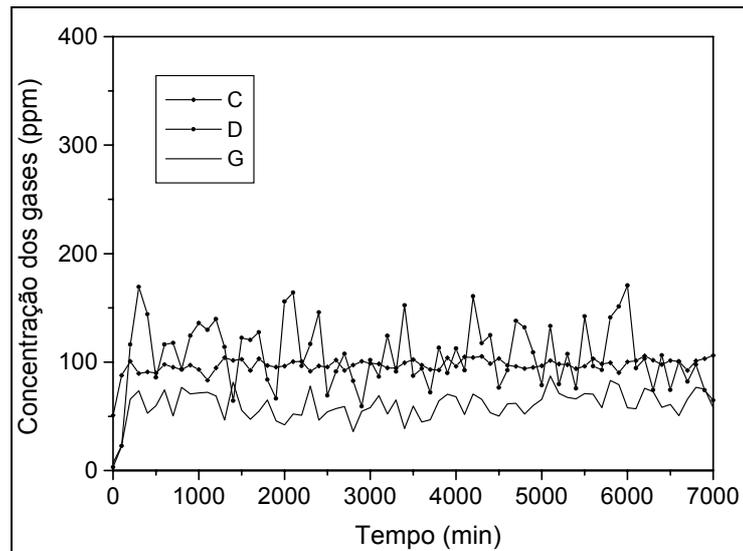


Figura 6. Concentração dos gases CO, THC e SO<sub>2</sub> obtidos na diluição da exaustão do motor a diesel para 100 ppm de monóxido de carbono.

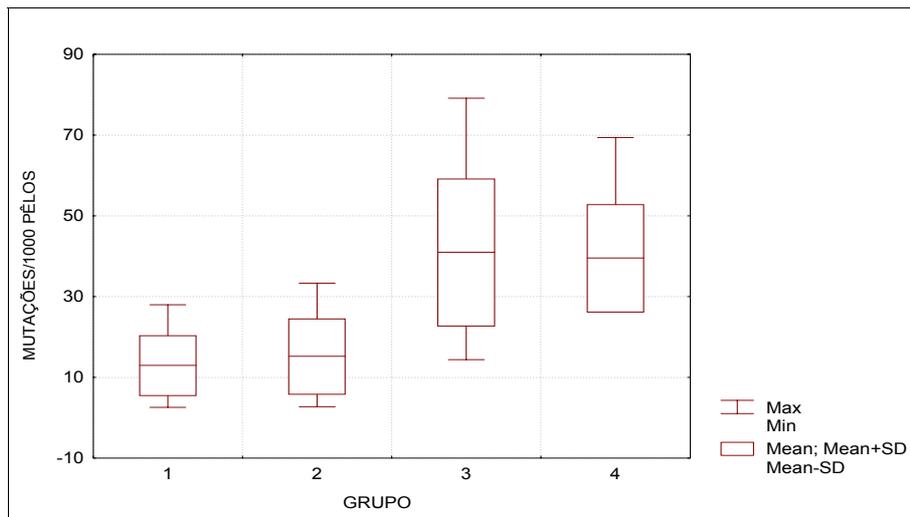


Figura 7. Frequência de mutações nos pêlos estaminais do clone KU-20 submetidos à exaustão de motor a diesel aspirado de 2.0 L de deslocamento volumétrico.

Neste trabalho verificou-se que o bioensaio Trad-SH se mostrou eficiente para o biomonitoramento de contaminação aguda da exaustão dos motores diesel. Contudo, como esse nível de contaminação não ocorre frequentemente no meio urbano, sendo a exposição crônica a situação mais próxima da realidade, é interessante estudar respostas mutagênicas nos pêlos estaminais de inflorescências do clone KU-20 e estabelecer as relações entre doses crônicas de exposição, ou seja, a baixas concentrações por um período maior de tempo. Além do mais, são necessários também estudos adicionais para se determinar quais são precisamente os componentes da exaustão do motor diesel, responsáveis pelas mutações.

No entanto, o bioensaio Trad-SH com o clone KU-20 de *Tradescantia* mostrou-se capaz de reconhecer, embora aparentemente de forma não linear, os diferentes níveis de concentração dos poluentes provenientes do motor. Esses resultados mostram que a exaustão do motor diesel é significativa no desenvolvimento de mutações. Portanto, é interessante o uso desse bioensaio para se avaliar o potencial de riscos mutagênicos aos organismos vivos expostos à exaustão dos veículos automotores, bem como para avaliar alguns aspectos da qualidade do ar sem o uso de equipamentos de alto custo. Pode ainda ser empregado para monitorar áreas de grande extensão.

#### 4. Conclusões

A exaustão do motor diesel teve um papel significativo no desenvolvimento de mutações, quando diluída para alcançar concentração de CO iguais ou acima de 100 ppm (Grupo 3 e 4). No tratamento em que as inflorescências foram submetidas à emissão mais diluída (50 ppm de CO), não houve acréscimo estatisticamente significativo das mutações em pelos estaminais. Porém, a emissão mais concentrada (150 ppm de CO) não promoveu um acréscimo adicional na frequência de mutação em relação ao que já havia sido observada para o Grupo 3. Os testes mostraram que as emissões do motor Diesel causam aumento no número de mutações de organismos vivos submetidos a eles. Testes comparativos com outros combustíveis podem revelar-se importantes em uma avaliação mais completa dos impactos ambientais provocados pelo uso dos transportes. A metodologia foi adequada ao trabalho proposto e serve como parâmetros para a realização de outros trabalhos nesta linha de pesquisa, abrindo assim um leque de oportunidades para novas pesquisas. O bioensaio Trad-SH com flores estaminais do clone KU-20 mostrou-se eficiente para avaliação do potencial de risco mutagênico dos poluentes gerados na exaustão do motor diesel.

#### 5. Agradecimentos

Ao Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos (NETeF), da Escola de Engenharia de São Carlos (EESC) da Universidade de São Paulo (USP) pela infra-estrutura necessária ao desenvolvimento deste trabalho.  
À CAPES pelo apoio financeiro.

#### 6. Referências

- ARDNT, U. & SCHWEIZER, B. (1991). The use of bioindicators for environmental monitoring in tropical and subtropical counties. In: biological monitoring: Signals from the environment (Ellenberg et al. eds.). Vieweg, Eschborn, p.199-298.
- BATALHA, J.R.F., GUIMARÃES, E.T., LOBO, D.J.A., LICHTENFELS, A.J.F.C., DEUR, T., CARVALHO, H.A., ALVES, E.S., DOMINGOS, M., RODRIGUES, G.S. & SALDIVA, P.H.N. 1999. Exploring the clastogenic effects of air pollutants in São Paulo (Brazil) using the *Tradescantia* micronuclei assay. *Mutation Research* 426:229-232.
- BOHM, G.M., MASSAD, E., SALDIVA, P.H.N., GOUVEIA, M.A., PASQUALACCI, C.A., CARDOSO, L.M.N., CALDEIRA, M.P.R. & CALHEIROS, D.F. 1983. Comparative toxicity of alcohol and gasoline fueled automobile exhaust fumes. In: developments in the science and practice of toxicology (HAYES, A. W., SCHNELL, R.C. & MIYA, T.S. eds) Elsevier Science Publishers, Amsterdam, p. 479-482.
- CETESB 2004. Relatório da qualidade do ar no estado de São Paulo. Disponível em: [www.cetesb.sp.gov.br](http://www.cetesb.sp.gov.br).
- D'AMATO, G., LICCARD, G. 1994. Pollen-related allergy in the European Mediterranean area. *Clinical and Experimental Allergy* 24:210-219.
- FLORES, F.E.V. (1987). Uso de plantas como bioindicadores de poluição no ambiente urbano-industrial: experiências em Porto Alegre, RS, Brasil. *Turbiger Geographische Studien* 96:79-86.
- GUIMARÃES, E.T., DOMINGOS, M., ALVES, E. S., CALDINI, N., LOBO, D. J. A., LICHTENFELS, A. J. F. C. & SALDIVA, P. H. N. 2000. Detection of genotoxicity of air pollutants in and around the city of São Paulo (Brazil) with the *Tradescantia* – micronucleus (Trad-MCM) assay. *Environmental and Experimental Botany* 44:1– 8.
- ICHIKAWA, S. (1992). *Tradescantia* stamen-hair system as an excellent botanical tester of mutagenicity its responses to ionizing radiation and chemical mutagens, and some synergistic effects found. *Mutation research*. V. 270, p. 3-22.
- OLIVEIRA, D. S. (2005). Avaliação do potencial mutagênico dos poluentes presentes na exaustão de motor a diesel por meio do bioensaio Trad-SH. Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos, v.1, 53p.

**EVALUATION OF THE MUTAGENIC POTENTIAL OF AIR POLLUTANTS FROM DIESEL ENGINES EMISSION USING THE *TRADESCANTIA* STAMEN HAIR ASSAY (TSH)**

Deuzuita S. Oliveira

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.

deuzuita@sc.usp.br

Paula M. Crnkovic

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.

paulam@sc.usp.br

Josmar D. Pagliuso

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.

josmar@sc.usp.br

**Abstract**

This work is aimed at evaluating the mutagenic potential of the emission from a diesel engine using the *Tradescantia* stamen hair assay. Experimentally, the inflorescence of the KU-20 clones was kept for 2h under a simulated urban polluted atmosphere, obtained by mixing the emission from a diesel engine and atmospheric air. The CO concentration in the simulated atmosphere was monitored using a gas analyzer. The mutagenic effects of the atmosphere were analyzed by comparing a group of non-exposed control inflorescence (group one) to inflorescences kept under polluted atmospheres containing 50, 100 and 150 ppm of CO (groups two, three and four). The frequency of mutations observed in the inflorescences from group two was slightly higher than that observed in the group one. In the groups three and four, however, the frequency of mutations was significantly higher than that exhibited by the control group. The latter suggests that the emission from a diesel engine plays an important role in the development of plants mutation, especially for atmospheres containing more than 100 ppm of CO.

Keywords: Air Pollution, Diesel Engine, Organic Pollutants and Mutagenicity.

## A METHODOLOGY FOR GASEOUS EMISSIONS PREDICTION OF IRON ORE SINTERING BED USING PROCESS DATA

**Rogério Ramos**

Universidade Federal do Espírito Santo - UFES - Departamento de Engenharia Mecânica  
Av. Fernando Ferrari, 514, Goiabeiras, Vitória, ES CEP 2075-910  
ramosrogerio@hotmail.com

**Roger Hudson Braga Silva**

Petróleo Brasileiro S/A. - Petrobras  
Av. Elias Agostinho, 665, Imbetiba, Macaé, RJ CEP 27913-350  
rhbs@petrobras.com.br

**Abstract.** *In the present work it is proposed and tested a model for gaseous emissions prediction in a Dwight-Lloyd iron ore sintering bed, utilized to obtain sinter for steelmaking industry. The emissions are modeled using a simulated thermal profile passing through a bed mix constituted by coke, anthracite, iron ore and fluxing, provoking the reactions for the combustion process. Such process is simulated by a chemical equilibrium model generating 10 gaseous species. The emissions so obtained are adjusted for the effectively measured emissions data from Companhia Siderúrgica de Tubarão - CST. This adjustment process is proceeded using an approaching parameter associated to the excess air of combustion. Once the adjustment parameter is calculated for the emission in a given production week, this parameter is utilized for the prediction of emissions for subsequent weeks, considering the variation in the mix composition, which is known in advance. In this work the predictions quality is evaluated, when compared to the measured emissions to four weeks in advance.*

**Keywords:** *Iron Ore Sintering, Dwight-Lloyd, gaseous emissions*

### 1. Introduction

The process involving the well known iron ore sintering reach great importance in the Brazilian industrial scenario, being a heat and mass transfer process very well studied, although the complexity involving the solutions are considerable due to the rug quantity of variables.

The attainment of steel consists of 5 main stages transform operations involving metal works and mechanical resignation according to with Dias (1998). Being the sintering a process that consists basically of mixture and homogenization of a group of ores, fluxing (limestone fine) and materials from the own production process (recycled) with inadequate pellet dimensions for direct use in the blast furnace. This mixture (mix) is burned in a moving bed type furnace called sintering machine.

The objective of this work is to present a methodology for prediction gaseous emissions generated in sintering process, considering thermo-mechanical effects and a large number of actual parameters involved in the process, including temperature of gas and solids, concentration of various gaseous species, bed characteristics like porosity, density, thermal conductivity, beyond operational parameters like dimensions of sintering machine, bed velocity, gas exhaust rate, among others.

The thermal profile was obtained for a very approximated case, using a simple mathematical approach to a linear model of moving heat source problem, with the objective to obtain a typical "thermal wave" like those encountered in such sintering process, but avoiding the non-linear calculation of energy variation due to combustion.

The model for gas generation is simulated by chemical equilibrium approach for 10 (ten) gas species, using the thermal profile described before and process data from the Dwight-Lloyd sintering unit of *Companhia Siderúrgica de Tubarão - CST*.

The temperature and the chemical equilibrium models are validated by comparison with data from open literature.

The proposed methodology is based on a parameter adjustment considering the emissions monitored by the company,  $CO$  and  $NO_x$ , in a given date. Such adjustment is used in the proposed prediction model for a later date. Such predictions are checked against the actual emissions in that date.

### 2. Bibliographical revision

A literature revision reveals the work of Muchi and Higuchi (1972) as an earlier approach that modeled the iron ore sintering problem just containing combustion and drying process. At same days, Hamada et al. (1972) considered this model, together with calcinations and fusion process. Dash and Rose (1976) presented a model to sintering simulation including drying and condensation inside the bed and considering the limestone reduction in an endothermic reaction with minor relevance in the total energy estimated. Still in the 70's, Young (1977) presented a similar model using the same heat and mass transfer process, but using better numerical techniques. In that case, it was used the predictor-

corrector Adams-Mouton method with initial values obtained from the Euler method. It was estimated the effects of main parameters variation in sintering process. It was introduced the calculation of pressure drop in the bed as well.

Yoshinaga and Kubo (1978) included the void fraction and particle diameter calculation for three distinct zones and Toda and Kato (1984) considered a interface progression rate of the fusing grain added to size distribution of the coke, but the model considered limited chemical reactions and constant properties with temperature variation. Cumming and Thurlby (1990) in a very well detailed model describing the physical-chemical process involved in the process together with the variations of bed characteristics like particle diameter, void fractions (porosity), channeling factor, bed shrinkage. The work reaches good agreement between flux and bed pressure drop, using Ergun equation.

Nath *et al.* (1997) developed a two-dimensional transient model including 11 chemical reactions in a kinetic reactions model applied to the sintering unit of *Companhia Siderúrgica Nacional - CSN*. The model may be used to optimize thermal efficiency and productivity of sintering plants.

### 3. Chemical equilibrium combustion model

Chemical equilibrium can be resumed as the supposition that a diatomic gas is burned inside a closed, rigid and isolated container. Taking the following concepts:

- Due to the temperature elevation, the consequence of the growing in the average velocity is the growing of the shocks between atoms;
- The consequence is the elevation of the energy level;
- Dissociation occurs, when this energy exceeds the attraction force between the atoms of a molecule, Eq. (1).



- Continuous shocks in appropriated conditions, lead back the dissociated atoms to restore the original molecule, Eq. (2).



When hydrogen is burned, and the level of activity of all atomic movements increases, more molecules will be in dissociation condition than associating atoms. With increasing temperature, the amount of molecules of hydrogen will decrease, while the amount of atoms of hydrogen will increase. If temperature decreases, the effect is exactly the opposite. Due to the high collision rate, a steady state is quickly reached.

#### 3. 1. Action Mass Law

The Action Mass Law is a requirement used by Campbell (1979) to define if a system is in chemical equilibrium state, i.e., the situation when the rate of associations and dissociations are equivalents and being a constant product of the system (in the present case, the combustion). It is defined in Eq. (3) to a system composed by 5 gas species, being one specie inert.

$$K_p = \frac{P_3^{v_3} P_4^{v_4}}{P_1^{v_1} P_2^{v_2}} \quad (3)$$

Campbell (1979) obtained a functional relation between  $K_p$  and  $T$ , using the  $K_p$  value computed from the Eq. (3) and the coefficients for various reversible reactions were estimated to apply in expression for  $K_p$  as pointed out in Eq. (4) and Table (1) for 10 gas species reacting.

$$K_p = \exp \left[ \frac{a}{T} + \left( b + \frac{c}{T} \right) * \ln(T) + d \right] \quad (4)$$

Table 1 - Coefficients to compute the reaction constant  $K_p$  in Eq. (4)

Rection	a	b	c	d
$H_2 + \frac{1}{2}O_2 \leftrightarrow H_2O$	42450.0	-1.0740	-2147.0	3.2515
$CO + \frac{1}{2}O_2 \leftrightarrow CO_2$	33805.0	0.7422	165.8	-16.5739
$2H \leftrightarrow H_2$	33587.0	0.5604	3327.0	-20.8683
$2O \leftrightarrow O_2$	57126.0	-0.0100	599.0	-16.3201
$2H + O \leftrightarrow H_2O$	104702.0	-0.5181	1480.0	-25.8073
$O + H \leftrightarrow OH$	44216.0	-0.1319	1298.0	-13.1303
$CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2$	-8645.0	1.8162	2312.0	-19.8254
$O_2 + N_2 \leftrightarrow 2NO$	-14096.0	-0.6893	-1375.3	9.668
$2N \leftrightarrow N_2$	108142.0	-1.744	-3558.2	0.595
Valid for $1600 < T < 6000$ K. Pressure in atmospheres.				

This formulation allows the computation of 10 species of combustion products from chemical equilibrium hypothesis. It was deduced by Campbell (1979) and now it is used to estimate the production of gases originated by the iron ore sintering process, defining a problem as can be seen in Eq. (5).

$$N(1)CO_2 + N(2)CO + N(3)O_2 + N(4)O + N(5)NO + N(6)N_2 + N(7)H + N(8)H_2 + N(9)OH + N(10)H_2O \quad (5)$$

Considering a fuel composed by carbon, hydrogen, oxygen and nitrogen (known as C/H/O/N fuel) it is needed 10 equations to determine the 10 gaseous species for the combustion products. From the Mass Conservation Law it was getting 4 equations for the fuel atoms species e the others come from Mass Action Law as shown in Tab. (2), making  $p = 1$  to 6.

Table 2 - Equations to compute 10 gaseous species for combustion products

$$\left. \begin{aligned} \text{(a)AC} &= N(1) + N(2) \\ \text{(b)W1} &= \frac{N(1)}{(N(2) * \sqrt{N(3)})} \\ \text{(c)W2} &= \frac{N(3)}{N(4)^2} \\ \text{(d)AN} &= N(5) + 2N(6) \\ \text{(e)K3} &= \frac{N(5)^2}{(N(3) * N(6))} \\ \text{(f)AO} &= 2[N(1) + N(3)] + N(2) + N(4) + N(5) + N(9) + N(10) \\ \text{(g)AH} &= 2[N(8) + N(10)] + N(7) + N(9) \\ \text{(h)W4} &= \frac{N(8)}{N(7)^2} \\ \text{(i)W5} &= \frac{N(9)}{(N(4) * N(7))} \\ \text{(j)W6} &= \frac{N(10)}{(N(8) * \sqrt{N(3)})} \end{aligned} \right\}$$

where,

$$\left. \begin{aligned} W1 &= K1 * (P/NT)^{1/2} \\ W2 &= K2 * P/NT \\ W4 &= K4 * P/NT \\ W5 &= K5 * P/NT \\ W6 &= K6 * (P/NT)^{1/2} \end{aligned} \right\}$$

and  $AC$ ,  $AH$ ,  $AO$  and  $AN$  represents the stoichiometric abundances of carbon, hydrogen, oxygen and nitrogen, respectively, expressed in moles.

### 3. 2. Checking the emissions model

In order to check the code written for the present study, it was simulated the case presented by Campbell (1979). The comparison can be seen in Fig. (1a,b).

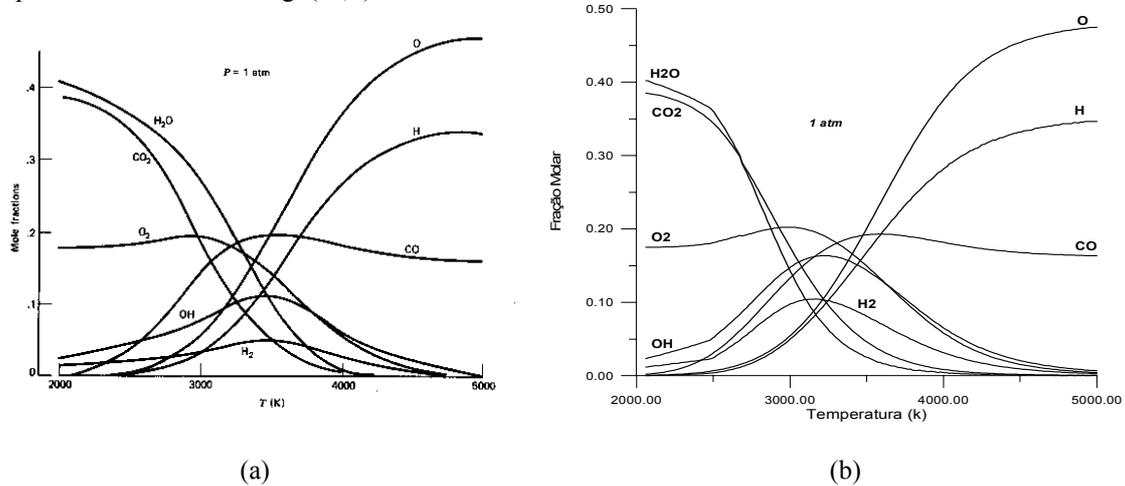


Figure 1 - (a) Combustion products concentration obtained by chemical equilibrium approach, by Campbell (1979); (b) Combustion products concentration calculated by the present code. (AC/AH/AO/AN = 10/22/40/0)

As observed in Figs. (1a,b), the concentrations of combustion products that are plotted in both figures reach great concordance to any gas specie plotted at any temperature in the graph.

### 4. The Thermal Profile Model

The dimensionless domain definitions, the coordinate system and boundary conditions for the sintering bed model are demonstrated in Fig.(2).

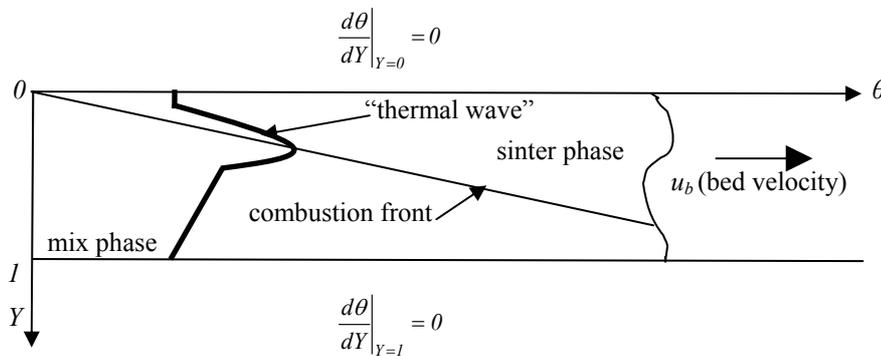


Figure 2 – Domain scheme and boundary conditions.

In order to obtain the thermal wave, it is used a one-dimensional transient model in porous medium and moving heat source, which main hypothesis is in accordance to Macedo (1998):

- The humidity bed is considered constant and uniform;
- The bed is considered an isotropic porous medium and its porosity ( $\phi$ ) is constant and uniform;
- The porous matrix is constituted by two distinct phases: solid phase and fluid phase (gaseous);
- The local average volume hypothesis is used to the development of conservation equations;
- The contact between solid phase and fluid phase is perfect, in such way that local thermal equilibrium is valid;
- It is considered variations just on vertical bed direction and temporal (one-dimension transient problem);
- Radiation heat transfer inside the porous matrix is neglected, as well as viscous dissipation effects and work realized by changes in the pressure field ;

- h) Thermo-physical properties which varies with temperature are considered by its average values representative of sintering process;
- i) Transport of humidity and vapor by diffusion are neglected;
- j) It is not considered a pre-heating phase as well as the drying phase before combustion.
- k) The simulated thermal profile consider a punctual, continuous and moving heat source, in such way to reproduce a decoupled temperature field, in relation to the gaseous emissions model, but compatible with typical sintering process.

#### 4.1. Mathematical model for the thermal profile

The mathematical model for thermal wave considering the premisses described above is composed by the following dimensionless governing Eq. (6).

$$\frac{\partial \theta_k(Y, \tau)}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \theta_k(Y, \tau)}{\partial Y^2} - V_{gk} \frac{\partial \theta_k(Y, \tau)}{\partial Y} + C_{mk} q_{móvel}''' \quad (6)$$

where  $m$  indicates mix phase,  $g$ , gaseous phase,  $k=1$  consider properties before combustion and  $k=2$ , properties after combustion. The dimensionless groups are defined in Eqs. (7a-c).

$$\tau = \frac{\alpha_s t}{L^2} \text{ (Fourier number)} \quad Y = \frac{y}{L} \quad q_{móvel}''' = q_m''' \delta(y - u_b t), \text{ where } \delta \text{ is the Dirac delta} \quad (7a,b,c)$$

The definition of variables depends on the temporal position analyzed: before or after combustion front, as defined by Eqs. (8-11).

BEFORE COMBUSTION ( $k=1$ )

$$\theta_1(Y, \tau) = \frac{T_1(y, t) - T_\infty}{T_\infty}$$

$$V_{g1}(Y) = \frac{\varphi_{mix} L (\rho c_p)_g}{k_{mix}} \bar{V}_1$$

$$C_{m1} = \frac{L^2}{(\rho c_p)_{m1} T_\infty \alpha_{m1}}$$

$$\alpha_{m1} = \frac{k_{m1}}{(\rho c_p)_{m1}} \text{ (Thermal difusivity of phase 1)}$$

AFTER COMBUSTION ( $k=2$ )

$$\theta_2(Y, \tau) = \frac{T_2(y, t) - T_\infty}{T_\infty} \quad (8a,b)$$

$$V_{g2}(Y) = \frac{\varphi_{sinter} L (\rho c_p)_g}{k_{sinter}} \bar{V}_2 \quad (9a,b)$$

$$C_{m2} = \frac{L^2}{(\rho c_p)_{m2} T_\infty \alpha_{m2}} \quad (10a,b)$$

$$\alpha_{m2} = \frac{k_{m2}}{(\rho c_p)_{m2}} \text{ (Thermal difusivity of phase 2)} \quad (11a,b)$$

The model described by Eqs. (6-11) was solved via General Integral Transform Technique (GITT), considering the methodology established in Cotta (1993), Cotta and Mikhailov (1997) and a long list of thermal physical properties related by Young (1977) and Nath *et al.* (1997), Tab. (3), which fed a FORTRAN code written for this case. Although it is not a more realistic representation of the thermal profile, the simulated curves in Fig. (3) were obtained for this case.

Table 3 - Main properties and parameters adopted for Eqs. (4-9), averaged from Young (1977), Nath *et al.* (1997) and CST data

Bed porosity	$\varphi = 0,4$	Aparent density of solids	$\rho_s = 4.572 \text{ kg/m}^3$	
Average temperature of solids	$T_s = 1.523,15 \text{ K}$	Aparent density of bed	$\rho_l = 2.743,2 \text{ kg/m}^3$	
Average temperature of gas	$T_g = 800 \text{ K}$	Specific flux mass	$\dot{m} = 0,2166 \text{ [kg/m}^2\text{/s]}$	
Bed dimensions	Height	$L = 0,4 \text{ m}$	Average pellet diameter	$dp = 3\text{mm}$
	Width	$6,00\text{m}$	Specific heat of solids	$c_s = 1,28 \text{ kJ/kg.K}$
	Lenght	$80,00\text{m}$	Specific heat of gas	$c_g = 1,10 \text{ kJ/kg.K}$
Specific mass of coke	$\rho_c = 1.200 \text{ kg/m}^3$	Thermal conductivity of solids	$k_s = 6,50 \text{ W/m.K}$	
Specific mass of limestone	$\rho_{cal} = 1.600 \text{ kg/m}^3$	Thermal conductivity of gas	$k_g = 0,073 \text{ W/m.K}$	
Specific mass of iron ore	$\rho_{min} = 5.200 \text{ kg/m}^3$	Thermal conductivity of bed	$k_l = 3,93 \text{ W/m.K}$	
Specific velocity of gas	$V = 1,10 \text{ m}^3\text{/s/m}^2$	Gas density	$\rho_g = 0,43 \text{ kg/m}^3$	
Specific area of pellets	$a = 1.200$	Gas viscosity	$\mu = 1,72 \times 10^{-6} \text{ kg/m.s}$	
Pressure drop in bed	$\Delta P = 12 \text{ kPa}$	Coke mass fraction	$M_c = 0,04$	
Processing time	$t = 34,81 \text{ min}$	Limestone mass fraction	$M_{cal} = 0,13$	
Bed velocity	$u_b = 0,04 \text{ m/s}$			

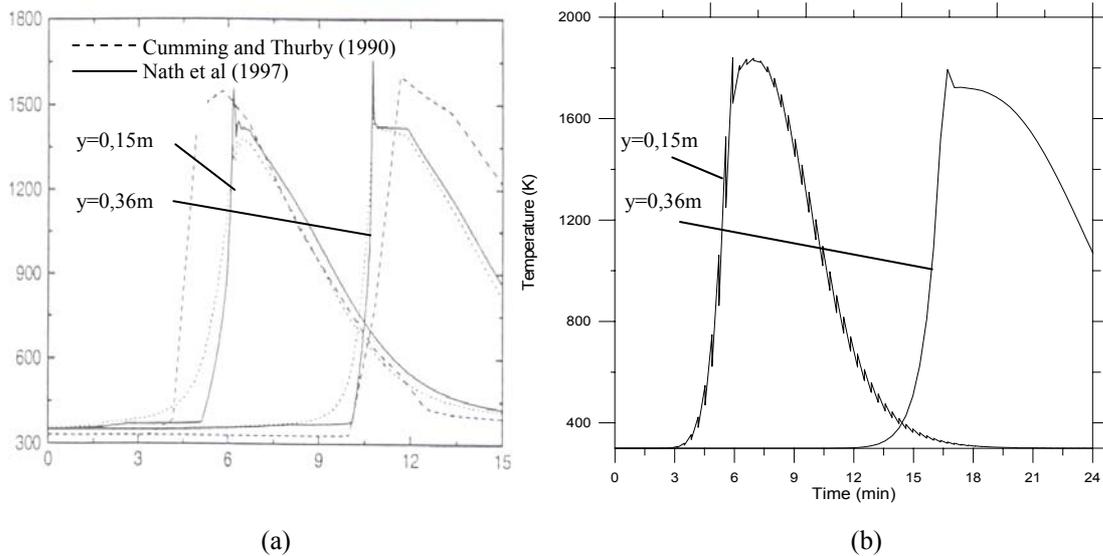


Figure 3 - (a) “Thermal wave” obtained by Nath *et al.* (1997); (b) Thermal wave simulated by present model (AC/AH/AO/AN = 2/2/23/74)

An analysis of Fig. (3) indicates that, although they are very approximated when compared one to each other, there are quantitative differences between the thermal profile from the reference (Fig. 3a) and that obtained by the present model (Fig. 3b). On the other hand, it is evident the qualitative similarity between those curves, including the temperature peak, typical of combustion process. Such behavior is analog for two bed depth analyzed:  $y=0.15$  and  $y=0.36m$ . Although it is not represent the more realistic behavior of the phenomenon, such results were considered as appropriated for the purposes of the present study.

### 5. Applying the thermal wave to the emissions model

In order to check the proceeding, which consists to apply the thermal wave model to the emissions model, it was simulated the problem presented in Nath *et al.* (1997) and Cumming e Thurlby (1990) for the prediction of sintering bed emissions. The comparison for  $CO_2$ ,  $H_2O$ ,  $O_2$  and  $CO$  emissions are demonstrated in Figs. (4).

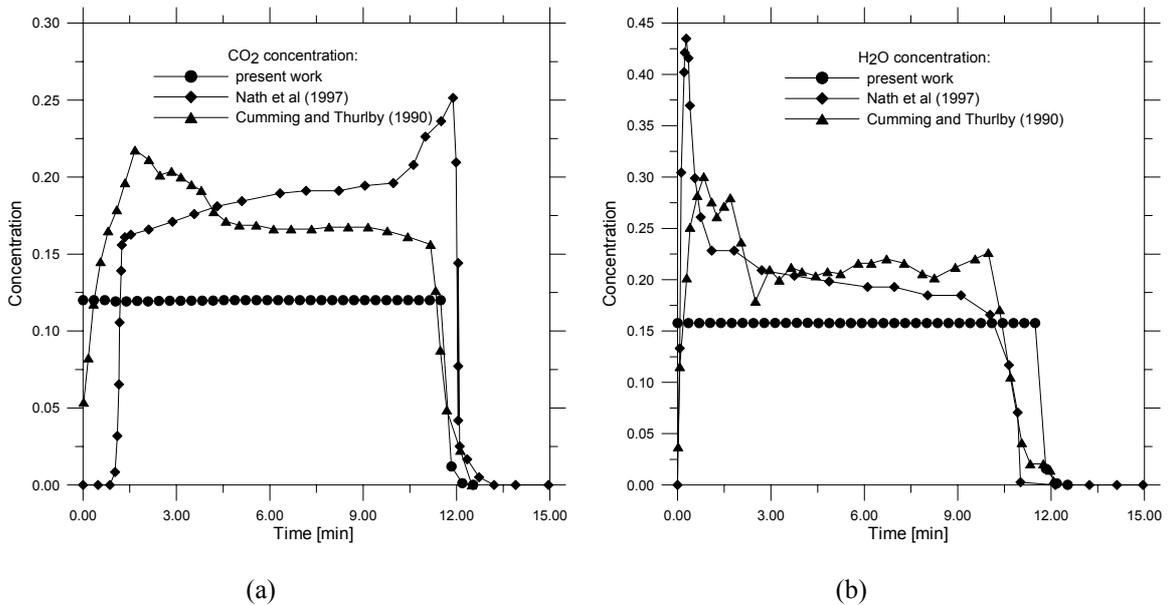


Figure 4 - (a)  $CO_2$  concentration comparison: Nath *et al.* (1997), Cumming and Thurlby (1990) and present work ; (b)  $H_2O$  concentration comparison: Nath *et al.* (1997), Cumming and Thurlby (1990) and present work

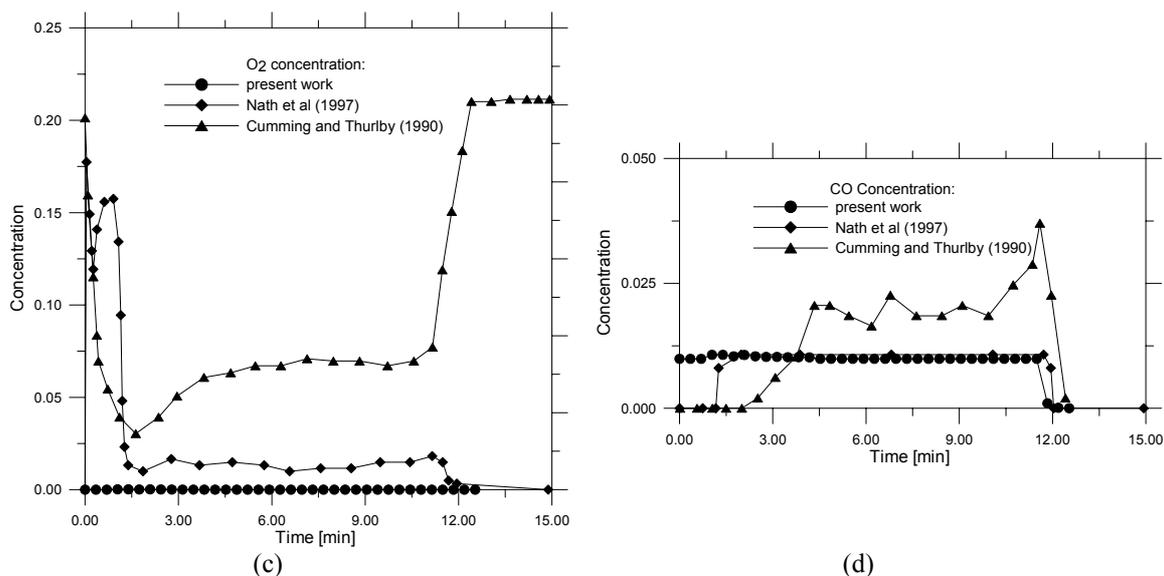


Figure 4 - (c)  $O_2$  concentration comparison: Nath et al. (1997), Cumming and Thurlby (1990) and present work ; (d)  $CO$  concentration comparison: Nath et al. (1997), Cumming and Thurlby (1990) and present work

An analysis of Fig. (4) indicate that, from a qualitative point of view, there are good agreement between the results of references and the results from the present work. Discrepancies in quantities are observed, although the order of magnitude is preserved. Such discrepancies are observed between the own authors as well and it can be explained when is considered that the references were produced using kinetic reactions approach, instead of chemical equilibrium model. Moreover, the problem solved by references predicts the emission of 5 species ( $CO_2$ ,  $CO$ ,  $O_2$ ,  $H_2$ ,  $H_2O$ ) against 10 species predictable by the present model ( $CO_2$ ,  $CO$ ,  $O_2$ ,  $O$ ,  $NO$ ,  $N_2$ ,  $H$ ,  $H_2$ ,  $OH$ ,  $H_2O$ ) so, consuming much more  $O_2$  which may explain the absence of oxygen in Fig. (4c) in present simulation.

From previous observations, it was considered that the model composed by the thermal wave coupled to the chemical equilibrium approach, proposed here reaches reasonable results, appropriated to the purposes of the present work.

## 6. The methodology for gaseous emissions prediction in sintering bed

CST company use to measure two gas species for its sintering machine chimney:  $CO$  and  $NO$ . The methodology to predict emissions produced by sintering process, proposed in this work, is based on the adjustment of air quantity (air excess -  $\Delta_{air}$ ) used in the combustion process. This adjustment is obtained from the comparison between the concentrations of  $NO$  and  $CO$  simulated by the model and the actual emissions measured in CST. So, a given value of air excess that leads to an acceptable concordance between the simulated and actual emissions in a given period of time, is used for simulate the prediction emissions in the future. This procedure is the essence of the present methodology.

In order to proceed with such methodology, it is defined the concentrations of C/H/O/N in fuel composition considering that all oxygen necessary for the combustion process come from atmosphere, originating the relations of Eq. (12a-d), proportional to the concentrations of atmospheric air.

$$AC = AC + (\Delta_{air} * 0,00734) \tag{12a}$$

$$AH = AH + (\Delta_{air} * 0,13946) \tag{12b}$$

$$AO = AO + (\Delta_{air} * 0,1897485) \tag{12b}$$

$$AN = AN + (\Delta_{air} * 0,6634517) \tag{12b}$$

Now, the code must be fed with process parameters from company machine and all of such parameters have to be translated to a molar basis system, as well as all input parameters (fuel consumption, fuel composition, mix composition, gas exhaustion flux, etc). The mix piles and the fuel composition are programmed for some weeks in advance by sintering operation staff. These parameters as well as all others related to the sintering machine was provided by CST and are not be listed here for a matter of synthesis, but it can be found in Silva, R.H.B. (2005).

All quantities were converted to daily averaged values and weighted-up to the quantity equivalent to burn one bed volume of mixture, following the steps described by Silva, R.H.B. (2005).

The sintering bed characteristics, as defined in Tab. (3) and the production weeks of CST, selected to be analyzed are listed in Tab. (4), were used for all simulations reported.

Table 4 – Selected production weeks (year: 1999)

Week n.	Period of time
1	18 to 24 / June
2	23 to 29 / September
3	01 to 08 / November
4	09 to 15 / November
5	02 to 08 / October
6	09 to 15 / October

Among some others tentative to adjust the value of  $\Delta_{air}$  in order to simulate the emissions of  $CO$  and  $NO$ , it will be described only the successfully one that consists to find the value of  $\Delta_{air}$  which best fit the simulated to the actual  $CO$  emissions, as well as another value of  $\Delta_{air}$  which best fit the simulated to the actual  $NO$  emissions for a given date. The two values were averaged to get a  $\Delta_{air}$  medium value. The result of such adjustment is showed in Figs. (5) to four weeks as an exemplification.

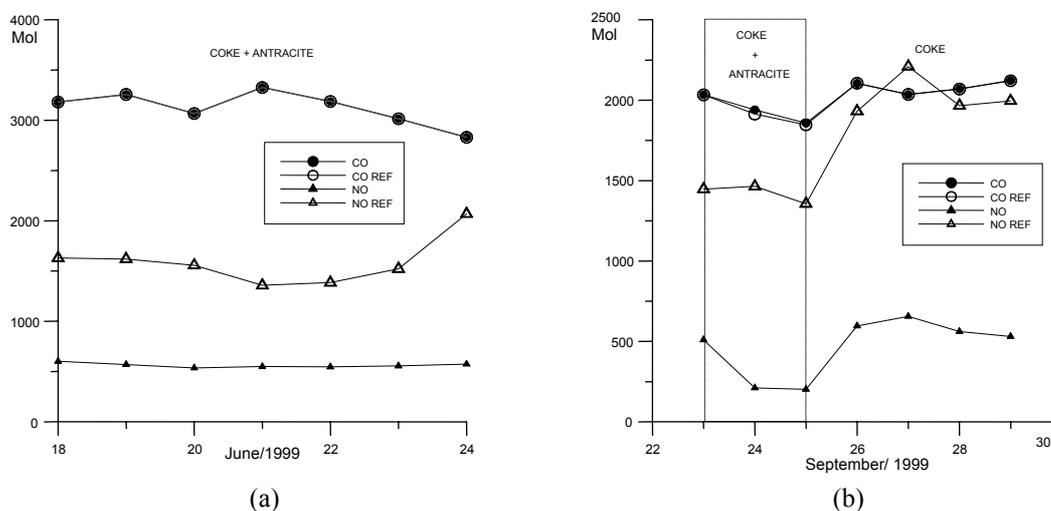


Figure 5 – a) Simulated and measured (ref.) curves of  $CO$  and  $NO$  emissions for week 1; b) Simulated and measured (ref.) curves of  $CO$  and  $NO$  emissions for week 2.

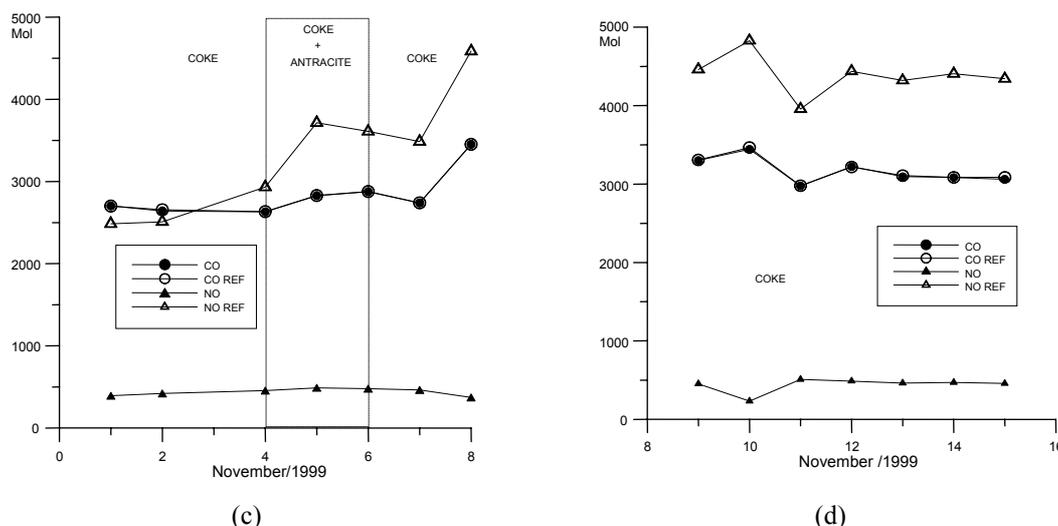


Figure 5 – c) Simulated and measured (ref.) curves of  $CO$  and  $NO$  emissions for week 3; d) Simulated and measured (ref.) curves of  $CO$  and  $NO$  emissions for week 4.

### 7. Results and discussions

The averaged value of  $\Delta_{air}$  is now used to run the code but now, it is fed with fuel composition programmed in future and, so, predicting the emissions there. In Figs. (6) this procedure was made to check the prediction emission quality in time.

Figure (6a) shows the predictions with one week in advance. As evidenced, the *NO* approximation is better than *CO*, although it has some days when the predictions almost coincide with the measured concentrations, as show the simulations for 11-15 days. Figure (6b) show the average difference between simulated and measured emissions of *CO* is 3,35% and 0,48% for *NO*.

Such behavior is observed in Fig. (6c,d) as well, but in this case for a prediction of two weeks in advance. In Fig. (6c) the concordance of *NO* is better than *CO* prediction again and the difference between them (Fig. (6c)) tends to increase for *CO* prediction but show an unexpected decreasing for *NO* prediction.

The deterioration of the results becomes more evident for a prediction with four weeks in advance, as show in Fig. (6e,f) where the difference between simulated and actual emissions reach more than 10% for *CO* prediction, although the *NO* prediction still retain good agreement (difference about less than 0,5%).

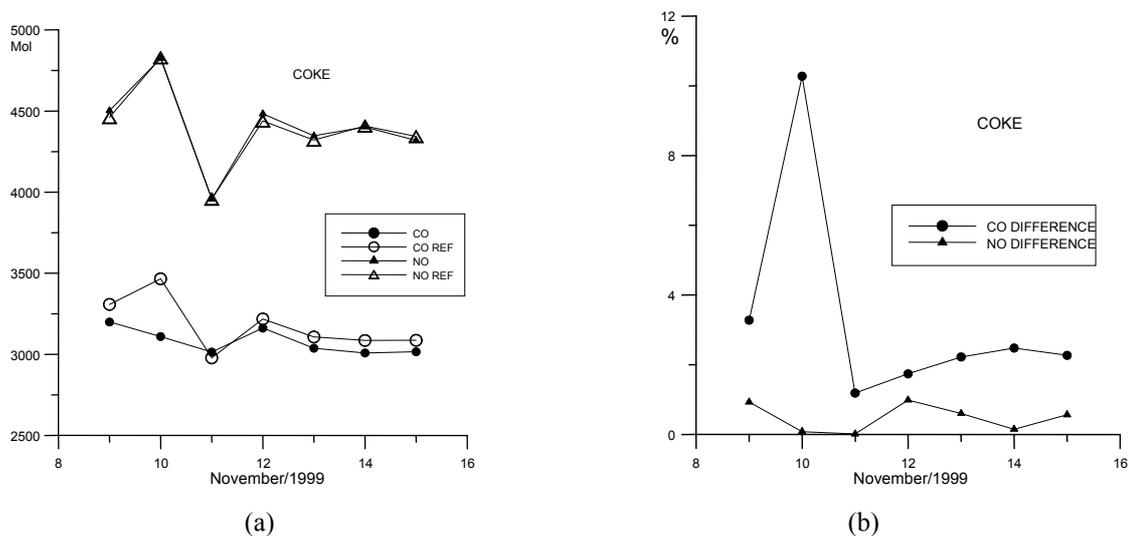


Figure 6 - Predictions of *CO* and *NO* emissions for one week in advance (week 4 adjusted with  $\Delta_{air}$  from week 3): a) Comparison between predictions and actual emissions (ref.); b) Differences between prediction and actual emissions (average difference of 3,35% for *CO* and 0,48% for *NO*)

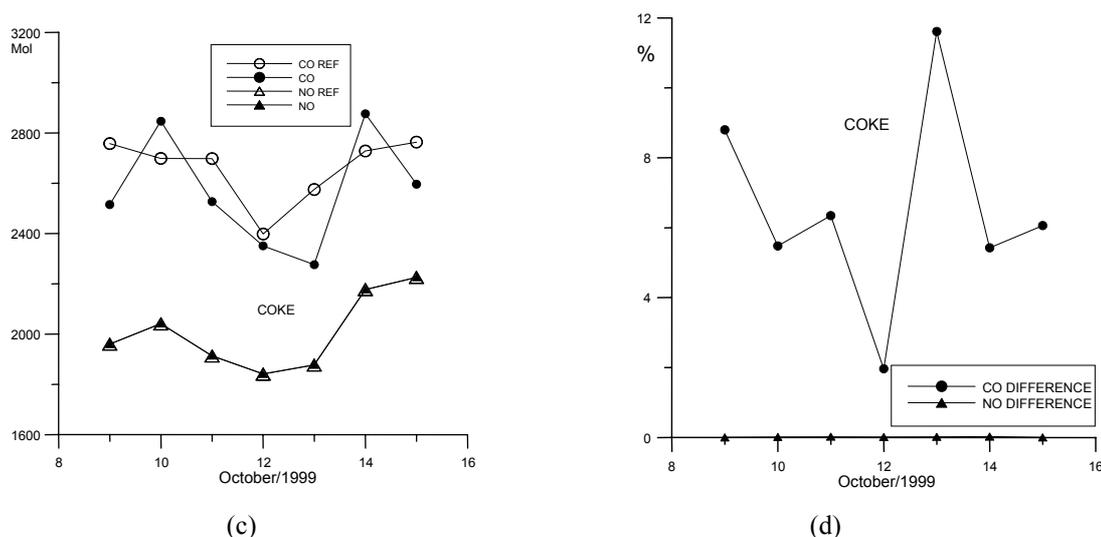


Figure 6 - Predictions of *CO* and *NO* emissions for two weeks in advance (week 6 adjusted with  $\Delta_{air}$  from week 2): c) Comparison between predictions and actual emissions (ref.); d) Differences between prediction and actual emissions (average difference of 6,52% for *CO* and 0,014% for *NO*)

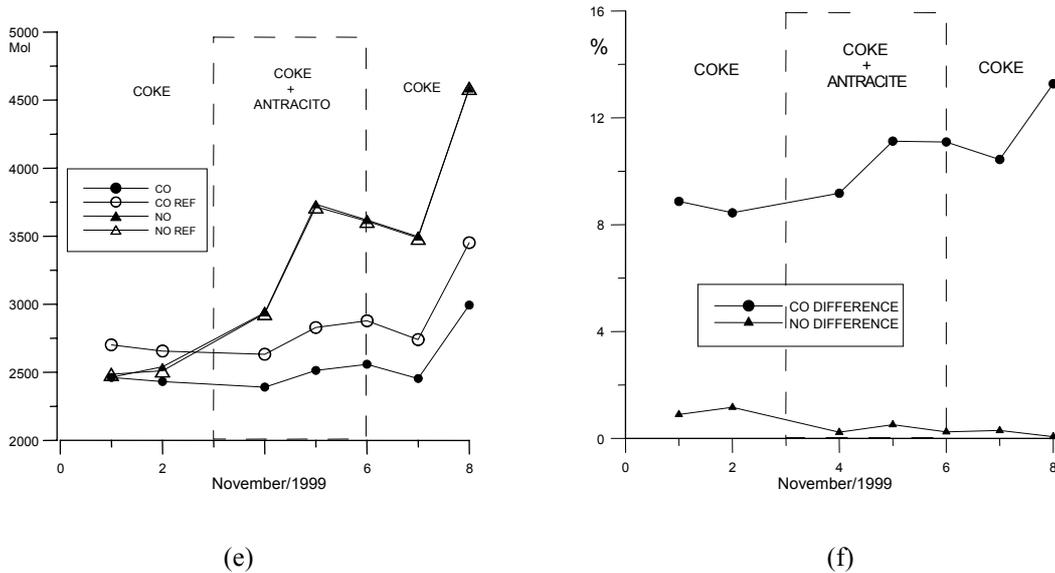


Figure 6 - Predictions of  $CO$  and  $NO$  emissions for four weeks in advance (week 3 adjusted with  $\Delta$ air from week 2):  
 e) Comparison between predictions and actual emissions (ref.); f) Differences between prediction and actual emissions  
 (average difference of 10,35% for  $CO$  and 0,49% for  $NO$ )

Now, it is convenient to show the emissions of other gas species predictable by the chemical equilibrium computational code as  $CO_2$ ,  $O_2$ ,  $N_2$ ,  $H_2O$ ,  $CO$ ,  $NO_2$ ,  $H_2$ ,  $OH$ ,  $O$  and  $H$  as shown in Fig. (7a-c), which are presented in distinct plots due to scale matter. In this case, there is no comparison with actual data, since the company does not monitor such gases, but the validation of such emissions was justified in section (5).

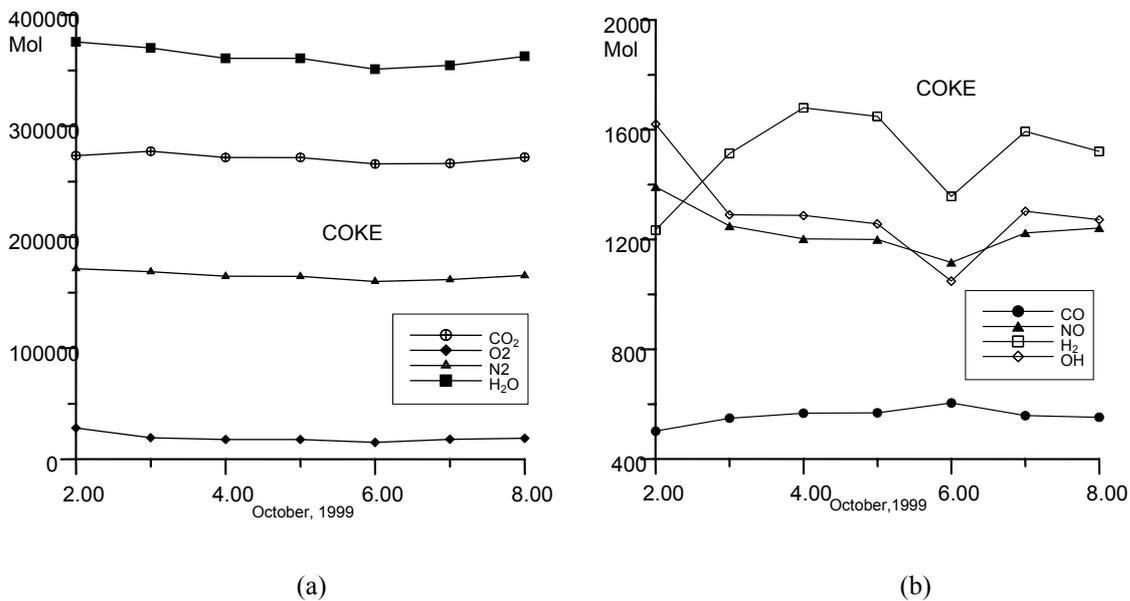
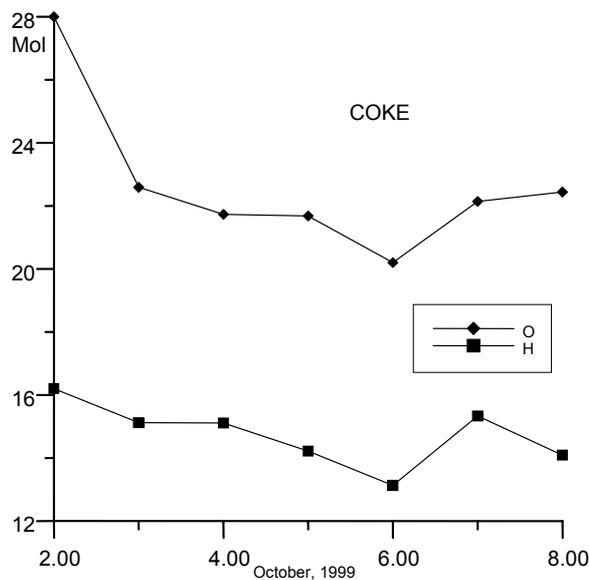


Figure 7 - Predictions for week 5: a) Predictions of  $CO_2$ ,  $O_2$ ,  $N_2$  and  $H_2O$ ; b) Predictions of  $CO$ ,  $NO_2$ ,  $H_2$  and  $OH$



(c)

Figure 7 - Predictions for week 5: c) Predictions of O and H

As can be inferred from the results, the present proposition seems to predict satisfactorily the emissions of the model, since the prediction do not exceed two or four weeks in advance.

In reality, the parameter that corresponds to the air excess ( $\Delta_{\text{air}}$ ) loses its strict sense and includes all errors of the model due to the adopted approximations for the gaseous formation and thermal wave. So, this parameter include operational variations not predictable by modeling, like: a) uniformity lack in mix and fuel composition; b) humidity variation of mix piles, due to seasonality of rain and dry seasons; c) differences between estimated and actual thermo-physical properties and the air excess properly said.

Once properties estimative and other approximations becomes more realistic and fed the computational code, this parameter tends to fit to the actual air excess used in the combustion process.

It is possible, in the future, to include the influence of new gas monitoring emissions since the appropriated sensors are installed in the chimney. To proceed this, the methodology has to consider this new measurements in the procedure to averaging  $\Delta_{\text{air}}$  value, as described in section (6).

## 8. Acknowledgements

The authors would like to express their acknowledgements to the Mechanical Engineering Post-Graduation Program - PPGEM/UFES, for the use of its facilities and *Companhia Siderúrgica de Tubarão - CST*, for partial financing this work as well as the cession of its sintering process data.

## 9. References

- Campbell, A. S., 1979. "Thermodynamic Analysis Of Combustion Engines". John Wiley & Sons, New York.
- Cotta, R.M., 1993. "Integral Transforms in Computational Heat and Fluid Flow", CRC Press, Boca Raton, Fl.
- Cotta, R.M. and Mikhailov, M.D., 1997. "Heat Conduction – Lumped Analysis, Integral Transforms, Symbolic Computation", Wiley Interscience, New York.
- Cumming, M. J.; Thurlby, J. A., 1978, "Developments in modeling and simulation of iron ore sintering". *Ironmaking and Steelmaking* 1, pp. 25-31.
- Dash, I. R.; Rose, E., 1978. "Simulation of a sinter strand process". *Ironmaking and Steelmaking* 5, pp. 25-31.
- Dias, L.A.M., 1998. *Estruturas de aço: conceitos, técnicas e linguagem*, 2. ed. São Paulo, Ziguarte Editora, 159p, São Paulo.
- Macêdo, E. N., 1998, "Simulação computacional e estimativa de propriedades termo-físicas na combustão de troncos cilíndricos de madeira". Rio de Janeiro, 226 p. Tese de Doutorado – Faculdade de Engenharia Mecânica, Universidade Federal do Rio de Janeiro.

- Muchi, I.; Higuchi, 1972, “Theoretical analysis of sintering operation”, Journal of Transactions Iron Steel Institute Japan 12, pp. 54-63.
- Nath, N. K.; Da Silva, A. J.; Chakraborti, N., 1997, “Dynamic process modeling of Iron ore sintering”. Steel Research 68 (7), pp. 285-292.
- Silva, R.H.B., 2005, “Uma metodologia para previsão de emissões em leito de sinterização utilizando dados de processo”, Vitória, 122p. Tese de Mestrado - Programa de Pós Graduação em Engenharia Mecânica, Universidade Federal do Espírito Santo.
- Yoshinaga, M. and Kubo, T., 1978, “Approximate simulation model for sintering process”, Sumitomo Search 20, pp.1-14.
- Young, R. W., 1977, “Dynamic mathematical model of sintering process”. Ironmaking and Steelmaking 6, pp. 321-328.

## ANALYTICAL SOLUTION OF ADVECTION-DIFFUSION EQUATION: APPLICATIONS IN ENVIRONMENTAL ENGINEERING

### Cristiana Andrade Poffal

Centro Universitário La Salle – Victor Barreto, 2288, 92010-000, Canoas – RS – Brazil  
E-mail: [poffal@brturbo.com.br](mailto:poffal@brturbo.com.br)

### Jorge Rodolfo Silva Zabadal

Universidade Federal do Rio Grande do Sul,  
Departamento de Engenharia Nuclear, Av. Osvaldo Aranha 99, 4º andar, 90046-900 Porto Alegre, RS, Brazil  
E-mail: [jorge.zabadal@ufrgs.br](mailto:jorge.zabadal@ufrgs.br)

### Michelle Guimarães Salgueiro

Universidade Federal do Rio Grande do Sul  
Programa de Pós-Graduação em Engenharia Mecânica (PROMEC)  
Rua Sarmento Leite 425, 90046-900 Porto Alegre, RS, Brazil  
E-mail: [michelle.salgueiro@hotmail.com](mailto:michelle.salgueiro@hotmail.com)

**Abstract.** Environmental problems caused by accidents occurring during transportation of chemicals along rivers and lakes are increasing considerably the interest in the study of the dispersion and transport of pollutant in water bodies. In these cases, the most important information obtained from the simulation are the time required for the pollutant to eventually reach the points where the water is collected for treatment and distribution, its corresponding concentration, and the time required for the disposal to leave the corresponding area. The aim of this work is to develop a method to obtain an analytical solution to the two-dimensional advection-diffusion equation which describes the dispersion of pollutant in a water body. The proposed method is based on the application of a differential operator which transforms analytical solutions of a differential equation into new analytical solutions of the same equation. The main advantage of applying this operator is the fact that each new solution has a greater number of arbitrary parameters which allow the solution to satisfy the boundary conditions of the problem in wide regions of the considered domain. We simulate contaminant dispersion in the Guaíba Lake, in the outskirts of Porto Alegre. The results obtained were compared with available data in literature.

**Keywords.** Advection- diffusion equation, pollutant dispersion, Lie symmetries, Bäcklund transformations

### 1. Introduction

Environmental problems caused by accidents occurring during transportation of chemicals along rivers and lakes are increasing considerably the interest in the study of the dispersion and transport of pollutant in water bodies. In these cases, the most important information obtained from the simulation are the time required for the pollutant to eventually reach the points where the water is collected for treatment and distribution, its corresponding concentration, and the time required for the disposal to leave the corresponding area. To be effective, such information must be obtained in real time in order to permit implementation of the appropriate emergency procedures, such as to keep certain pumps turned off for some time interval or to eventually confine the disposal in a region far from the collecting points, for further treatment and removal.

The advection diffusion equation that describes mathematically the pollutant dispersion in a water body is given by

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + v \frac{\partial C}{\partial y} + w \frac{\partial C}{\partial z} + kC = \frac{\partial}{\partial x} \left( K_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) + Q \quad (1)$$

where  $C$  is the pollutant concentration,  $t$  is the time variable,  $K_x$ ,  $K_y$  e  $K_z$  are the diffusion coefficients over the respective spatial variables,  $k$  is the decay constant,  $u$ ,  $v$  and  $w$  are the components of the velocity vector in  $x$ ,  $y$  and  $z$  directions, respectively,  $Q$  corresponds to the source term.

Several analytical, numerical and hybrid methods which solve Eq. (1) can be found in literature (Zwillinger, 1997), but the analytical solution for some problems of great interest in environmental engineering is not known yet. Alternative methods used to solve Eq. (1) can be compared. The numerical methods based on discrete formulations, such as finite difference and finite elements yield good results (Carnaham, 1972; Ortega et al, 1981; Reali et al, 1984; Greenspan et al., 1988; Bohm, 1990; Rajar et al., 1997; Perriñez, 1998; Yang et al., 1998; Carroll et al, 2000; Bonnet et al, 2001; Drago et al., 2001). Curvilinear grids can be used (Valentine, 1959; Churchill, 1975; Spiegel, 1977; Hauser et

al, 1986). Systems based on finite elements have specialized generators of triangular and hexagonal grids that can be adapted to the region geometry (Dhaubadel et al., 1987).

Zabadal (1991) used a variational method (Reddy, 1984) which consisted of a combination of the Petrov-Galerkin formulation and a discretization scheme to simulate the dispersion of coliform and oxygen in Guaíba lake. This formulation produced good results and had an acceptable processing speed for practical purposes.

Using symbolic computation, the systems based on integral transforms yield hybrid numerical analytical solutions to heat and mass diffusion-convection problems. This method consists of transforming the original partial differential equation into a decoupled infinite system of ordinary differential equations (Cotta, 1993).

In 1999, Lersch et al. developed a formulation based on the application of the Fourier transform to obtain approximate solutions in closed form for the two-dimensional advection-diffusion equation. In 2000, Zabadal et al. proposed an extension of the component suppression schemes to obtain a closed form solution for water pollution problems. This method consists of fitting functions of the differential operators in the formal solution by polynomials.

In 2005, Zabadal et al. (2005<sup>a</sup>) proposed a method based on the application of the rules for manipulation of exponential of differential operators in order to obtain a solution for a problem of pollutant dispersion in a water body, assuming that the contaminant does not reach the margins any place of its path and that the velocity field was locally constant and previously known. In the same year, Zabadal et al. (2005<sup>b</sup>) developed an iterative scheme which produced a sequence of analytical solutions for the advection-diffusion equation applied to water pollution problems.

The aim of this work is to develop a method to obtain an analytical solution to the two-dimensional advection-diffusion equation which describes the dispersion of pollutant in a water body. Analytical solutions have several advantages: they are expressed in a closed form, the programs based on this kind of solutions require less processing time, since there is a reduction of the number of operations to be performed, then the amount of memory required to execute the routines decreases significantly. Besides, the source codes based on closed-form solutions are short and easy to deurate. The proposed method is based on the application of a differential operator which transforms analytical solutions of a differential equation into new analytical solutions of the same equation. The main advantage of applying this operator relies on the fact that each new solution has a greater number of arbitrary parameters which allow the solution to satisfy the boundary conditions of the problem in wide regions of the considered domain. We simulate contaminant dispersion in the Guaíba Lake, in the outskirts of Porto Alegre, Brazil. The results obtained were compared with available data in literature.

This article is outlined as follows. In section 2, the mathematical problem is described. In section 3, the two-dimensional advection-diffusion equation describing the process is first transformed into an auxiliary equation with the stream function and the velocity potential of the corresponding inviscid flow as independent variables. In section 4, the results obtained by a simulation in Guaíba Lake are shown. Finally, in section 5, conclusion and recommendations for future work are drawn.

## 2. Mathematical description of the problem

The problem of pollutant dispersion in a water body can be described as

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + v \frac{\partial C}{\partial y} = D \left( \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \right) - kC \quad (2)$$

and the initial state of the system is given by

$$c_0(x, y) = c_c \delta(x - x_c) \delta(y - y_c) \quad (3)$$

where  $C$  denotes the pollutant concentration,  $t$  is the time variable,  $D$  is the diffusion coefficient,  $k$  is the decay constant,  $u$  e  $v$  are the velocity vector components in  $x$  and  $y$  directions, respectively, the initial condition  $c_0(x, y)$  is an impulse with the same mass of the discharge,  $x_c$  and  $y_c$  are coordinates of the center of the isocurves.

The process of solving the problem described by Eq. (2) and Eq. (3) is showed in the next section.

## 3. Solution of the advection-diffusion equation

Applying the method of separation of variables, assuming that the velocity field is stationary and that the pollutant degradation is independent of the diffusion and of the advection through the water body,

$$C(x, y, t) = \tau(t) \cdot c(x, y). \quad (4)$$

The substitution of Eq. (4) in Eq. (2) followed by the division of the resulting equation by  $\tau(t) \cdot c(x, y)$  yields

$$\frac{1}{\tau} \frac{d\tau}{dt} + k = -u \frac{\partial c}{\partial x} - v \frac{\partial c}{\partial y} + D \left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) = \lambda, \quad (5)$$

where  $\lambda$  corresponds to the separation constant. The system can be written as

$$\frac{1}{\tau} \frac{d\tau}{dt} + k = \lambda, \quad (6)$$

$$-u \frac{\partial c}{\partial x} - v \frac{\partial c}{\partial y} + D \left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) = \lambda. \quad (7)$$

Solving Eq. (6) results

$$\tau(t) = \tau_0 e^{-(k-\lambda)t}. \quad (8)$$

In equation (8), as  $k - \lambda$  corresponds to the value of the decay constant, and hence,  $\lambda$  must be equal to zero, so the system formed by Eq. (6) and Eq. (7) becomes

$$\frac{d\tau}{dt} + k\tau = 0 \quad (9)$$

$$u \frac{\partial c}{\partial x} + v \frac{\partial c}{\partial y} - D \left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) = 0. \quad (10)$$

The solution of Eq. (9) is given by Eq. (8), considering  $\lambda = 0$ . In order to obtain a solution for Eq. (10) valid for all the domain, a change of variables is performed to rewrite it in terms of new orthogonal coordinates  $\Phi$  and  $\Psi$ . The main goal of the change of variables is to map the water body geometry in a rectangular domain in the new coordinate system.

### 3.1 Advection-diffusion equation in an orthogonal curvilinear coordinate system

Equation (10) can be expressed in terms of the new variables  $\Phi(x, y)$  and  $\Psi(x, y)$ , which constitute an orthogonal curvilinear system of coordinates, as

$$\begin{aligned} & \left( u\Phi_x + v\Phi_y - D\Phi_{xx} - D\Phi_{yy} \right) \frac{\partial c}{\partial \Phi} + \left( u\Psi_x + v\Psi_y - D\Psi_{xx} - D\Psi_{yy} \right) \frac{\partial c}{\partial \Psi} \\ & - D(\Phi_x^2 + \Phi_y^2) \frac{\partial^2 c}{\partial \Phi^2} - D(\Psi_x^2 + \Psi_y^2) \frac{\partial^2 c}{\partial \Psi^2} = 0. \end{aligned} \quad (11)$$

Analyzing Eq. (11) and considering the possibility of using a formulation which is independent of the water body geometry, it becomes clear that this equation can be mapped into the target equation

$$\frac{\partial c}{\partial \Phi} = D \left( \frac{\partial^2 c}{\partial \Psi^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial \Phi^2} \right), \quad (12)$$

provided that the following auxiliary equations are satisfied:

$$u\Phi_x + v\Phi_y - D\Phi_{xx} - D\Phi_{yy} = 1, \quad (13)$$

$$u\Psi_x + v\Psi_y - D\Psi_{xx} - D\Psi_{yy} = 0, \quad (14)$$

$$(\Phi_x^2 + \Phi_y^2) = 1 \quad (15)$$

and

$$\left(\Psi_x^2 + \Psi_y^2\right) = 1. \quad (16)$$

The term of first order in  $\Psi$  does not appear in Eq. (11) because the advective transport occurs only along the streamlines. In order to solve Eq. (12) a new formulation to obtain the Lie symmetries admitted by differential equations is employed. This formulation is shown in the next subsection.

### 3.2 The use of mapping to obtain Lie symmetries

Considering  $-\infty < \Phi < +\infty$ ,  $0 < \Psi < +\infty$ , the problem described by Eq. (12) and subjected to the boundary condition

$$\left. \frac{\partial c}{\partial \Psi} \right|_{\Psi=0} = 0 \quad (17)$$

and to the restriction

$$c(\Phi_0, \Psi) = c_0(\Psi) \quad (18)$$

can be solved by the application of the differential operator defined by

$$B = p_1(\Phi, \Psi) \frac{\partial}{\partial \Phi} + p_2(\Phi, \Psi) \frac{\partial}{\partial y} + p_3(\Phi, \Psi) I, \quad (19)$$

where  $I$  is the identity operator and  $p_1(\Phi, \Psi)$ ,  $p_2(\Phi, \Psi)$  and  $p_3(\Phi, \Psi)$  are coefficients to be determined. This operator  $B$  transforms analytical solutions of a partial differential equation into new analytical solutions of the same equation. Each new solution has a greater number of arbitrary elements which allow this new solution to satisfy a wider set of boundary conditions.

If  $f_1$  is an analytical solution of Eq. (12) whose differential operator can be defined as

$$A = \frac{\partial}{\partial \Phi} - D \left( \frac{\partial^2}{\partial \Phi^2} + \frac{\partial^2}{\partial \Psi^2} \right), \quad (20)$$

then the application of  $A$  over  $f_1$  results zero

$$A f_1 = 0. \quad (21)$$

As  $B$  generates new analytical solutions of a partial differential equation

$$B f_1 = g \quad (22)$$

where  $g$  is a new solution of Eq. (12) and consequently

$$A g = 0, \quad (23)$$

so it can be written that

$$A B f_1 = 0. \quad (24)$$

Solving the system formed by Eq. (21) and Eq. (24) the coefficients  $p_1(\Phi, \Psi)$ ,  $p_2(\Phi, \Psi)$  and  $p_3(\Phi, \Psi)$ , which appear in Eq. (19), are determined and this equation can be rewritten as

$$B c = (\eta_4 - 2\eta_1 \cdot \Psi) \frac{\partial c(\Phi, \Psi)}{\partial \Phi} + (\eta_3 + 2\eta_1 \cdot \Phi) \frac{\partial c(\Phi, \Psi)}{\partial \Psi} + (\eta_2 + \eta_1 \cdot \Psi) c(\Phi, \Psi), \quad (25)$$

where  $\eta_1$ ,  $\eta_2$ ,  $\eta_3$  and  $\eta_4$  are arbitrary constants.

In order to reach the most general solution that can be obtained by the application of this method, we solve

$$Bc = c, \tag{26}$$

which produces the invariant solution that can be found when employing operator B.

The solution for Eq. (26) is given by

$$c(\Phi, \Psi) = F1\left(-\eta_2\Phi^2 - \eta_3 \cdot \Phi + \eta_4 \cdot \Psi - \eta_2 \cdot \Psi^2\right) \cdot \exp\left(\frac{2\Phi\sqrt{\eta_2^2} + (2\eta_1 + \eta_4) \arctan\left(\frac{(2\eta_2\Phi + \eta_3)\sqrt{\eta_2^2}}{\eta_2\sqrt{(-\eta_4 + 2\eta_2 \cdot \Psi)^2}}\right)}{4\sqrt{\eta_2^2}}\right) \tag{27}$$

where *F1* denotes an arbitrary function.

The application of the boundary condition represented by Eq. (17) over Eq. (27) produces

$$c(\Phi, \Psi) = F1\left(-\eta_2\Phi^2 - \eta_3 \cdot \Phi + \eta_4 \cdot \Psi - \eta_2 \cdot \Psi^2\right) \cdot \exp\left(\frac{2\Phi\sqrt{\eta_2^2} + (2\eta_1 + \eta_4) \arctan\left(\frac{(2\eta_2\Phi + \eta_3)\sqrt{\eta_2^2}}{\eta_2\sqrt{(-\eta_4 + 2\eta_2 \cdot \Psi)^2}}\right)}{4\sqrt{\eta_2^2}}\right) \tag{28}$$

$$+ F1\left(-\eta_2\Phi^2 - \eta_3 \cdot \Phi - \eta_4 \cdot \Psi - \eta_2 \cdot \Psi^2\right) \cdot \exp\left(\frac{2\Phi\sqrt{\eta_2^2} + (2\eta_1 + \eta_4) \arctan\left(\frac{(2\eta_2\Phi + \eta_3)\sqrt{\eta_2^2}}{\eta_2\sqrt{(-\eta_4 - 2\eta_2 \cdot \Psi)^2}}\right)}{4\sqrt{\eta_2^2}}\right),$$

using the concept of reflection at a boundary (Crank, 1975). The restriction given by Eq. (18) determines the arbitrary function *F1*. In order to write Eq. (28) in the original coordinate system, a suitable combination of stream functions can be used to represent the flow around a given margin and the corresponding velocity potential. For example,

$$\Psi(x, y) = U \cdot y + f(x, y) \tag{29}$$

represents the composition of the stream function for the uniform flow and the stream function for an arbitrary margin. Applying the Cauchy-Riemann equations (Churchill, 1975)

$$\frac{\partial\Phi(x, y)}{\partial x} = \frac{\partial\Psi(x, y)}{\partial y} \tag{30}$$

and

$$\frac{\partial\Phi(x, y)}{\partial y} = -\frac{\partial\Psi(x, y)}{\partial x} \tag{31}$$

it is possible to find an expression for the potential velocity

$$\Phi(x, y) = U \cdot x - \int \frac{\partial f(x, y)}{\partial x} dy + C. \tag{32}$$

The substitution of Eq. (29) and Eq. (32) in Eq. (28) yields the solution of Eq. (10) in terms of the original variables and the pollutant concentration described by Eq. (4) in any point of the domain is given by

$$C(x, y) = e^{-kt} c(\Phi(x, y), \Psi(x, y)). \quad (33)$$

#### 4. Results and discussion

In order to illustrate the efficiency of the proposed method, a simulation of a problem of an accident occurred during the transportation of benzene in Guaíba Lake is performed. Figure 1 shows a sketch of this lake which has 70Km of bank extension, its area is 496Km<sup>2</sup> and its length is about 50Km.



Figure 1: Sketch of Guaíba Lake

In this simulation the expression used to represent the stream function is

$$\Psi(x, y) = U_{\infty} \cdot y + 800 \cdot \arctan[0,01 \cdot (y - f(x))] \quad (34)$$

where  $U_{\infty}$  is the free stream velocity and  $f(x)$  corresponds to the function that describes the margin of the considered domain. The velocity potential  $\Phi$  is calculated by the application of the Cauchy-Riemann equations. The substitution of  $\Phi$  and  $\Psi$  in Eq. (33) gives the solution in Cartesian coordinates. It is considered a discharge of 1.000m<sup>3</sup> of benzene in a region close to Déa Coufal Street. The data used are  $U_{\infty} = 0,07$  m/s and  $D = 5 \cdot 10^{-4}$  m<sup>2</sup>/s, the initial shape of the discharge in orthogonal coordinates is approximated by

$$c(\Phi_0, \Psi) = 2,5 \cdot (0,058\Phi_0^2 - 0,0047 \cdot \Phi_0 + 0,15 \cdot \Psi + 0,058 \cdot \Psi^2) \cdot \exp(-0,5 \cdot \Phi_0) \cdot \exp\left(-1,37 \cdot \arctan\left(\frac{(-0,116\Phi_0 + 0,0047)}{\sqrt{(-0,15 - 0,116 \cdot \Psi)^2}}\right)\right), \quad (35)$$

and it specifies function  $F1$  in Eq. (28).

Figure 2 shows the accident location and the blob's path. It's possible to observe the regions reached by the blob along this path.



Figure 2: Accident Location close to Déa Coufal Street and blob's path

Figure 3 shows the blob's extension close to the inlet called Ponta do Arado Velho obtained by the proposed method. It took 20 hours for the blob to get to this place.

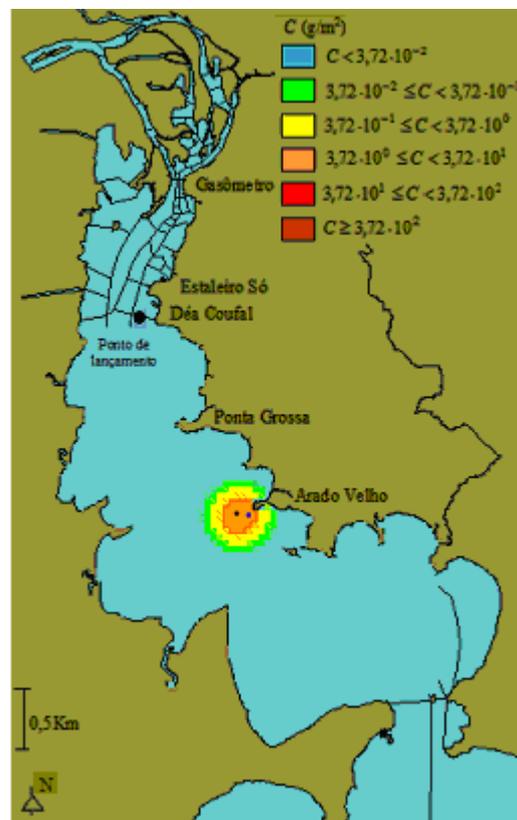


Figure 3: Blob's extension close to Ponta do Arado Velho obtained by the proposed method

Figure 4 shows the blob's extension reported by Zabadal (2000). In both methods the the blob's extension and the time required to reach Ponta do Arado Velho are the same.

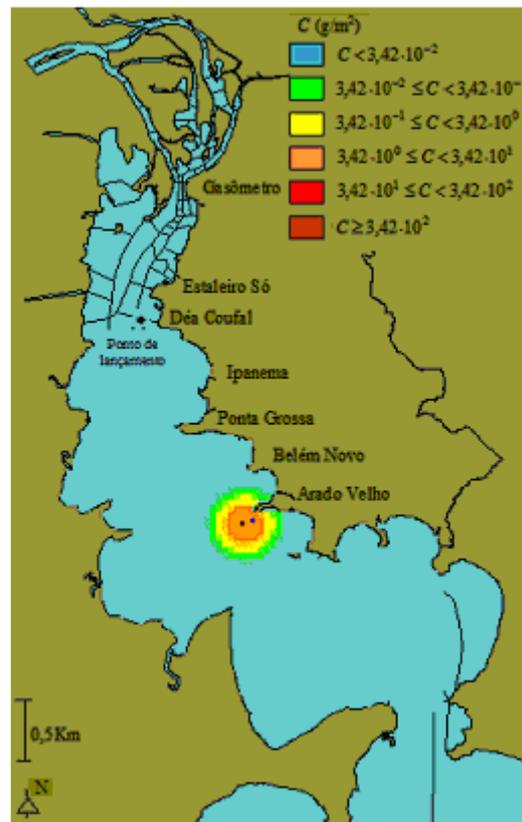


Figure 4: Blob's extension close to Ponta do Arado Velho obtained by Zabadal (2000)

It is important to emphasize that considering the environmental damage caused by the blob, this simulation corresponds to be worst case, because the concentration values are over estimated for pollutant of low solubility, as the collecting points are located 1,2m under the water body surface.

The results were obtained in 10 seconds in microcomputer Semprom 2.4GHZ with 512MB RAM. In the same computer, considering the same scenario the results reported by Zabadal (2000) were generated in 90 seconds.

## 5. Conclusion

The main advantage of the proposed method relies on the computational features of the corresponding code. The low processing time required to obtain the solutions with Maple V and the small amount of memory needed in most calculations, allow the simulations to be carried out in microcomputers. Obtaining the solution in real time allows advising authorities the regions which will be reached by the blob, in such a way that, emergency procedures, such as turning off certain pumps and confining the disposal in a region far from the collecting points for further treatment or removal, can be performed. The solutions can be implemented in a code written in procedural language, avoiding the use of numerical methods for simulating realistic pollutant dispersion scenarios. The results coincide with data available in literature. The research is currently focused in the formulation of analytical procedures for dealing with the bacteria dispersion in water bodies.

## 6. References

- Böhm, L., 1990, "Mathematical Model of Bacteria Dispersion", Departamento Municipal de Água e Esgotos de Porto Alegre, Brazil.
- Carroll, R., Warwick, J., Heim, K., Bonzongo, J., Miller, J., Lyons, W., 2000, "Simulation of Mercury Transport and Fate in the Carson river, Nevada", Ecological Modeling, vol 125, pp. 255-278.
- Carnahan, J., 1972, "Applied Numerical Methods", McGraw-Hill, New York.
- Churchill, R., 1975, "Complex Variables and Applications", McGraw-Hill, New York.
- Cotta, R., 1993, "Integral Transforms in Computational Heat and Fluid Flow Technique", CRC Press, Boca Raton.
- Crank, J., 1975, "The Mathematics of Diffusion", Oxford University Press, London.

- Dhaubadel, M.; Reddy, J.; Tellionis, D., 1987. "Finite-element analysis of fluid flow and heat transfer for staggered bundles of cylinders in cross flow". *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, vol. 7, pp. 1325-1342.
- Drago, M., Cescon, B., Iovenitti, L., "A three-dimensional numerical model for eutrophication and pollutant transport", *Ecological Modeling*, vol 145, pp. 17-34.
- Greenspan, D.; Casuli, V., 1988, "Numerical Analysis for Applied Mathematics, Science and Engineering", Addison-Wesley Publishing Co., Redwood City.
- Hauser, J.; Paap, H.; Eppel, D., 1986, "Boundary Conformed Coordinate Systems for Fluid Flow Problems", Pineridge Press, Swansea.
- Lersch, E.; Hoffman, C.; Zabadal, J., 1999, "Hybrid System of Simulation of Pollutant Propagation", *Revista Ecos Pesquisa*, vol. 2, pp. 7-38.
- Ortega, J.; Poole, W., 1981, "Numerical Methods for Differential Equations", Pitman Publishing, Marshfield.
- Rajar, R., Matjaz, C., 1997, "Hydrodynamic and Water Quality Modeling: an experience", *Ecological Modeling*, vol 101, pp. 195-207.
- Reddy, J., 1986, "Applied Functional Analysis and Variational Methods in Engineering", McGraw-Hill, New York.
- Reali, M.; Rangogni, R.; Pennati, V., 1984, "Compact analytic expressions of two dimensional finite difference forms", *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol.20, pp. 121-130.
- Sislab, 2001, "System for Management of Environmental Data", DMAE, Porto Alegre, Brazil.
- Spiegel, M., 1977, "Complex Variables", Schaum series, McGraw-Hill, New York.
- Valentine, H., 1959, "Applied Hydrodynamics", Butterworth & Co. Ltd., London.
- Yang, Y., Wilson, L., Makela, M., Marcheti, M., 1998, Accuracy of numerical methods for solving the advection-diffusion equation as applied to spore and insect dispersal, *Ecological Modeling*, vol. 109, pp. 1-24.
- Zabadal, J., 1991, "Propagation of Bacteria and Chemical Substances in the Guaíba Lake", DMAE/CESB, Porto Alegre, Brazil.
- Zabadal, J., 2000, "Approximate Solutions for the Two Dimensional Problems in Water Pollution", *Component Suppression Schemes*, *Revista Ciência e Natura*, N.22, pp. 25-36.
- Zabadal, J.; Vilhena, M.; Segatto, C., 2001, "The Total Photon Cross-Section Formulation for a Wide Range of Energy", *Il nuovo cimento*, vol. 116B, No. 2, pp. 183-190.
- Zabadal, J.; Vilhena, M.; Poffal, C., Bogado, S., 2004<sup>a</sup>, "Simulation of Two-Dimensional Viscous Flows Using Lie Algebra", *Proceedings of XXV Iberian Latin American Congress on Computational Methods in Engineering*, Recife, Brazil.
- Zabadal, J.; Poffal, C., 2004<sup>b</sup>, "Solution of the Multidimensional Diffusion Equation Using Lie Symmetries: Simulation of Pollutant Dispersion in the Atmosphere", *Proceedings of Encit 2004*, ABCM, Rio de Janeiro, Brazil.
- Zabadal, J.; Poffal, C.; Vilhena, M. 2004<sup>c</sup>. "Analytic Solution of the Two Dimensional Advection-Diffusion Equation in Cartesian Coordinates Using Lie symmetries", *XXVII Congresso Nacional de Matemática Aplicada e Computacional*, Porto Alegre, Brazil.
- Zabadal, J.; Vilhena, M.; Bogado, S.; Poffal, C., 2005<sup>a</sup>, "Solving Unsteady Problems in Water Pollution Using Lie Symmetries", *Ecological Modelling*, vol 186, pp. 271-279.
- Zabadal, J.; Poffal, C., Bogado, S., 2005<sup>b</sup>, "Closed Form Solutions for Water Pollution Problems", *Proceedings of XXV Iberian Latin American Congress on Computational Methods in Engineering*, Espírito Santo, Brazil.
- Zwillinger, D., 1997. *Handbook of Differential Equations*, Academic Press.

## EFFECTS OF TEMPERATURE, ATMOSPHERE AND PARTICLE SIZE ON THE KINETICS AND CONVERSION OF SULFUR DIOXIDE SORPTION BY LIMESTONE

### Ivonete Ávila

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
iavila@sc.usp.br

### Fernando Eduardo Milioli

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
milioli@sc.usp.br

### Paula Manoel Crnkovic

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
paulam@sc.usp.br

**Abstract.** Thermogravimetry was applied to determine the effects of temperature, atmosphere and particle size on the kinetics and conversion of sulfur dioxide sorption by limestone. Ranges of temperature and particle size were established for simulated conditions typical of fluidized bed coal combustion. The experiments were carried out in a thermogravimetric analyzer (Shimadzu-TGA-51H) under isothermal conditions for temperatures in the range from 650 to 950 °C, at local atmospheric pressure (~ 697 mmHg), in dynamic atmospheres of air and nitrogen. Two types of natural limestone (calcite and dolomite) were used in two different particles sizes: 530 and 650 μm. In all the cases, conversion grew with temperature and then started to drop as the temperature was further increased, possibly due to sintering. The conversion was always higher in nitrogen than in air atmosphere. The apparent activation energy, as indicated by the slope of the Arrhenius plot, resulted between 3.03 and 4.45 kJ/mol for the calcite, and 11.24 kJ/mol for the dolomite. The order of magnitude of the resulting activation energies suggest that the reaction is controlled by Knudsen diffusion for the calcite, and by pore molecular diffusion for the dolomite.

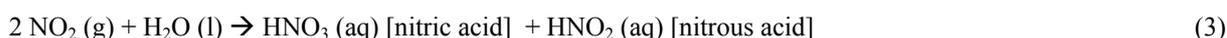
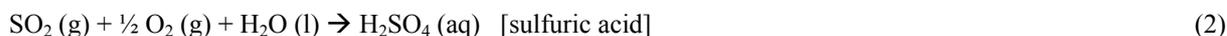
**Keywords.** thermogravimetry, sulfation, limestone, sulfur dioxide, chemical kinetics.

### 1. Introduction

Acid rain is a critical environmental problem all over the world. This generic term covers a variety of phenomena, all of them related to atmospheric precipitation of acids. Acid rain refers to precipitations that are significantly more acid than unpolluted rain, which itself is mildly acidic due to the presence in it of dissolved atmospheric carbon dioxide, which forms carbonic acid as follows (Baird, 1998):



Oxides of sulfur and nitrogen are present in significant amounts in polluted air, and both of them also react with water to produce acids. According to Kotz et al. (1994):

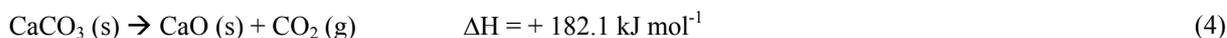


Reactions (2) and (3) are responsible for acid rain in industrialized regions. Sulfur dioxide (SO<sub>2</sub>), a pollutant that is a major contributor to acid rain, is produced when sulfur or sulfur-containing compounds are burned in air (Kotz et al., 1994).

Sulfur compounds are generally responsible for major damages to materials. Sulfur oxides generally accelerate corrosion by first forming sulfuric acid either in the atmosphere or on the surfaces of materials. Depending on the kind of material exposed as well as the duration of exposure, corrosion rates in urban sites have been observed to be from 1.5 to 5 times the rates observed in rural environments (Wark et al., 1998). Analysis of numerous epidemiological studies clearly indicate an association between air pollution, as measured by the concentration of SO<sub>2</sub> plus particulate matter and moisture, and health effects of varying severities. Various animal species, including humans, respond to sulfur dioxide by developing bronchoconstriction diseases (Wark et al., 1998).

Mineral coals and heavy oils from petrol are widely used for energy generation. Those fossil fuels are burned in thermoelectric power stations and are the main source of SO<sub>2</sub> emission into earth's atmosphere (Li and Sadakata, 1999). The development of efficient, economic and environment-friendly technologies is essential for the utilization of high-sulfur fuels. Fluidized bed combustion is one of such a technologies. It allows to remove sulfur during combustion by injecting limestone in the combustion chamber. Limestone sorbs SO<sub>2</sub> before it can be emitted to atmosphere (Van Houte and Delmon, 1979; Baird, 1998).

High temperature sorption of SO<sub>2</sub> by limestone involves reactions of calcination followed by sulfation. When submitted to high temperatures, limestone decomposes into a solid mostly formed of CaO, and the gas CO<sub>2</sub>. The calcination reaction is given by:



The produced calcine is very porous and has the same size of the original limestone, so that its high porosity is due to the difference between the molar volumes of CaCO<sub>3</sub> (~ 36.9 cm<sup>3</sup> mol<sup>-1</sup>) and CaO (~16.9 cm<sup>3</sup> mol<sup>-1</sup>) (Hartman and Coughlin, 1976; Simons et al., 1987; Dam-Johansen and Ostergaard, 1991). Depending on temperature and SO<sub>2</sub> partial pressure, different chemical species may be produced from the reaction between CaO and SO<sub>2</sub>. The most commonly assumed routes for sulfation are:



According to Dennis and Hayhurst (1990), routes (5) and (6) were proposed by Moss (1975), while route (7) was proposed by Low et al. (1971). As remarked by Anthony and Granatstein (2001), Moss suggested that the reactions of route (5) predominate at low temperatures where CaSO<sub>3</sub> is stable, while the reactions of route (6) predominate at high temperatures (>850 °C) where CaSO<sub>3</sub> becomes unstable.

During sulfation the pores of the CaO particle are filled with products (CaSO<sub>4</sub>, CaSO<sub>3</sub>, CaS), and become progressively plugged. Even compared to the natural limestone, the physical structure of the sulfated regions in a particle become more compact owing to the difference between the molar volumes of CaSO<sub>4</sub> (~ 46 cm<sup>3</sup> mol<sup>-1</sup>) and CaCO<sub>3</sub> (~36.9 cm<sup>3</sup> mol<sup>-1</sup>) (Dam-Johansen and Ostergaard, 1991).

Limestone sulfation is affected by porosity, size and size distribution of pores, intra-particle superficial area (Borgwardt and Bruce, 1986; Adánez et al., 1993; Li and Sadakata, 1999), geological age, size and density of the particles (Yrjas et al., 1995). Another factor to consider is the presence of chemical elements that may act as catalysts or poisons (Dam-Johansen and Ostegaard, 1991). The first works showing the influence of internal pore structure on CaO reaction to SO<sub>2</sub> were performed in the early 70's. With that, intrinsic physical features started to be considered alongside with the usual external superficial effects (Borgwardt and Bruce, 1986). In one of the first works, Pigford and Sliger (1973) found that in 96 μm limestone particles there was significant resistance to intra-particle gas diffusion at 980 °C. The authors concluded that SO<sub>2</sub> diffusion through the CaSO<sub>4</sub> product layers controlled sulfation rate. Borgwardt and Harvey (1972) evaluated the effect of porosity on sulfation. They defined an effectiveness factor as the ratio between the observed reaction rate, and its theoretical value if the whole particle volume was available for reaction. A strong dependence was observed between effectiveness and pore structure (volume, area and shape of pores). The authors concluded that the effectiveness was dependent on external layers pore plugging by CaSO<sub>4</sub>, which imposes loss of internal superficial area, and make the internal layers of CaO inaccessible.

The search for reaction controlling steps and kinetic parameters for SO<sub>2</sub> sorption by limestones has been undertaken by various researchers. Commonly reported apparent activation energies vary in a wide range, from unities to hundreds of kJ mol<sup>-1</sup>. Several works report apparent activation energies obtained through thermogravimetry in various operational conditions, e.g.: 133 kJ mol<sup>-1</sup> between 650 and 800 °C (Iisa and Hupa, 1992); 146 kJ mol<sup>-1</sup> for conversion above 50 % (Hajaligol et al., 1988); 64 kJ mol<sup>-1</sup> for direct sulfation, and 205 kJ mol<sup>-1</sup> for sulfation preceded of calcination (Snow et al., 1988); 95±14, 77±20 and 70±21 kJ mol<sup>-1</sup> for direct sulfation in atmospheres containing, respectively, 30, 50 and 80 % CO<sub>2</sub>, between 500 and 850 °C (Tullin et al., 1993). Crnkovic (2003) applied thermogravimetry to evaluate the sulfation of a calcitic and a dolomitic limestone. Samples of particulate with sizes between 390 and 779 μm were submitted to process temperatures between 600 and 900 °C. In the sulfation of a dolomite previously calcined 650 μm limestone, in SO<sub>2</sub> atmosphere, the apparent activation energy at the maximum reaction rate condition resulted 5.3 kJ mol<sup>-1</sup> (between 600 and 700 °C), and 11.6 kJ mol<sup>-1</sup> (between 700 and 850 °C).

The activation energy in heterogeneous fluid-solid reactions is commonly addressed as apparent since it is highly affected by intra-particle mass transport. Pore plugging, sintering and particle size become crucial (James and Hughes,

1976; Iisa and Hupa, 1992; Crnkovic, 2003; Crnkovic et al., 2006). Fuertes et al. (1994) notes a literature agreement (Bhatia and Permuter, 1981, Pigford and Sliger, 1973, Gopalakrishanan and Seehra, 1990) on that the high reported activation energies for calcine sulfation (between 121 and 167 kJ mol<sup>-1</sup>) are not satisfactorily explained by diffusion control. The authors observe that, under molecular diffusion control, the activation energies result around 12 kJ mol<sup>-1</sup>, while under Knudsen diffusion control, they result around 4 kJ mol<sup>-1</sup>.

Dennis and Hayhurst (1990) determined conversions and reaction rate coefficients for the sorption of SO<sub>2</sub> by limestone in a fluidized bed reactor electrically heated, in atmospheres containing variable concentrations of O<sub>2</sub> and N<sub>2</sub>. They found that by decreasing O<sub>2</sub> concentration, the conversion increases, while the drop of reaction rate coefficient becomes slower in time. The authors concluded, however, that the presence of a small amount of O<sub>2</sub> accelerates the sulfation without causing significant decrease on conversion. Lindo (2003) studied the effect of the concentration of SO<sub>2</sub> on the direct sulfation of limestones in a bench fluidized bed reactor. The author found a quicker and more effective sulfation when SO<sub>2</sub> was present in higher concentrations. Supposedly, at higher concentrations of SO<sub>2</sub> pore plugging is intensified at the outer layers of the particles, forming thinner sulfated shells. As CO<sub>2</sub> flows out from the particles, it becomes easier for the gas to break through thinner shells, causing cracks and providing a path for SO<sub>2</sub> penetration. Costa (2000) studied the effect of temperature on conversion and reaction rate coefficient for the sorption of SO<sub>2</sub> by limestone in a bench fluidized bed. The author used a calcitic limestone which is also applied in the present study (the limestone named CI). The reaction rate coefficient for 650 µm limestone particles resulted maximum at 881 °C.

The purpose of this work is to use thermogravimetry to analyze the influence of temperature, atmosphere and particle size on conversion and kinetics of SO<sub>2</sub> sorption by previously calcined limestone. The ranges of temperature and particle size applied are typical of fluidized bed coal combustion.

## 2. Materials and Experiments

Two types of Brazilian natural limestones were used: a calcitic limestone named CI, and a dolomitic limestone named DP. Table (1) shows the elementary chemical compositions of the limestones CI and DP which were determined by atomic emission spectrometry (ICP-AES).

Table 1. Elementary chemical composition (% mass/mass) of the limestones.

Limestones	Chemical Composition						
	Ca	Mg	Fe	Al	Sr	K	Mn
CI	35.34	0.35	2.45	0.25	0.14	0.09	0.52
DP	17.07	11.73	0.32	0.42	0.08	0.13	0.09

The thermogravimetric experiments were performed in a Shimadzu TGA-51H analyzer. Limestone Samples weighing 10.0±0.5 mg were used throughout the experiments. This allowed to minimize inter-particle mass transfer resistances by spreading the particles in a monolayer on the bottom of the pan (alumina, 6Ø × 2.5 mm). The limestone CI was used in two different mean sizes: 545 µm and 650 µm; the limestone DP was 650 µm mean size. Previously to sulfation, the sample was calcined inside the analyzer in air or nitrogen atmospheres, at a volumetric rate of 80 mL min<sup>-1</sup>, applying a heating rate of 30 °C min<sup>-1</sup>, until a desired temperature was reached and the decomposition was complete. This condition was kept for 20 min. Then, 20 mL min<sup>-1</sup> of SO<sub>2</sub> was added so that it's a volumetric fraction was 20%, and the isothermal sulfation developed. Five different sulfation temperatures were performed (750, 800, 850 and 900 °C), and three replicates were carried out on each temperature.

## 2. Methodology

### 2.1. Conversion

In this work, the conversion (*X*) of a reactant “*i*” indicates the ratio between the number of moles of the species which reacts and the number of moles of the species fed in the process. Then, the conversion is given by:

$$X(\%) = \frac{\text{moles of "i" that react}}{\text{moles of "i" fed in the process}} \times 100 \quad (8)$$

In the present thermogravimetric sulfation experiments the conversion of Ca plus Mg is given by:

$$X = \frac{(n_{Ca} + n_{Mg})_{\text{reacted}}}{(n_{Ca} + n_{Mg})_{\text{in the sample}}} \times 100 = \frac{(n_{SO_2})_{\text{sorbed}}}{(n_{Ca} + n_{Mg})_{\text{in the sample}}} \times 100, \quad (9)$$

where  $n$  stands for the number of moles of a concerning species. It should be noted that, irrespective of the considered reaction mechanism, the number of moles of  $SO_2$  that is sorbed equals the number of moles of Ca plus Mg that is reacted.

The injection of  $SO_2$  in the thermogravimetric analyzer promotes sulfation, causing mass increase. Thus, the total mass variation due to the sulfation of the already calcined sample ( $\Delta M_S$ ) is given by:

$$\Delta M_S = M_{SO_2} + M_{O_2} = n_{SO_2}W_{SO_2} + n_{O_2}W_{O_2} \quad (10)$$

Given the global reaction:



it comes that:

$$\frac{n_{SO_2}}{n_{O_2}} = \frac{1}{\frac{1}{2}} \therefore n_{O_2} = \frac{1}{2}n_{SO_2} \quad (12)$$

Substituting Eq. (12) into Eq. (10):

$$n_{SO_2} = \frac{\Delta M_S}{(W_{SO_2} + \frac{1}{2}W_{O_2})}, \quad (13)$$

where  $W$  stands for the molecular mass of the concerning species. The total mass variation due to sulfation,  $\Delta M_S$ , is also given by:

$$\Delta M_S = M_F - M_C, \quad (14)$$

where  $M_F$  is the final sample mass after sulfation, and  $M_C$  is the mass of the sample after calcination.

The number of moles of Ca plus Mg available in the sample is given by:

$$n_{Ca} + n_{Mg} = M_A \left( \frac{Y_{Ca}}{W_{Ca}} + \frac{Y_{Mg}}{W_{Mg}} \right), \quad (15)$$

where  $M_A$  is the initial sample mass of the natural limestone,  $Y$  stands for mass fractions, and  $W$  account for atomic masses.

Introducing Eq. (13) and Eq. (15) in Eq. (9), it comes that:

$$X = \frac{\frac{M_F - M_C}{W_{SO_2} + \frac{1}{2}W_{O_2}}}{M_A \left( \frac{Y_{Ca}}{W_{Ca}} + \frac{Y_{Mg}}{W_{Mg}} \right)} \times 100 \quad (16)$$

This equation stands for conversion in air atmosphere. To account for nitrogen atmosphere, the term  $\frac{1}{2}W_{O_2}$  must be dropped from Eq. (16).

## 2. 2. Kinetics

In this work Arrhenius kinetics is applied. Therefore, the reaction rate coefficient is given by:

$$k = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right), \quad (17)$$

where  $A$  is the pre-exponential or frequency factor,  $E_a$  is the apparent activation energy,  $R$  is the ideal gas constant, and  $T$  is the temperature. The reaction rate may be given by:

$$-\frac{dm}{dt} \propto m^a C_{SO_2}^b C_{O_2}^c \quad (18)$$

where  $m$  is the mass of Ca plus Mg available for sulfation,  $dm/dt$  is the reaction rate of Ca plus Mg,  $C$  is the concentration of gases ( $SO_2$  and  $O_2$ ) in the atmosphere, and  $(a, b, c)$  represent the order of the global reaction in relation to  $m$  and  $C$ . Following literature of gas-solid reaction, first order reaction is considered regarding the mass of the sample (Levenspiel, 1972). Also, differential conditions are considered (Borgwardt, 1985), so that the reaction rate is assumed to be independent of the concentration of reactant gases. Therefore, the reaction is assumed of order zero regarding the concentrations of gases. Under those assumptions, the reaction rate becomes:

$$-\frac{dm}{dt} \propto m \quad (19)$$

Introducing a reaction rate coefficient ( $k$ ) in Eq. (19), it comes:

$$-\frac{dm}{dt} = k m \quad (20)$$

Inserting Eq. (17) into Eq. (20), and applying the  $\ln$  operator, it follows that:

$$\ln \left[ -\frac{1}{m} \frac{dm}{dt} \right] = \ln A - \frac{E_a}{R} \frac{1}{T} \quad (21)$$

Through a mass balance, and assuming that Ca and Mg are consumed at the same rate, the available mass of Ca plus Mg available for reaction can be found as:

$$m = M_A (Y_{Ca} + Y_{Mg}) - (M - M_C) \left[ \frac{(W_{Ca} Y_{Ca} + W_{Mg} Y_{Mg})}{(W_{SO_2} + \frac{1}{2} W_{O_2}) (Y_{Ca} + Y_{Mg})} \right], \quad (22)$$

where  $M$  is the mass of the sample variable during sulfation. From Eq. (22) it comes that:

$$\frac{dm}{dt} = - \left[ \frac{(W_{Ca} Y_{Ca} + W_{Mg} Y_{Mg})}{(W_{SO_2} + \frac{1}{2} W_{O_2}) (Y_{Ca} + Y_{Mg})} \right] \frac{dM}{dt} \quad (23)$$

Equation (23) stands for air atmosphere. To account for nitrogen atmosphere the term  $\frac{1}{2} W_{O_2}$  must be dropped from the equation.

From the empirical data and applying Eq. (8) an Arrhenius plot is defined. Then, by linear regression both the pre-exponential factor and the activation energy are determined.

The required values of  $M_A$ ,  $M_C$ ,  $M$  and  $dM/dt$  are taken from the thermogravimetric experiments. The mass fractions of Ca and Mg in the sorbents, and the molecular weights of the concerning species are given in Tab. (2).

Table 2. Mass fractions of Ca and Mg in the limestone, and atomic and molecular weights.

Limestones	$Y_{Ca}$	$Y_{Mg}$	$W_{Ca}$	$W_{Mg}$	$W_{SO_2}$	$W_{O_2}$
Calcite (CI)	0,3534	0,0035	40,078	24,305	64,064	31,998
Dolomite (DP)	0,1707	0,1173				

### 3. Results

Figure (1) shows the result of the sulfation experiments performed for one of the considered temperatures (900 °C) in air atmosphere, for limestone DP of 650  $\mu\text{m}$ . The sets of curves for all the other experiments resulted similar. The TG curve in Fig. (1) shows both the calcination and the sulfation events. It shows also DTG and  $\Delta T$  profiles. For the purposes of this study, the data were analyzed from complete calcination to complete sulfation.

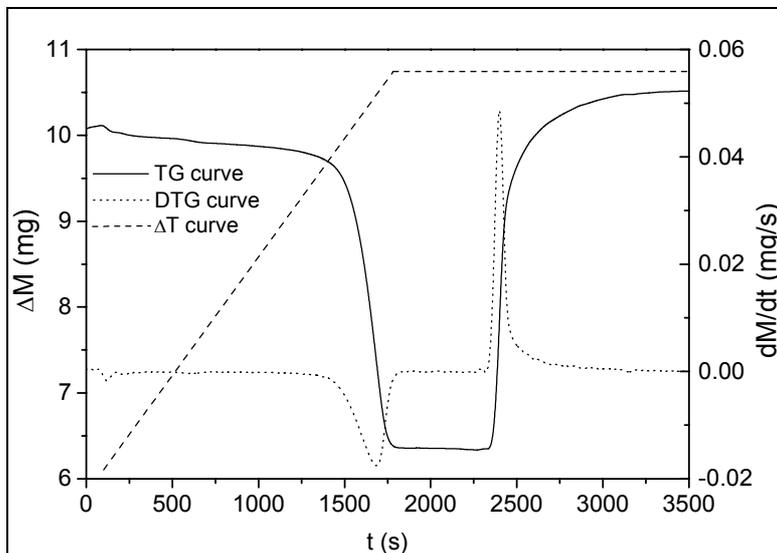


Figure 1. TG and DTG profiles of sulfation at 900 °C, of the 650  $\mu\text{m}$  limestone DP, in air atmosphere.

#### 3.1. Conversion

Conversion was calculated over a time interval set from the beginning to the end of the sulfation. The initial time was set at 100 seconds before the maximum peak of the DTG curve, when the sulfation was about to begin. The final time was set at 400 seconds after the initial time when, for practicable purposes, the sulfation was assumed to be finished. In fact, above the final time sulfation proceeded, but at a very slow rate.

Figures (2) and (3) show TG profiles of sulfation at various temperatures, for the 545  $\mu\text{m}$  limestone CI, respectively in air and nitrogen atmospheres. The curves in Fig. (2) and Fig. (3) account for averages of four replicates. Figures (4) and (5) also show TG profiles of sulfation at various temperatures, but both in air atmosphere, and respectively for the 650  $\mu\text{m}$  limestones CI and DP. The curves in Fig. (4) and Fig. (5) account for averages of three replicates.

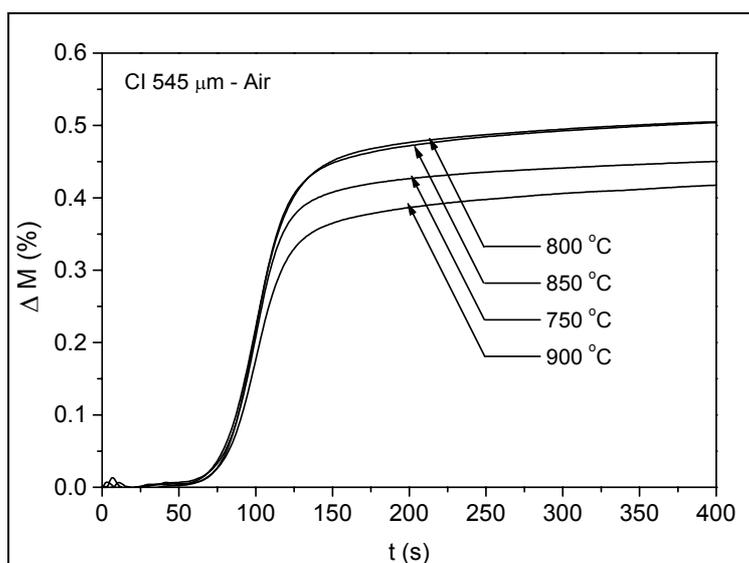


Figure 2. TG profiles of sulfation at various temperatures, for the 545  $\mu\text{m}$  limestone CI, in air atmosphere. Each curve accounts for the average of four replicates.

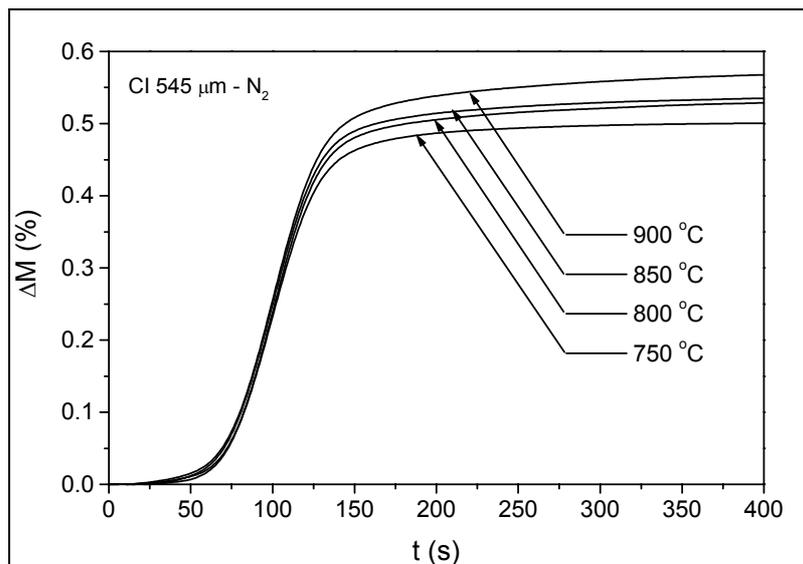


Figure 3. TG profiles of sulfation at various temperatures, for the 545  $\mu\text{m}$  limestone CI, in nitrogen atmosphere. Each curve accounts for the average of four replicates.

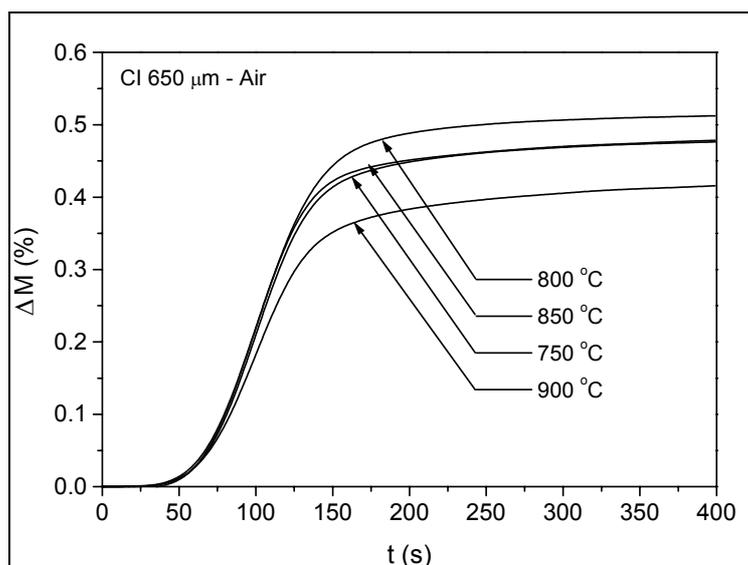


Figure 4. TG profiles of sulfation at various temperatures, for the 650  $\mu\text{m}$  limestone CI, in air atmosphere. Each curve accounts for the average of three replicates.

All the curves in Fig. (2) to Fig. (5) show the same time behavior, irrespective of temperature, atmosphere, particulate size and type of limestone. Otherwise, the final gain of mass was quite different for different temperatures. Table (3) shows a decreasing rank of mass gain regarding temperature. Table (4) shows the conversion calculated for all the considered cases. Figure (6) brings plots of the conversion as a function of temperature. From polynomial fits on the curves of Fig (6) maximum conversion temperatures were found which are presented in Tab. (5).

In air atmosphere, conversion at 900 °C resulted lower than that at 800 °C for all the limestones. For the 545  $\mu\text{m}$  limestone CI it resulted even lower than that at 750 °C. This fact is possibly due to sintering, which causes loss of internal superficial area and consequent conversion drop. As this behavior was not observed in nitrogen atmosphere up to 900 °C, an additional experiment was made in this atmosphere at the higher temperature of 950 °C. The conversion for this case resulted lower than that at 800 °C, showing that in nitrogen atmosphere sintering takes place at a slightly higher temperature. In both air and nitrogen atmospheres the conversion grows up with temperature and then starts to drop as temperature further increases. The temperature at which conversion starts to drop defines the maximum conversion, and represents the optimum sorption temperature.

In all temperatures, conversion resulted always higher in nitrogen than in air atmosphere. Different reaction mechanisms may account for that. In air atmosphere routes (5), (6) and (7) may take place, while in the absence of O<sub>2</sub> only route (7) is relevant.

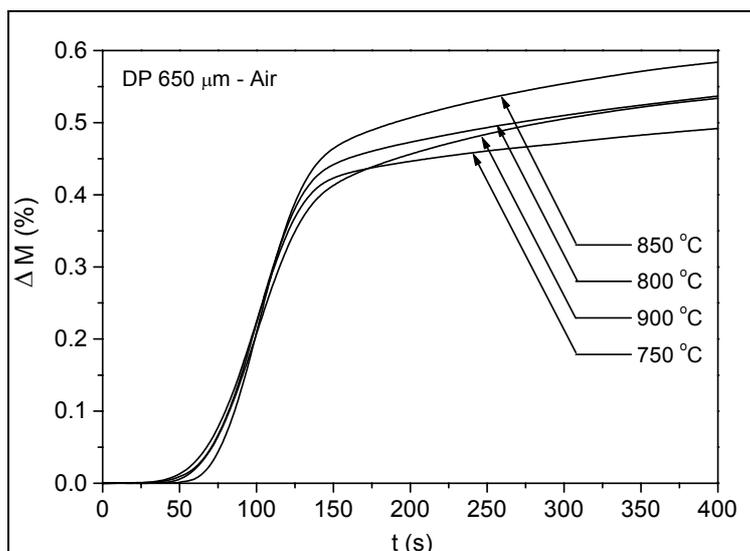


Figure 5. TG profiles of sulfation at various temperatures, for the 650 μm limestone DP, in air atmosphere. Each curve accounts for the average of three replicates.

Table 3. Decreasing rank of mass gain from Fig. (2) to Fig. (5).

Type of Limestone	Decreasing rank of mass gain
CI 545 μm – Air atmosphere	800 ≈ 850 > 750 > 900 °C
CI 545 μm – Nitrogen atmosphere	900 > 850 > 800 > 750 °C
CI 650 μm – Air atmosphere	800 > 850 ≈ 750 > 900 °C
DP 650 μm – Air atmosphere	850 > 800 > 900 > 750 °C

Table 4. Conversion for all the cases in Fig. (2) to Fig. (5), plus an additional case for the 545 μm limestone in air at 950 °C.

T (°C)	Conversion (%) $\left[ \frac{\text{mols of (Ca + Mg) reacted}}{\text{mols of (Ca + Mg) in the sample}} \times 100 \right]$			
	DP 650 μm - Air	CI 650 μm - Air	CI 545 μm - Air	CI 545 μm - N <sub>2</sub>
750	47.2	38.0	38.7	51.5
800	50.1	40.5	41.4	55.0
850	50.8	37.9	41.2	56.6
900	47.6	33.4	34.6	58.4
950	-	-	-	54.6

Comparing the results of limestone CI for the different particulate sizes in Tab. (4) and Tab. (5) and Fig. (6), it is seen that a higher conversion is found for the smaller particulate, as expected. For the smaller particulate a higher external superficial area is available for reaction, meaning that a larger volume of the particles is sulfated since the thickness of the sulfated layer is independent of particle size.

Regarding the type of sorbent, conversion resulted always higher for the limestone DP in comparison to the limestone CI of the same size, in all the temperatures. Besides chemical composition, the superior performance of limestone DP may be due to a more favorable structure of pores developed during calcination and/or sulfation. Those are aspects to be further investigated.

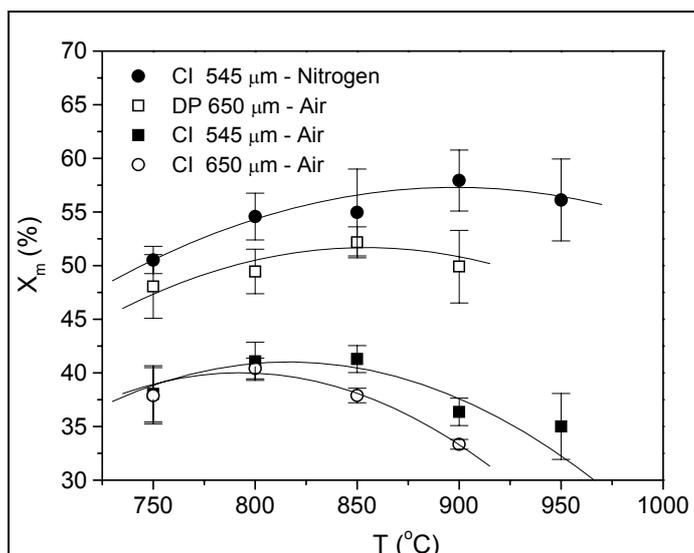


Figure 6. Conversion as a function of temperature for the various cases. The bars indicate the standard deviation around the average from the experiments. The full lines stand for polynomial fits.

Table 5. Maximum conversion temperatures from the polynomial fits of Fig (6).

Type of Limestone	Optimum Conversion Temperature
CI 545 μm – Nitrogen atmosphere	894 °C
DP 650 μm – Air atmosphere	859 °C
CI 545 μm – Air atmosphere	818 °C
CI 650 μm – Air Atmosphere	792 °C

### 3. 2. Kinetics

Figure (7) shows the Arrhenius plots for the various cases considered. In all the cases in air atmosphere, the reaction rate increases with temperature for temperatures up to 850 °C. Above 850 °C the reaction rate considerably drops, indicating either a change on reaction mechanism or sintering.

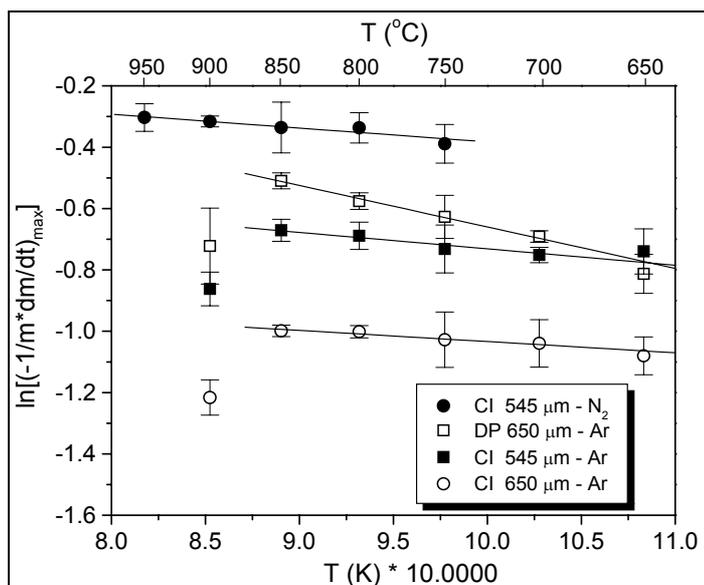


Figure 7. Arrhenius plots for the various cases considered. The bars indicate the standard deviation around the average from the experiments.

For the cases in air atmosphere, kinetic parameters were found for temperatures up to 850 °C. Additional experiments were performed at the temperatures of 650 and 700 °C to make the results more representative. Therefore, for the cases in air atmosphere the kinetic parameters stand for temperatures between 650 and 850 °C. For the case in nitrogen atmosphere the kinetic parameters stand for temperatures between 750 and 950 °C. For the various cases, the apparent activation energies and frequency factors result:

Limestone DP 650 µm in Air:

$$k_{\max}(T) = 1.997 \exp\left(-\frac{11.24}{RT}\right) \quad (24)$$

Limestone CI 650 µm in Air:

$$k_{\max}(T) = 0.5512 \exp\left(-\frac{3.03}{RT}\right) \quad (25)$$

Limestone CI 545 µm in Air:

$$k_{\max}(T) = 0.822 \exp\left(-\frac{4.45}{RT}\right) \quad (26)$$

Limestone CI 545 µm in N<sub>2</sub>:

$$k_{\max}(T) = 1.071 \exp\left(-\frac{3.75}{RT}\right) \quad (27)$$

In air atmosphere, limestone DP presented a frequency factor about 3.6 times higher than that of the limestone CI of the same size. So, limestone DP was more than 3 times more effective than limestone CI. Otherwise, the apparent activation energy for limestone DP resulted about 3.7 times higher than that of limestone CI. Then, limestone DP required more than 3 times more energy for the reaction to be deployed.

Changing the particulate size from 650 to 545 µm, for limestone CI in air atmosphere, caused both the frequency factor and the apparent activation energy to increase. So, the smaller size was more effective, while requiring more energy for the reaction to be deployed.

Changing the atmosphere from air to nitrogen, for the 545 µm limestone CI, caused the frequency factor to increase and the activation energy to decrease. So, in nitrogen atmosphere sulfation was more effective and required less energy to be deployed.

For the limestone CI the activation energies resulted between 3.03 and 4.45 kJ mol<sup>-1</sup>. This range is compatible with literature results for reaction controlled by Knudsen diffusion (around 4 kJ mol<sup>-1</sup> according to Fuertes et al., 1994). For the limestone DP the activation energy resulted 11.24 kJ mol<sup>-1</sup>. This value is compatible with literature results for reaction controlled by pore molecular diffusion (around 12 kJ mol<sup>-1</sup> according to Fuertes et al., 1994).

#### 4. Conclusions

The thermogravimetric sulfation experiments showed that conversion resulted always higher in nitrogen than in air atmosphere, irrespective of temperature. Different reaction mechanisms were supposed to account for that. Smaller particles improved conversion by providing larger superficial areas. The calcitic limestone CI provided better conversion than the dolomitic limestone DP. This may be attributed to different chemical compositions, besides different pore structures developed during calcination and/or sulfation. For both the limestones, in all the tested conditions, conversion started to drop above a given temperature, possibly due to sintering.

The kinetic analysis showed that, in comparison to limestone CI, limestone DP presented higher frequency factor and higher apparent activation energy. A smaller particulate size for the limestone CI caused both frequency factor and apparent activation energy to increase. Also for limestone CI, changing the atmosphere from air to nitrogen caused the frequency factor to increase and the apparent activation energy to decrease. Considering the order of magnitude of the apparent activation energies, it was concluded that the sulfation of limestone CI was controlled by Knudsen diffusion, while the sulfation of the limestone DP was controlled by pore molecular diffusion.

## 5. Acknowledgement

This work was supported by The State of São Paulo Research Foundation (FAPESP) and The National Council for Scientific and Technological Development (CNPq).

## 6. Reference list

- Adánez, J., García-Labiano, F. and Gayán, P., 1993, "Sulfur retention in AFBC. Modelling and sorbent characterization methods", *Fuel Processing Technology*, No. 36, pp. 73-79.
- Anthony, E. J. and Granatstein, D. L., 2001, "Sulfation phenomena in fluidized bed combustion systems", *Progress in Energy and Combustion Science*, No. 27, pp. 215-236.
- Borgwardt, R. H., 1985, "Calcination kinetics and surface area of dispersed limestone particles", *AIChE*, Vol. 31, No.1, pp. 103-111.
- Borgwardt, R. H. and Bruce, K. R., 1986, "Effect of specific surface area on the reactivity of CaO with SO<sub>2</sub>", *AIChE J.*, Vol. 32, pp. 239-246.
- Borgwardt, R. H. and Harvey, R. D., 1972, "Properties of carbonate rocks to SO<sub>2</sub> reactivity", *Env. Sc. Tech.*, No. 6, pp. 350-360.
- Braun, R. L. and Burnham, A., 1987, *K. Energy & Fuels*, No. 1, pp. 153-161. (apud Burnham and Braun, 1999)
- Costa, M. C. D., 2000, "Efeito da temperatura sobre a conversão e o coeficiente de taxa de reação na absorção de SO<sub>2</sub> por calcário em reator de leito fluidizado", *Dissertação de Mestrado, EESC-USP*, 174 p.
- Crnkovic, P. C. G. M., 2003, "Análise termogravimétrica para a determinação de fatores que afetam a eficiência de sorção de SO<sub>2</sub> por calcários na combustão de carvões", *Tese de Doutorado, IQSC-USP*, 127 p.
- Crnkovic, P. M., Milioli, F. E. and Pagliuso, J. D., 2006, "Kinetics study of the SO<sub>2</sub> sorption by Brazilian dolomite using thermogravimetry", *Thermochimica Acta* (accepted for publication).
- Dam-Johansen, K. and Ostergaard, K., 1991, "High-temperature reaction between sulphur dioxide and limestone – I. Comparison of limestones in two laboratory reactors and a pilot plant", *Chemical Engineering Science*, No. 46, No. 3, pp. 827-837.
- Dam-Johansen, K. and Ostergaard, K., 1991, "High-temperature reaction between sulphur dioxide and limestone – II. An improved experimental basis for a mathematical model", *Chemical Engineering Science*, Vol. 46, No.3, pp. 839-845.
- Dam-Johansen, K. and Ostergaard, K., 1991, "High-temperature reaction between sulphur dioxide and limestone – III. A grain-micrograin model and its verification", *Chemical Engineering Science*, Vol. 46, No. 3, pp. 847-853.
- Dam-Johansen, K. and Ostergaard, K., 1991, "High-temperature reaction between sulphur dioxide and limestone – IV. A discussion of chemical reaction mechanisms and kinetics", *Chemical Engineering Science*, Vol. 46, No. 3, pp. 855-859.
- Dennis, S. and Hayhurst, A.N., 1990, "Mechanism of the sulphation of calcined limestone particles in combustion gases", *Chemical Engineering Science*, No. 45, pp. 1175-1187.
- Fuertes, A. B., Velasco, G., Fuente, E. and Alvarez, T., 1994, "Study of the direct sulfation of limestone particles at high CO<sub>2</sub> partial pressures", *Fuel Processing Technology*, Vol. 38, pp. 181-192.
- Hajaligol, M. R., Longwell, J. P. and Sarofim, A. F., 1988, "Analysis and modelling of the direct sulfation of CaCO<sub>3</sub>", *Ind. Eng. Chem. Res.*, No. 27, pp. 2203-2210.
- Hartman, M. and Coughlin, R. W., 1976, "Reaction of sulfur dioxide with limestone and the grain model", *AIChE J.*, Vol. 22, No. 3, pp. 490-498.
- Iisa, K. and Hupa, M., 1992, "Rate-limiting processes for the desulphurisation reaction at elevated pressures", *J. Inst. Energy*, No. 65, pp. 201-205.
- James and Hughes, 1976, paper presented at 2nd. Int. Conf. on Conf. of Gaseous Sulphur and Nitrogen Compound Emission, Salford (1979), apud Van Houte and Delmon (1979).
- Levenspiel, O., 1972, "Chemical reaction engineering", John Wiley & Sons, NY.
- Li, Y. and Sadakata, M., 1999, "Study of gypsum formation of appropriate dry desulfurization process of flue gas", *Fuel*, No. 78, pp. 1089-1095.
- Lindo, J. E. S., 2003, "Efeito da concentração de SO<sub>2</sub> nas reações de calcinação e sulfatação de calcários em reator de leito fluidizado", *Dissertação de Mestrado, EESC-USP*, 116 p.
- Moss, G., 1975, "The mechanism of sulphur absorption in fluidized beds of lime", *Institute of Fuel Symposium Series*, No. 1: Fluidised Combustion, D2.
- Pigford, R. and Slinger, G., 1973, Rate of diffusion-controlled reaction between a gas and a porous solid sphere- reaction of SO<sub>2</sub> with CaCO<sub>3</sub>", *Ind. Eng. Chem. Process Des. Develop*, Vo. 12-1, pp. 85-91.
- Silva, G. F. da, 2001, "Efeito do tamanho de partículas na conversão e no coeficiente global de taxa de reação na absorção de SO<sub>2</sub> por calcário em reator de leito fluidizado", *Dissertação de Mestrado, EESC-USP*, 106 p.
- Simons, G. A., Garman, A. R. and Boni, A. A., 1987, "The kinetic rate of SO<sub>2</sub> sorption by CaO", *Am. Inst. Chem. Eng. J.*, Vol. 33, No. 2, pp. 211-217.

- Snow, M. J. H., Longwell, J. P. and Sarofim, A. F., 1988, "Direct sulfation of calcium carbonate", *Ind. Eng. Chem. Res.*, No. 27, pp. 268-273.
- Tullin, C., Nyman, G. and Ghardashkhani, S., 1993, "Direct sulfation of CaCO<sub>3</sub>: the influence of CO<sub>2</sub> partial pressure", *Energy Fuel*, No. 7, pp. 512-519.
- Van Houte, G. and Delmon, B., 1979, "Kinetics of reaction of CaCO<sub>3</sub> with SO<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> below 650 °C", *J. Chem. Soc. Faraday Trans. I.*, No. 75, pp. 1593-1605.
- Yrjas, P., Iisa, K. and Hupa, M., 1995, "Comparison of SO<sub>2</sub> capture capacities of limestones and dolomites under pressure", *Fuel*, Vol. 74-3, pp. 395-400.

## **6. Copyright Notice**

The authors are the only responsible for the printed material included in his paper.

## EMISSÕES POLUENTES NA COMBUSTÃO DO CARVÃO MINERAL CE4500 EM REATOR DE LEITO FLUIDIZADO ATMOSFÉRICO BORBULHANTE

### Manoel Carlos Diniz Costa

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São carlense, n°. 400, 13566-590, São Carlos – SP, Brasil  
mcdcosta@petrobras.com.br

### Julio Edgardo Lindo Samaniego

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São carlense, n°. 400, 13566-590, São Carlos – SP, Brasil  
jelindo@sc.usp.br

### Fernando Eduardo Milioli

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São carlense, n°. 400, 13566-590, São Carlos – SP, Brasil  
milioli@sc.usp.br

### Josmar Davison Pagliuso

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São carlense, n°. 400, 13566-590, São Carlos – SP, Brasil  
josmar@sc.usp.br

**Resumo.** Avaliou-se as emissões dos gases poluentes  $SO_2$ ,  $CO_2$ ,  $CO$  e  $NO_x$  na combustão do carvão com absorção de  $SO_2$  por calcário na planta piloto para combustão em leito fluidizado atmosférico borbulhante do NETeF. Utilizou-se um carvão mineral CE4500 (Carvão Energético com poder calorífico superior médio de 4500 kcal/kg) procedente da região de Criciúma - SC, com 2,3% de enxofre, 31,6% de cinzas, e diâmetro médio de particulado de 425  $\mu m$ . Utilizou-se o calcário dolomítico DP procedente de Ipeúna - SP, com 16,2% de cálcio, 10,1% de magnésio, e diâmetro médio de particulado de 400  $\mu m$ . A planta piloto tem reator de seção transversal quadrada de 0,5 x 0,5 m, e nele foram controlados o excesso de ar, a velocidade de fluidização ( $U/U_{mf}$ ), a granulometria do particulado e a temperatura do processo. A variável principal de análise foi a relação Ca/S de alimentação; empregou-se relações Ca/S de 2, 3, 4 e 5, a uma temperatura do leito em torno de 850 °C. Foram medidas as concentrações de gases na descarga do reator ( $SO_2$ ,  $O_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$  e  $NO_x$ ), e foram determinadas distribuições granulométricas e composições químicas dos materiais do leito, sangrado e elutriado. Determinou-se conversão, taxa de conversão e coeficiente global de taxa de reação na sulfatação para os vários casos. As emissões de  $SO_2$  caíram de forma assintótica com o aumento da relação Ca/S de alimentação. Um aumento de Ca/S de 3 para 5 (67%) produziu um ganho na eficiência de absorção entre 4 e 21 %. Observou-se que as emissões de  $NO_x$  cresceram levemente com o aumento da relação Ca/S de alimentação. Isto está em acordo com a literatura, que atribui este fato ao efeito catalisador do CaO na geração de  $NO_x$  via redução por CO.

*Palavras chave:* Carvão, calcário, leito fluidizado, dióxido de enxofre.

## 1. Introdução

Devido às freqüentes oscilações econômicas internacionais, existe uma necessidade para desenvolvimento de técnicas visando um melhor aproveitamento dos potenciais energéticos disponíveis. O carvão mineral nacional pode ser uma alternativa importante para a solução do problema energético do Brasil, representando mais de 60% das reservas energéticas não renováveis conhecidas do país. Entretanto, existe um problema já conhecido na utilização do carvão nacional. Os carvões brasileiros podem ser classificados como betuminosos e sub-betuminosos com altos teores de cinzas e enxofre mostrando características de difícil operacionalidade, gerando problemas de aplicabilidade econômica e resultados pouco eficazes.

Para a utilização do carvão mineral nacional emprega-se técnicas para seu beneficiamento com o objetivo de reduzir drasticamente esses teores. A combustão em suspensão é o método empregado para a queima do carvão (Costa, 2005; Da Silva Filho, 2002 e Tureso, 2004).

### 1.2 Combustão em leito fluidizado

A partir dos anos 50 na França e depois no anos 60 no Reino Unido aparecem nova tecnologia de queima em

suspensão como alternativa ao processo de queima de carvão pulverizado, ganhando impulso as pesquisas relativas à combustão do carvão em leito fluidizado. O processo de combustão em leito fluidizado é particularmente adequado para esses carvões devido à possibilidade de controle “*in loco*” de emissões de gases poluentes e devido à não fusão de cinzas. O enxofre liberado na combustão é continuamente absorvido por aditivos calcários, com índices de remoção superiores a 90 %, sendo que as cinzas de carvão e o calcário sulfatado que são descartados no processo, podem ser aproveitados como insumos na indústria do cimento (Costa, 2005; Crnkovic, 2003 e Michels, 2004).

No Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos (NETeF) da Escola de Engenharia de São Carlos (EESC), da Universidade de São Paulo (USP), encontra-se em andamento um extenso programa de pesquisa na área de energia. Espera-se contribuir na utilização racional dos carvões minerais brasileiros para a geração termoelétrica, com enfoque principalmente na contenção de emissões poluentes.

Neste trabalho apresenta-se uma planta piloto para combustão de carvão mineral. O combustor é de leito fluidizado borbulhante atmosférico e a ênfase dos trabalhos é na redução da emissão de poluentes atmosféricos. Determinou-se a redução nas emissões de SO<sub>2</sub> para relações Ca/S de 1,2,3 e 4. Também foram avaliadas as emissões de CO<sub>2</sub>, CO, NO<sub>x</sub>, O<sub>2</sub> e as quantidades de cinzas e particulado elutriado durante nos gases de descarga

## 2. Processo de absorção do SO<sub>2</sub> pelo calcário no interior do leito fluidizado

O processo de absorção do SO<sub>2</sub> no interior do leito fluidizado pode ser descrito pela calcinação e sulfatação do calcário. As reações de calcinação e sulfatação podem ser representadas de forma geral pelas Eqs. (1) e (2) respectivamente. Ao adentrar o leito, o calcário calcina formando o sólido óxido de cálcio (CaO) com a liberação do dióxido de carbono (CO<sub>2</sub>). O CaO reage com SO<sub>2</sub>, liberado na combustão do carvão, formando o sólido sulfato de cálcio (CaSO<sub>4</sub>) (Dennis, 1987; Dennis, 1990 e Moss, 1980).



O mecanismo de sulfatação é controlado basicamente pela difusão de SO<sub>2</sub> na emulsão, que se pode descrever como a difusão do SO<sub>2</sub> através de poros das camadas reagidas de sulfato de cálcio (CaSO<sub>4</sub>), e pela cinética das reações químicas envolvidas.

Para temperaturas abaixo de 865 °C todas as reações do processo de desulfuração por calcário desenvolvem de forma significativa. Para baixas temperaturas a cinética das reações químicas controla a reação e em temperaturas mais elevadas, o controle da reação é dado pela difusão na fase sólida (Dennis, 1990).

Num reator de leito fluidizado, estes fatores dependem, em maior ou menor intensidade: do tipo, tamanho e distribuição granulométrica de partículas de calcário; de suas propriedades físicas e químicas; da temperatura e pressão de operação do processo; da atmosfera da reação; do tipo de combustível; do processo de combustão; da geometria do reator e da velocidade superficial de fluidização (Costa, 2005; Crnkovic, 2003; Da Silva, 2003 e Samaniego, 2003).

As variáveis mais importantes que afetam a formação de SO<sub>2</sub> são: relação Ca/S que é alimentado no leito; temperatura do leito; tipo de calcário; diâmetro da partícula; concentração do O<sub>2</sub> no leito e quantidades do S geradas no processo de combustão (Henttonen, 1991). Quando a temperatura do leito é muito alta (acima de 900 °C) pode ocorrer re-missão de SO<sub>2</sub> do calcário sulfatado, sendo então lançado na atmosfera (Michels Jr., 2004). Para alta concentração de O<sub>2</sub> no leito, incrementa-se a captura do enxofre, uma vez que o O<sub>2</sub> é necessário para o processo de sulfatação. Carvão e óleos combustíveis são os que contribuem mais na emissão de SO<sub>2</sub> (Henttonen, 1991).

Para emissões de óxidos de nitrogênio (NO<sub>x</sub>) a variável mais importante são: razão de ar primário/ar secundário; excesso de ar; temperatura do leito e quantidade de N no combustível (Henttonen, 1991).

Empregando-se condições típicas de combustão fluidizada (850-995 °C) à pressão atmosférica ou altas pressões (18 bar) o processo de calcinação de calcário, com diâmetro entre 0,4 e 2,0 mm, é controlada pela cinética da reação química numa interface bem definida entre a camada externa de CaO e o núcleo de CaCO<sub>3</sub> (Dennis, 2002).

Para temperatura acima de 520°C a geração de CaS se torna significativa, seguindo a reação global de sulfatação. Em temperaturas mais elevadas, o CaS reage com o SO<sub>2</sub> para formar S<sub>2</sub> e CaSO<sub>4</sub>, e o CaSO<sub>3</sub> decompõe-se para formar CaS e CaSO<sub>4</sub>. Essa decomposição provavelmente envolve etapas intermediárias e a geração de espécies descritas pela fórmula geral S<sub>y</sub>O<sub>x</sub><sup>n-</sup> (Dennis, 2002).

## 3. Planta experimental e procedimento

### 3.1. Planta experimental

Na Figura 1 apresenta-se o esquema do reator de leito fluidizado borbulhante atmosférico em escala piloto. O reator piloto é composto por cinco seções, e está montada na área interna do NETeF. O módulo inferior do reator foi construído em aço inoxidável 304, resistente a altas temperaturas. Possui seção quadrada com lado interno medindo 0,5 m, com espessura de parede de 0,005 m, e altura total de 3 m. No módulo do leito existem oito tomadas para sondas de temperatura e pressão, e oito tomadas para sondas de amostragem de gases. Os outros módulos do reator constituem

o “freeboard” e são construídos de aço carbono. Cada módulo do “freeboard” possui 3 tomadas para sondas de pressão, temperatura ou amostragem de gases. O reator possui um “plenum” por onde o ar de fluidização é admitido e em seguida é introduzido no leito através de uma placa de injetores do tipo torre. Esses injetores permitem a manutenção de uma camada de sólido inerte acima da placa, que fica isolada eliminando a necessidade do resfriamento da mesma. O distribuidor além do ar de fluidização, permite a injeção de gás combustível para pré-aquecimento do leito através de uma bateria de agulhas inseridas nos injetores. O carvão e o calcário são armazenados em silos com capacidade de até 500 kg, e são alimentados por gravidade através de válvulas rotativas em pontos laterais no primeiro módulo do “freeboard”. Os silos de alimentação têm ângulo de alimentação favorável. Os recipientes de cinzas são vedados para inibir reações químicas e entrada/saída de ar do reator. Para retenção de material particulado nos gases de descarga foi utilizado um filtro de mangas. O reator também dispõe de torres de resfriamento de água, balões de ar comprimido e ventiladores especiais para fornecimento de ar de fluidização e arrefecimento dos motores das válvulas rotativas. Para medição contínua dos gases de escape utilizou-se analisadores de gases HORIBA para CO<sub>2</sub>, CO, NO<sub>x</sub>, O<sub>2</sub> e SO<sub>2</sub>. As temperaturas foram medidas por um termopar tipo K inserido dentro do leito. O termopar embora protegido da erosão do leito estava sobre as condições atmosféricas de combustão. As velocidades de fluidização eram medidas por placa de orifício de canto vivo.

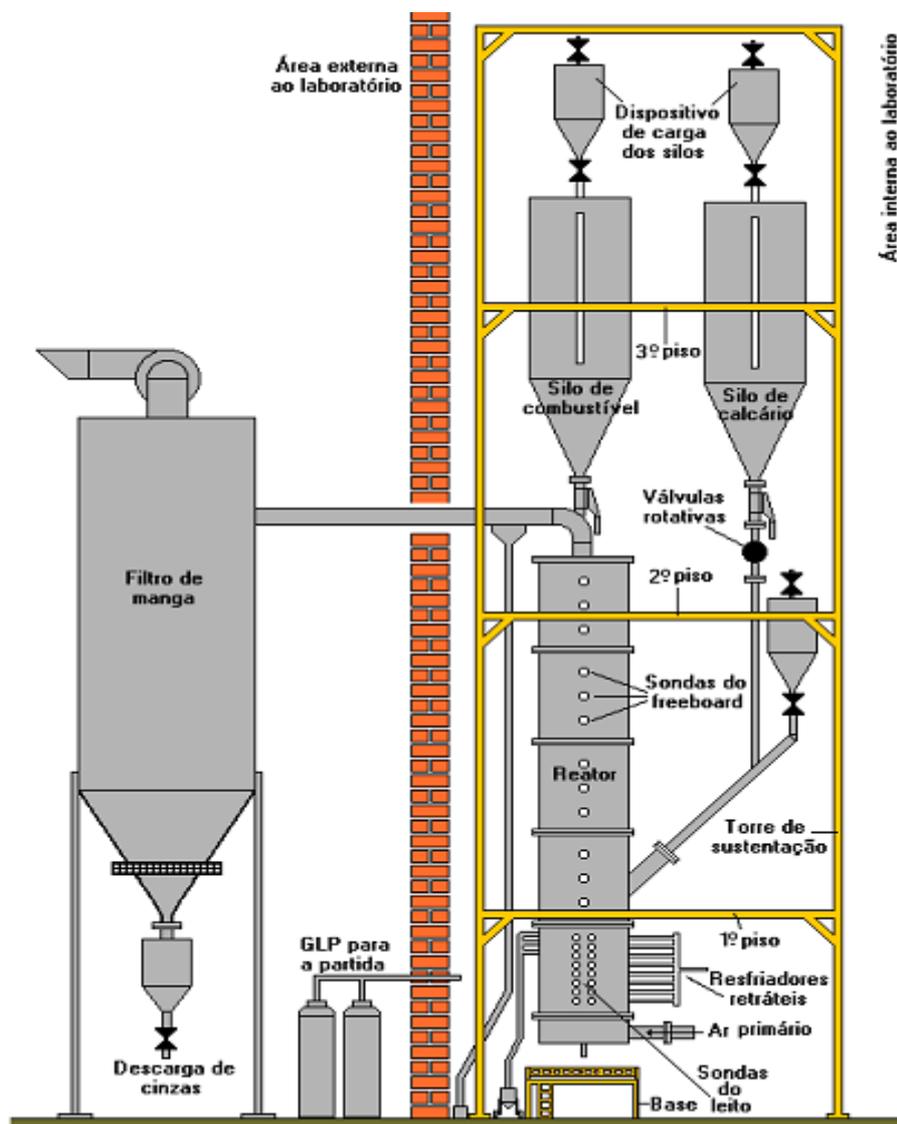


Figura 1: Esquema da planta piloto para combustão de carvão em leito fluidizado borbulhante

### 3.2. Procedimento

O reator foi carregado com cerca de 100 kg de areia (99% sílica) de 500 µm de diâmetro médio. A composição química do carvão mineral CE-4500 de diâmetro médio de particulado de 425 µm e do calcário dolomítico de Ipeuna de

diâmetro médio de particulado de 400  $\mu\text{m}$ , são apresentados na tabela 1 e tabela 2

Tabela 1 – Composição do carvão CE-4500

Carvão	C	S	Voláteis	Cinzas
%	40	2,3	25,6	31,6

Tabela 2 – Composição do calcário Dolomítico

Calcário	Ca	Mg
%	16,2	10,1

O aquecimento do leito foi realizado com gás liquefeito de petróleo (GLP) até cerca de 700 °C. Neste ponto, com leito fluidizado com  $U=0,35$  m/s, a alimentação de gás foi cortada e iniciada a alimentação de carvão mineral. Procedeu-se as devidas ajustagens até que o reator atingiu a condição de regime, ou seja,  $T=870$  °C;  $U=0,60$  m/s e alimentação mássica do carvão de 23 kg/h, tendo para elutriação e drenagem do leito igual a 6,1 e 13,0 kg/h, respectivamente.

As condições experimentais de cada teste são apresentadas na tabela 3.

Tabela 3 – Condições operacional da Planta Piloto

Temperatura do leito	811 a 886 °C (em média 850 °C)
Velocidade de fluidização	0,56 a 0,60 m/s
Velocidades de fluidização/ de mínima fluidização	9,1 a 9,8
Granulometria do calcário	400 $\mu\text{m}$ (média)
Granulometria do carvão	425 $\mu\text{m}$ (média)
Taxa de alimentação de calcário	1,15 a 5,55 g/s
Taxa de alimentação de carvão	6,37 a 7,66 g/s

A seguinte simbologia é utilizada nas equações abaixo:

$A$	Área da seção transversal do leito fluidizado, $m^2$
$F$	Taxa de alimentação de carvão ou calcário no reator de leito fluidizado, $kg/s$
$K$	Coefficiente global de taxa de sulfatação ou de combustão, $m/s$
$M$	Massa de calcário ou carvão no reator em regime permanente de operação, $kg$
$r$	Radio de partícula, $m$
$R$	Taxa de absorção de $SO_2$ por calcário, $kmol_{SO_2}/s$
$U$	Velocidade superficial de fluidização, $m/s$
$W$	Peso molecular, $kg/kmol$
$X$	Conversão na absorção de $SO_2$ , $kmol_{SO_2}/kmol_{Ca+Mg}$
$Y$	Fração volumétrica de gás ( $m_i^3 / m^3$ ) ou mássica de sólido, ( $kg_i/kg$ )
$Y_{SO_2}^A$	Fração em volume de $SO_2$ na descarga da planta com injeção de calcário, $adm$
$Y_{SO_2}^C$	Fração em volume de $SO_2$ na descarga da planta sem injeção de calcário, $adm$
$\rho$	Massa específica, $kg/m^3$

Definiu-se conversão na sulfatação,  $X_s$ , como a razão entre a taxa molar de  $SO_2$  absorvido e a taxa molar de alimentação de Ca+Mg no calcário. Através de balanços de massa no reator para  $SO_2$ , determina-se:

$$X = \frac{U \cdot A \cdot (Y_{SO_2}^C - Y_{SO_2}^A) \cdot \frac{\rho_{SO_2}}{W_{SO_2}}}{F_A \cdot \left( \frac{Y_{Ca}}{W_{Ca}} + \frac{Y_{Mg}}{W_{Mg}} \right)} \quad (3)$$

Para um estado termodinâmico, no leito executam-se reações heterogêneas, sendo estas dependentes da concentração do gás reagente ( $SO_2$  na sulfatação) e da massa do sólido reagente. Assumindo-se que o transporte de massa no gás em torno das partículas reativas do leito seja basicamente difusivo, então a taxa de absorção de  $SO_2$  no leito resulta:

$$R_{SO_2} = \frac{3M_A}{\rho_A r} K_S Y_{SO_2, \infty} \frac{\rho_{SO_2}}{W_{SO_2}} \quad (4)$$

Onde os coeficientes globais de taxa de reação são dados, respectivamente, por

$$K = \frac{\rho_A \cdot r}{3 \cdot M_A} \cdot U \cdot A \cdot \frac{(Y_{SO_2}^C - Y_{SO_2}^A)}{Y_{SO_2, \infty}} \quad (5)$$

Considerando o leito fluidizado bem misturado e toda a absorção ocorrendo no leito, então:  $Y_{SO_2, \infty} \rightarrow Y_{SO_2}^A$  [5].

Em processos de regime permanente de operação para diferentes relações Ca/S de alimentação e excessos de ar, mediu-se concentrações de descarga de SO<sub>2</sub>, A eficiência de remoção de SO<sub>2</sub> foi determinada por:

$$\eta_{SO_2} = \frac{(Y_{SO_2}^C - Y_{SO_2}^A)}{Y_{SO_2}^C} \cdot 100 \quad (6)$$

#### 4. Resultados e discussão

Os resultados das emissões de gases são apresentados nas Figs. de 2 a 7. Nos testes de combustão de carvão com injeção de calcário no reator de leito fluidizado Piloto do NETeF empregou-se relações molares de Ca/S na faixa de 1 a 4. Observa-se que o volume molar do sulfato de cálcio (CaSO<sub>4</sub>) é maior comparado que volume molar do carbonato de cálcio (CaCO<sub>3</sub>), sendo que a absorção completa do SO<sub>2</sub> pelo calcário é praticamente impossível, ocorrendo a sulfatação preferencialmente na camada exterior do particulado CaO (Tarelho, 2005). Na Fig. 2 nota-se a redução do SO<sub>2</sub> com o aumento de Ca/S, caindo a emissão de SO<sub>2</sub> de forma assintótica. O resultado alcançado para uma relação de Ca/S igual a 2, é considerado bom do ponto de vista econômico, pois experimentalmente representa um consumo de calcário de 35,4 % da alimentação de carvão (Costa, 2005 e Tureso, 2004).

Observa-se na Fig. 3, que as emissões de NO<sub>x</sub> crescem levemente com o aumento da relação Ca/S de alimentação. Isto está em acordo com a literatura, que atribui este fato ao efeito catalisador do CaO na geração de NO<sub>x</sub> via redução por CO (Amand, 1993; Amand, 1994; Dam-Johansen, 1993; Hansen, 1992 e Tarelho, 2006). Os teores de O<sub>2</sub> mostrado na Fig. 4 resultaram em torno de 3,5 %. As emissões de CO<sub>2</sub> crescem com o aumento da relação Ca/S devido à calcinação mais intensa e possivelmente também devido à crescente utilização de CO na redução do NO<sub>x</sub> catalisada pelo CaO. Isto é mostrado na Fig. 6, onde o valores aumentaram a partir de 15 % (para relação de Ca/S=0) até cerca de 17 % (para relação Ca/S=4). Este aumento observado foi devido ao processo de calcinação do calcário que libera CO<sub>2</sub>.

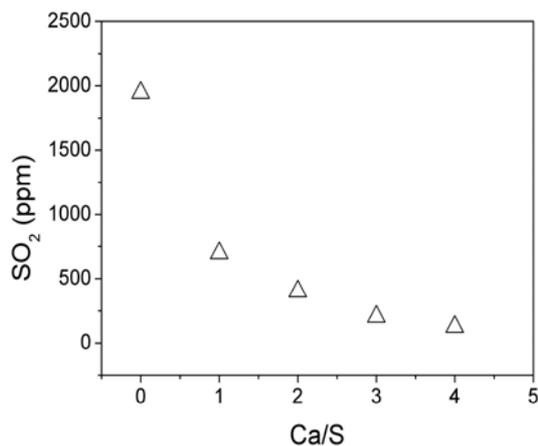


Figura 2. Fração de SO<sub>2</sub> na descarga em função da relação de Ca/S de alimentação, para a planta piloto.

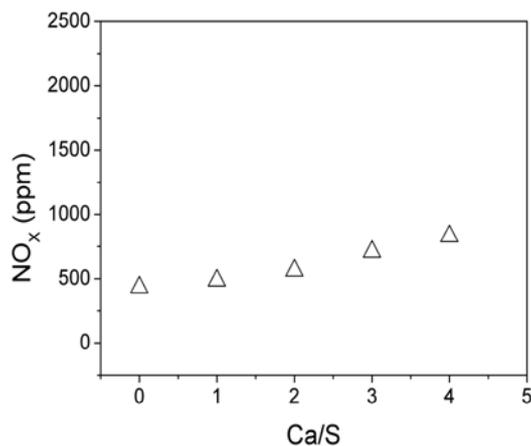


Figura 3. Fração de NO<sub>x</sub> na descarga em função da relação Ca/S de alimentação, para planta piloto

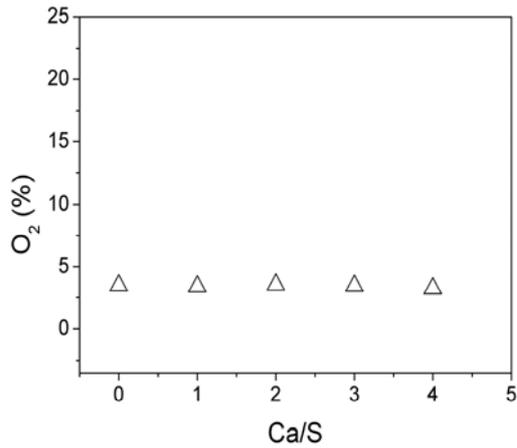


Figura 4. Fração de O<sub>2</sub> na descarga em função da relação de Ca/S de alimentação, para a planta piloto.

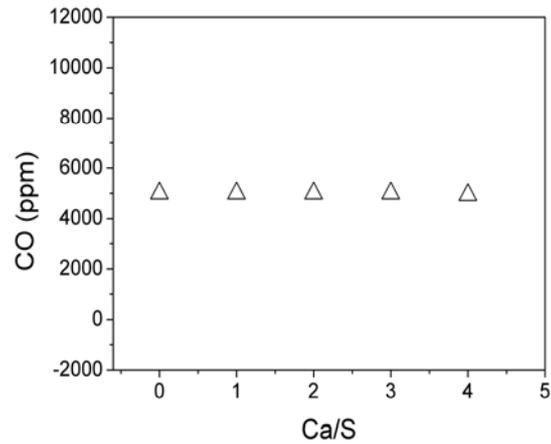


Figura 5. Fração de CO na descarga em função da relação Ca/S de alimentação, para a planta piloto.

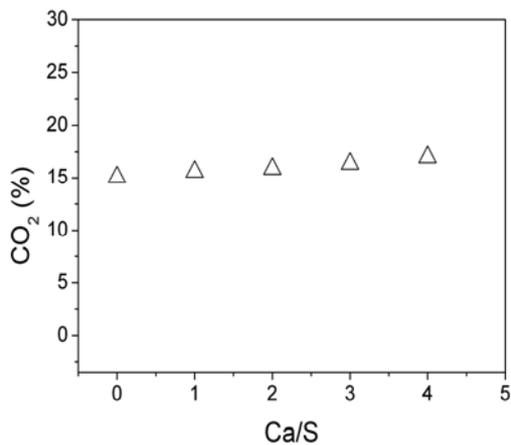


Figura 6. Fração de CO<sub>2</sub> na descarga em função da relação de Ca/S de alimentação, para a planta piloto.

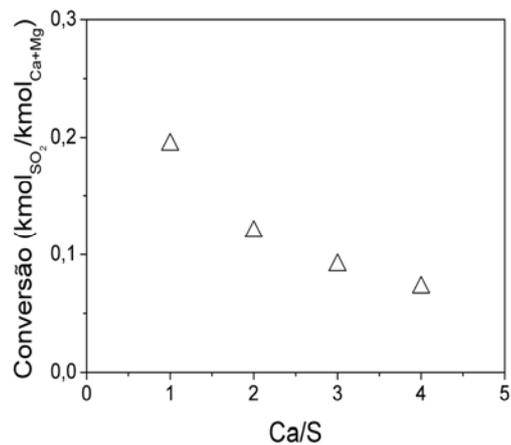


Figura 7. Conversão na absorção de SO<sub>2</sub> por calcário em função da relação Ca/S de alimentação, para a Planta.

Na combustão de carvão sem injeção de calcário obteve-se conversões entre 83 a 86 %. Isto é observado na Fig. 7.

Em ambos os casos as perdas devem-se a “*overflow*” de particulado para manutenção da altura do leito e à elutriação de particulado.

Na Figura 8, o coeficiente global de taxa de sulfatação aumentou em função do aumento da relação Ca/S na alimentação, sendo um aumento moderado. Este mesmo comportamento é observado na Fig. 9 com relação a eficiência de absorção de SO<sub>2</sub>.

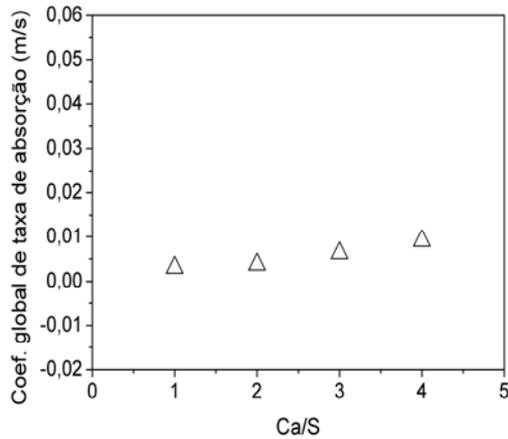


Figura 8. Coeficiente global de taxa de reação na absorção de SO<sub>2</sub> por calcário em função da relação Ca/S de alimentação, para a planta piloto.

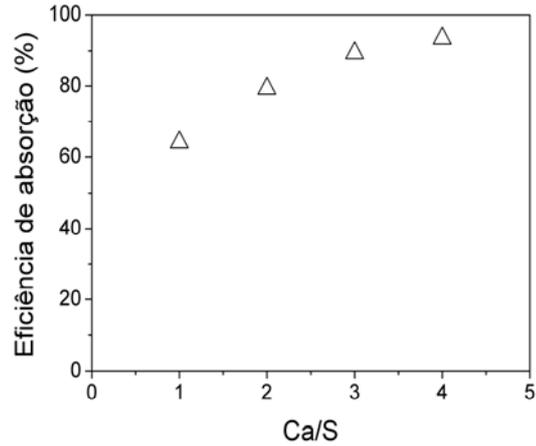


Figura 9. Eficiência de absorção de SO<sub>2</sub> por calcário em função da relação Ca/S de alimentação, para a planta piloto.

Na Tabela 2 apresenta-se o resumo dos resultados obtidos nos testes.

Tabela 2 – Resumo dos resultados obtidos na Planta Piloto

	CaS0C64L00	CaS1C64L11	CaS2C64L23	CaS3C64L35	CaS4C64L46
Ca/S	0	1	2	3	4
SO <sub>2</sub> (ppm)	1946	698	402	206	126
NO <sub>x</sub> (ppm)	432	487	563	709	831
CO (ppm)	4996	4995	4996	4996	4934
CO <sub>2</sub> (%)	15,07	15,60	15,87	16,37	16,99
O <sub>2</sub> (%)	3,48	3,39	3,54	3,45	3,24
X	0,00	0,194	0,120	0,091	0,072
K (m/S)	0,00	0,0031	0,0038	0,0063	0,0091
Abs_SO <sub>2</sub>	0,00	64,1	79,3	89,4	93,5

Observa-se que a nomenclatura utilizada nos testes apresentada na Tab. 2 é dado o seguinte significado, por exemplo: CaS1C64L11 como sendo: CaS1 é relação Ca/S=1; a taxa de alimentação de carvão C059= 0,59 g/s e a taxa de alimentação de calcário L022=0,22g/s.

#### 4. Conclusões

A planta piloto operou em condição de regime praticamente permanente. A relação Ca/S como já era esperado, apresentou efeito significativo no processo de absorção de SO<sub>2</sub> por calcário, principalmente para relações de Ca/S entre 0 e 2 e relações de Ca/S entre 0 e 3, cuja redução na concentração de SO<sub>2</sub> chega a 79 e 85 %, respectivamente. Comparando-se a relação Ca/S de 0 a 4, embora apresente redução de 89 % de SO<sub>2</sub>, o acréscimo na redução é de apenas quatro pontos percentuais entre os níveis 3 e 4.

O aumento na concentração de CO<sub>2</sub> foi devido ao processo de calcinação do calcário foi relativamente baixo, considerando-se uma relação de Ca/S igual a 2.

Foi significativo o aumento da concentração de NO<sub>x</sub>, devido ao componente do calcário que ajuda na formação de NO<sub>x</sub>.

A conversão diminuiu com o aumento da relação Ca/S devido à maior quantidade de massa de calcário no leito. As perdas devem-se a “*overflow*” do particulado para manutenção da altura do leito, e à elutriação de particulado.

O coeficiente global de taxa de reação aumentou com aumento da relação Ca/S, pois a taxa de reação é diretamente proporcional à massa de calcário que se encontra no leito e à relação entre as concentrações inicial e final de SO<sub>2</sub>.

## 5. Referências

- Amand L-E, Leckner B, Dam-Johansen. *Fuel* 1993;72(4):557.
- Amand L-E, PhD Thesis. Chalmers University of Technology, Sweden; 1994.
- Camargo, F.L. ,2001. Qualificação de Calcário Brasileiro Quanto à Absorção de SO<sub>2</sub> em Leito Fluidizado para Condições Típicas de Combustão de Carvão. Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos, 131 p.
- Costa, M.C.D. ,2000. Efeito da Temperatura sobre a Conversão e o Coeficiente Global de Taxa de Reação na Absorção de SO<sub>2</sub> por Calcário em Reator de Leito Fluidizado. Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos,
- Costa, M. C. D. ,2005. Emissões poluentes na combustão em leito fluidizado de carvão mineral. Tese de Doutorado, Universidade de São Paulo, Escola de engenharia de São Carlos, 114p.
- Crnkovic, P.C.G.M. (2003). Análise Termogravimétrica para a Determinação de Fatores que afetam a Eficiência de Sorção de SO<sub>2</sub> por Calcário na Combustão de Carvões. Tese de Doutorado, Universidade de São Paulo, Instituto de Química de São Carlos, 127p.
- Dam-Johansen K, Amand L-E, Leckner B. *Fuel* 1993; 72(4):565.
- Da Silva, F.F. ,2003. Efeito da Distribuição Granulométrica do Calcário na Absorção de SO<sub>2</sub> em Reator de Leito Fluidizado. Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos,114p.
- Da Silva, G.F. ,2001. Efeito de Granulometria de Calcário Sobre a Conversão e o Coeficiente Global de Taxa de Reação na Absorção de SO<sub>2</sub> em Reator de Leito Fluidizado. Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos, 140 p.
- Da Silva Filho, C.G. ,2002. Estudo Cinético-Químico na Isotérmico e Caracterização da Combustão de um Carvão CE4500. Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos, 63p.
- Dennis, J. S. And Hayhurst, A. N., The Effect of CO<sub>2</sub> on the Kinetics and Extent of Calcination of Limestone and Dolomite Particles in Fluidised Beds, *Chemical Engineering Science*, 42(1987) 2361-2372.
- Dennis, J.F. and Hayhurst, A.N. ,1990. "Mechanism of the Sulphation of Calcined Limestone Particles in Combustion Gases". *Chemical Engineering Science*, Vol. 45, No 5, p. 1187-1990.
- Hansen PFB, Dam-Johansen K, Johnsson JE, Hulgaard T. *Chem Eng Sci* 1992; 47(9-11):2419.
- Henttonen, J. , Kojo, I.V. and Kortela, U., 1991.Optimising Control of NO<sub>x</sub> and SO<sub>2</sub> emissions in the FBC process. This paper was present at the conference on Fluidised Bed Combustion, London, December 1991.
- Howard, J.R. 1989. Fluidized bed technology: principles and applications. New York, Adam Hilger, 214 p.
- Klaus, S., Winfried, W., Gerd, R. and Karl, S., 1989. Spatial distributions of O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> and SO<sub>2</sub> in a pilot-scale fluidized bed combustor operated with different coals, *Institut für Technische Chemie, Universität Hannover, Callinstr. 3, 3000 Hannover I, FRG*, Vol 68.
- Michels, J.R.,2004. Influência da Temperatura Sobre a Absorção de SO<sub>2</sub> por calcários na Combustão em Leito Fluidizado de Carvão Mineral. Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos, 140 p.
- Milioli, F. E. , 1996. Atmospheric Bubbling Fluidized Bed Combustion: Application to High Ash Coals and Approach to Scientific Research, *Journal of the Brazilian Society of Mechanical Sciences*, 18127-142.
- Moss, G.,The Mechanisms of Sulphur Absorption in Fluidised Beds of Lime, *Institute of Fuel Symposium Series*, No 1: Fluidised Combustion, London, 1980, pp. D2/1-9.
- Samaniego, J.E.L., 2003. Efeito da Concentração de SO<sub>2</sub> nas Reações de Calcinação e Sulfatação de Calcários em Reator de Leito Fluidizado. Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos, 116 p.
- Tarelho, L.A. C. , Matos, M.A.A. and Pereira, F.J.M., 2005."The Influence of Operational Parameters on SO<sub>2</sub> removal by Limestone During Fluidised Bed Coal Combustion". *Fuel Processing Technology*, Vol. 86; p. 1385-1401.
- Tarelho, L.A. C. , Matos, M.A.A. and Pereira, F.J.M., 2006."Influence of Limestone Addition on the Behaviour of NO and N<sub>2</sub>O During Fluidised Bed Coal Combustion. *Fuel Processing Technology*, Vol. 85; p. 967-977.
- Tureso, J.P., 2004. Estudo de uma Planta Piloto para a Combustão em Leito Fluidizado de Carvões Minerais Brasileiros. Tese de Doutorado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos, 118 p.

## 6. Agradecimentos

Agradecemos à FAPESP-CNPQ-CAPES-PRONEX pelo apoio financeiro dado a este trabalho.

### **Polluted emission in mineral coal combustor CE4500 in atmospheric bubbling fluidized bed coal**

Manoel Carlos Diniz Costa

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av.

Trabalhador São carlense,400 – 13566-590, São Carlos – SP, Brazil  
medcosta@petrobras.com.br

Julio Edgardo Lindo Samaniego  
Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av.  
Trabalhador São carlense,400 – 13566-590, São Carlos – SP, Brazil  
jelindo@sc.usp.br

Fernando Eduardo Milioli  
Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av.  
Trabalhador São carlense,400 – 13566-590, São Carlos – SP, Brazil  
milioli@sc.usp.br

Josmar Davison Pagliuso  
Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av.  
Trabalhador São carlense,400 – 13566-590, São Carlos – SP, Brazil  
josmar@sc.usp.br

### **Abstract**

The SO<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, CO and NO<sub>x</sub> polluted gases emission were evaluated in coal combustor with absorption of SO<sub>2</sub> by means of limestone in the pilot-plan for combustor in atmospheric bubbling fluidized bed coal of NETeF. The CE4500 mineral coal (energetic coal with upper average calorific power of 4500 kcal/kg) from of Criciúma region was utilized, with 2.3% of sulfur, 31,6% of ashes, and average diameter of particle of 425 um. The dolomite limestone DP from Ipeúna- SP was utilized with 16.2% of coal, 10.1% of magnesium, and average diameter of particle of 400 um. The pilot-plan has a reactor of square cross-section of 0,5\*0,5 m in which it were controlled the excess air level, the velocity of fluidization ( $U/U_{mf}$ ), the size of particle grain and the temperature of process. The main variable of analysis was the supplies relation Ca/S. The relationship of 2, 3, 4 and 5 Ca/S at temperature of bed around 850°C was used. Concentration discharge gases of reactor were measured and distribution of size grain and chemical composition of the material bed, removal and global coefficient of reaction of sulfation for many cases were determinated. The SO<sub>2</sub> emission dropped in asymptotic way for the increment of supplies of rate Ca/S. Increasing Ca/S from 3 to 5 (67%) resulted in a gain of efficiency of absorption between 4 to 21%. The emission of NO<sub>x</sub> increased lightly by the increment of supplies Ca/S. That result is agreement with current publication, which it attributes this fact to the catalyst effect of CaO to generation of NO<sub>x</sub> by means of reduction of CO

Keywords: coal, limestone, fluidized bed, sulfur absorption.

## THE REYNOLDS STRESS MODEL FOR PREDICTING THE WIND FLOW WITHIN AND ABOVE A FOREST CANOPY

**Reginaldo Rosa Cotto de Paula**

CEFET-ES and PUC-Rio

rcotto@bol.com.br

**Marcos de Paula Gomes**

Mechanical Engineering Department of PUC-Rio

mospgomes@mec.puc-rio.br

**Abstract.** *The turbulence structure of the two-dimensional (2-D) flow within and above a reduced model of a forest was investigated with the turbulence Reynolds Stress Model (RSM). The results were compared with numerical simulations performed with the Standard  $k - \epsilon$  Model (SKE) and also with experimental data from wind tunnel experiments. The model forest has a uniform height of 15 cm and a length of 6 m. The arrangement for the distribution of the trees studied was 125, corresponding to leaf-area indexes of 1.7. The RSM provided a good prediction of mean wind speed and Reynolds stress, but overestimated the turbulence intensity. One important result from the study indicates that there is no clear advantage in using the RSM versus the SKE in the simulation of the canopy flow.*

**keywords:** *Canopy flow, Reynolds stress model,  $k - \epsilon$  model, turbulence, wind tunnel experiments.*

### 1. Introduction

The subject of the flow within and above plant canopies has attracted considerable research attention in the past 20 years. The motivation for these studies can be found in a number of practical applications. Examples include wind load estimates, hydrology, meteorology and soil science. In addition, the studies of the turbulent flow in the plant environment are crucial to understanding of the processes that governing mass, momentum and heat between the vegetation-atmosphere systems.

Measurements from field and wind tunnel experiments (Gardiner, 1993; Shaw *et al.*, 1995;) had provided insight into the turbulence structure and the process that govern the mean air flow and turbulent field. Recent works include the results from the University of British Columbia Mechanical Engineering wind tunnel experiments together with comparisons from field experiments (Novak *et al.*, 2000; Novak *et al.*, 2001) and numerical models (Phaneuf *et al.*, 2004). Other recent study in neutral condition was performed out by Katul *et al.* (2004), which investigated different classes of the  $k - \epsilon$  models (and simplifications to them) and compared the predictions against data sets collected in eight vegetation types and in a flume experiment.

In this context, the numerical models for predicting the canopy flow have been developed. However, accurate prediction of the wind and turbulent flow are difficult due to the complexity in the array of plant elements (branches, leaves, trunk) and complex dynamics of air momentum transport within a canopy. In order to describe the behavior of the canopy turbulence it is necessary to compute, at a minimum, mean flow, turbulent kinetic energy (TKE), some partitioning of TKE among its three components, and Reynolds stresses (Katul, 2001b).

The first model studies of the canopy flow were based on the K-theory or gradient-diffusion theory (Cowan, 1968; Thom, 1971). Such models may well reproduce the mean velocity, but cannot provide second-order statistics. The limitations of the first-order closure were described by several authors. According Wilson and Shall (1977) these models provide little insight into the nature of the momentum transport processes within the vegetation canopy. Pereira and Shaw, (1980) pointed out that first-order closure modes can not provide accurate predictions of the wind velocity in the lower portion of a plant canopy, where a near-zero vertical gradient of the mean wind velocity is frequently observed (Shaw, 1977). In consequence, a second-order closure approach, such as the Reynolds stress model (RMS), has been proposed to simulate the turbulent transport in forest canopies. In this approach, the conservation of the streamwise mean momentum coupled with budget equations for tangential stresses results in three terms that require closure modelling, namely, the pressure-strain term, the momentum flux-transport term, and the turbulent kinetic energy dissipation term (Katul and Chang, 1999). This model provides a practical framework for computing the velocity statistics for modeling scalar transport within the canopy sub-layer. Katul and Albertson, (1998) reported that the deficiency of the second-order closure models is the flux-gradient approximation of the triple-velocity correlation, because produces unrealistic momentum flux transport profiles near the canopy top. Meyer and Paw U, (1986) in order to avoid the deficiency in

such models developed a third-order closure model for the triple-velocity correlation, which related the fourth moment to second moments using a zero-fourth cumulant expansion. This model was able to predicted wind profiles satisfactorily within a number of very different canopies. However, the model that was proposed by Meyer and Paw U, (1986) includes 10 equations for only a one-dimensional problem, and are computationally expensive.

Katul *et al.* (2004) suggested that a logical choice was a 1.5-closure model in which a budget equation for TKE must be explicitly considered, such models, knows as two-equations models or  $k - \varepsilon$  models. In studies of the canopy flow, terms source/sink due to the drag caused by the vegetation have been included in the transport equations of momentum, TKE and the turbulent kinetic dissipation rate ( $\varepsilon$ ) from  $k - \varepsilon$  models (Svensson and Häggkvist, 1990; Katul *et al.*, (2004)). The  $k - \varepsilon$  models uses the eddy-viscosity concept to model the Reynolds stress. This concept describes the turbulence as a diffusion process, with the aid of a local isotropic turbulent viscosity. The eddy-viscosity concept gives the isotropic turbulent intensities, i.e.,  $u_j^2 = (2/3)k$ ,  $i = 1, 2, 3$ . Furthermore, the turbulent fluxes  $-\overline{u'_i \phi'}$  for a quantify  $\phi$  is assumed to have the same direction as the mean-gradient vector of  $\phi$ . Thus, the eddy-viscosity concept cannot distinguish between anisotropy and inhomogeneity of the turbulence. Thus, an inherent advantage of using a RSM model is that it unhooks the Reynolds stress from the mean velocity field as SKE model.

The aim of the present study is to examine the feasibility of the RMS of providing vertical profiles of the mean velocity, turbulence intensity and Reynolds stress in a roughness sub-layer occupied by forest canopy. In the present work the comparisons of these flow statistics obtained from RSM with predictions from SKE and experimental data from wind tunnel have been made.

## 2. The Governing Equations

For steady-state and incompressible flow, in the neutral-stability condition, the continuity and momentum equations can be written as follows:

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho u_i u_i}{\partial x_j} = -\frac{\partial p}{\partial x_j} + \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \mu \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \frac{\partial u_i}{\partial x_i} \right) \right] + \frac{\partial}{\partial x_j} (-\rho \overline{u'_i u'_j}) + S_i \quad (2)$$

where  $\rho$  is the fluid density,  $p$  is the pressure,  $\mu$  is the dynamic viscosity,  $\delta_{ij}$  is the Kronecker delta,  $\overline{u'_j u'_i}$  is the Reynolds stress tensor and  $S_i$  is the source term. The turbulent viscosity,  $\mu_t$ , in both RSM and SKE turbulence models is evaluated from the TKE and its dissipation rate:

$$\mu_t = \rho C_\mu \frac{k^2}{\varepsilon} \quad (3)$$

where  $C_\mu = 0.09$  is an empirical constant.

### 2.1. Reynolds Stress Model

In the Reynolds Stress model (Launder *et al.*, 1975; Gibson and Launder, 1978; Launder, 1989), the transport equations are solved for the individual Reynolds stresses,  $\overline{u'_i u'_j}$ . The individual Reynolds stresses are then used to obtain the closure for the momentum equation, Eq. (2). The transport equation in the Reynolds Stress model is defined as:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial x_k} (\rho \overline{u'_i u'_j}) &= -\frac{\partial}{\partial x_k} \left[ \rho \overline{u'_i u'_j u'_k} \right] + p (\delta_{kl} \overline{u'_i} + \delta_{ik} \overline{u'_j}) + \frac{\partial}{\partial x_k} \left[ \mu \frac{\partial}{\partial x_k} (\overline{u'_i u'_j}) \right] - \\ &- \rho \left( \overline{u'_i u'_k} \frac{\partial u_j}{\partial x_k} + \overline{u'_j u'_k} \frac{\partial u_i}{\partial x_k} \right) + p \left( \frac{\partial u'_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u'_j}{\partial x_i} \right) - 2\mu \frac{\partial u'_i}{\partial x_k} \frac{\partial u'_j}{\partial x_k} \end{aligned} \quad (4)$$

### 2.2. Standard $k - \varepsilon$ Model

In the framework of the SKE turbulence model (Launder and Spalding, 1972), the turbulence kinetic energy,  $k$ , and its dissipation rate,  $\varepsilon$ , are obtained from the following transport equations:

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho k u_i) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] + G_k - \rho \varepsilon + S_k \quad (5)$$

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (\rho \varepsilon u_i) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right] + C_{1\varepsilon} \frac{\varepsilon}{k} G_k - C_{2\varepsilon} \rho \frac{\varepsilon^2}{k} + \varepsilon \quad (6)$$

In Eqs. (5) and (6),  $G_k$  represents the generation of the TKE due to the mean velocity gradients,  $\sigma_k$  and  $\sigma_\varepsilon$  are the turbulent Prandtl numbers for  $k$  and  $\varepsilon$ , respectively. The model constants are  $C_{1\varepsilon} = 1.44$  and  $C_{2\varepsilon} = 1.92$ . In the SKE model the Reynolds stress are modelled by using an effective turbulent viscosity,  $\mu_t$ , such that  $-\overline{u'w'}$  is given by

$$\overline{u'w'} = \mu_t \left( \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right) \quad (7)$$

### 2.3. Source terms for the momentum, $k$ and $\varepsilon$ equations

The Eqs. (2), (4) and (5) include additional terms source/sink for drag due to canopy elements. The model for  $S_u$  depends on the form drag coefficient for the canopy:

$$S_u = -\frac{1}{2}\rho A(z)C_D|U|U_i \quad (8)$$

The term for  $S_k$  arises because vegetation elements break the mean flow motion and generate the wake turbulence ( $\approx A(z)C_D|U|^3$ ). In the present study the  $S_k$  is given by (Svensson and Häggkvist, 1990):

$$S_k = -\frac{1}{2}\rho A(z)C_D|U|^3 \quad (9)$$

The  $S_\varepsilon$  model is a logical extension of Kolmogorov's relation (Liu *et al.*, 1996), which in the present work is modelled by (Svensson and Häggkvist, 1990):

$$S_\varepsilon = -\frac{1}{2}\rho C_{4\varepsilon} A(z)C_D|U|^3 \quad (10)$$

where  $C_{4\varepsilon} = 1.95$  is an empirical constant.

## 3. Wind Tunnel Studies

The experiments in the neutral-stratified conditions were performed an open-return blow-through tunnel. The working section of the tunnel are 25 m long, 2.4 m wide and 1.5 m tall. The wind tunnel experiments were fully detailed in Chen *et al.*, (1995). The three components of the wind vector ( $u, v, w$ ) were made using a tri-axial fibre-film hot-wire probe (Dantec Measurement Technology, Skovlunde, Denmark, model 55r91) connected to a constant temperature anemometer system (Dantec Model 56C01).

The turbulent flow corresponding to the atmospheric boundary layer was generated in the tunnel by a combination of vertical spires, transverse boards, and large and small roughness elements placed successively downwind from the inlet, in a total length of about 7 m. Immediately downwind the small roughness elements there is a 6 m long reduced scale model of a forest (Novak *et al.*, 2000; Novak *et al.*, 2001). In the present study tree density of 125 trees  $m^{-1}$  was numerically simulated equivalent to a total leaf-area index of 1.7. In wind tunnel experiments the turbulence statistics were measured at about  $x = 4.3, 5.1$  and  $5.9$  m. At each of these locations, experimental vertical profiles were measured at four positions around a tree and all data presented were averages of these with equal weighting.

## 4. Numerical Methods and Boundary Conditions

The 2-D turbulent flow within and above the forest canopy was modelled at wind tunnel scale. The forest model was 6 m in length and 0.15 m in height and the domain had a total of 19 m in length and 1.5 m in height and represented a vertical plane at the center of the 3-D geometry of the wind tunnel, as shows Fig. (1). The boundary layer development section, which precedes the forest model, was 7 m long. The size and distribution of the transverse boards, and the large and small roughness elements were the same (two-dimensional equivalent) as the wind-tunnel geometry.

The simulation of the turbulent flow was performed by solving the previously mentioned transport equations for the conservation of mass, momentum,  $k$  and  $\varepsilon$ , using a commercial CFD solver, FLUENT 6.12.16. The SIMPLE algorithm of Patankar, (1980) was used in the continuity, TKE and their dissipation rate. The upwind boundary was defined as a velocity inlet, with a logarithmic expression of the velocity given by (Richards and Hoxey, 1993),

$$u(z) = \frac{u_*}{k_v} \ln \frac{z + z_o}{z_o} \quad (11)$$

where  $u(z)$  is the mean wind speed,  $k_v = 0.4$  is the von Karman's constant,  $u_* = 0.82$  is the friction velocity,  $z_o = 0.0148m$  is the roughness length and  $z$  is the height above the ground. The TKE and dissipation rate were assigned profiles based on the value of  $u_*$ , using relationships recommended by Richards and Hoxey, (1993),

$$k = \frac{u_*^2}{\sqrt{C_\mu}} \quad (12)$$

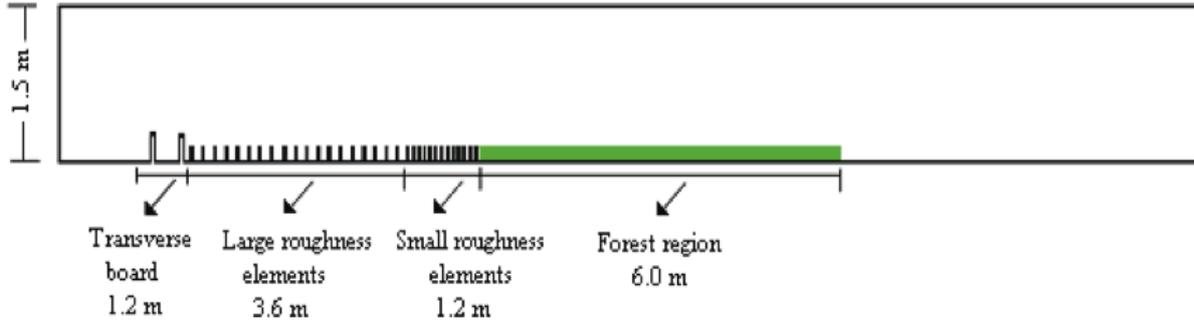


Figure 1: Schematic representation of the 2-D Domain.

and

$$\varepsilon = \frac{u_*^3}{k_v(z + z_o)} \quad (13)$$

The bottom of the wind tunnel was defined as a no-slip wall. In addition, the wall boundary conditions for the  $k - \varepsilon$  model was treated with the classical log wall function. The top of the modelled domain was defined as a symmetry boundary and the downwind boundary was defined as an outflow boundary.

In the present work, it was used the experimental vertical profiles for the drag coefficient,  $C_d$ , calculated according to:

$$\frac{d\overline{u'w'}}{dz} = -\frac{1}{2}C_d(z)A_f(z)\overline{u}^2(z) \quad (14)$$

where  $A_f(z)$  is the frontal leaf-area distribution.

## 5. Results and Discussion

Figure (2) shows the comparison between the measured and modelled SKE and RSM for the vertical velocity profiles. Both SKE and RSM models results agree well with the measurements. There are generic features in all these data sets that the models reproduce well:

- (I) A decay exponentially of the wind velocity from the tree top ( $z/h_f < 1$ ), leading to low velocities inside the canopy;
- (II) The typical logarithmic profile of the wind speed at heights greater than  $h_f$
- (III) An inflection point in the mean velocity profile at the tree top.

Figure (3) shows the wind profiles within-canopy measured and predicted with SKE and RSM turbulence models. Approximately above of 0.03 m two distinct regions of air flow can be observed: (a) an upper region ( $0.11 \text{ m} < z < h$ ) where occur a great wind shear and (b) a middle region ( $0.03 \text{ m} < z < 0.11 \text{ m}$ ) where wind shear was relatively weak. It is important to note that numerical results from SKE were not able to capture well this behavior.

Figure (4) shows the comparison between predicted turbulence intensity profiles from SKE, RSM with measurements. In all numerical simulations, turbulence intensity showed discrepancies with the measurements. However, the numerical results were able to capture the maximum turbulence intensity near the top of the canopy, in agreement with the measured values from the wind tunnel experiments.

Figure (5) presented a comparison of the Reynolds tensor profiles obtained from SKE and RSM turbulence models against the measurements. Clearly, the RSM model reproduce well the measured Reynolds tensor than that SKE model. A logical question that was whether this poor performance of the SKE model was connected with the formulation of the Reynolds stress in this model. The measured and modelled components of the Reynolds tensor reveal that below  $z/h_f = 0.50$ , the magnitudes of the various components were small compared to their values near the top of the canopy. In addition, the computed Reynolds stress with both models decrease to zero near the ground. These results of the Reynolds stress in the lower canopy were consistent with results from Wilson and Shaw (1977), who computed using a higher-order closure model.

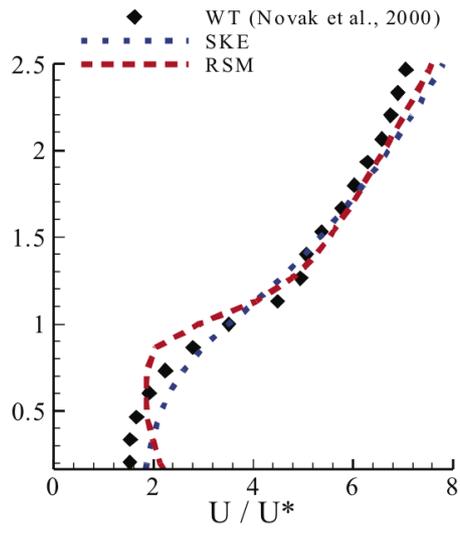


Figure 2: Comparisons between measured and modelled vertical velocity profiles by SKE and RSM turbulence models.

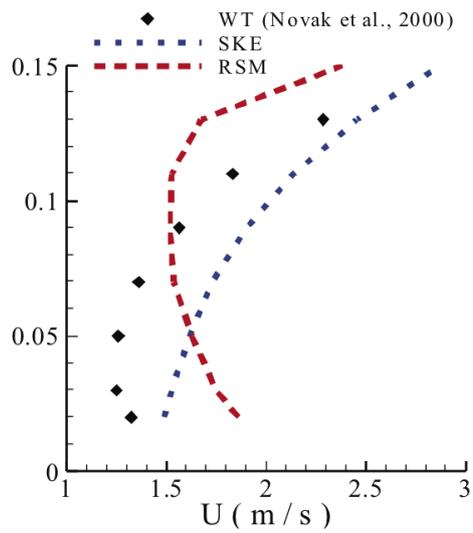


Figure 3: Wind speed profile within the forest canopy.

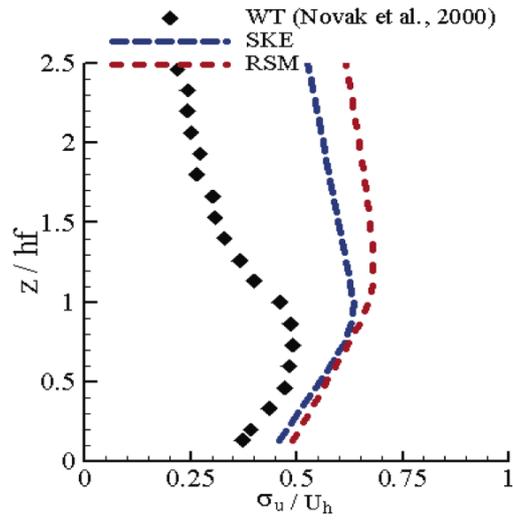


Figure 4: Comparisons between measured and modelled turbulence intensity profiles by SKE and RSM turbulence models.

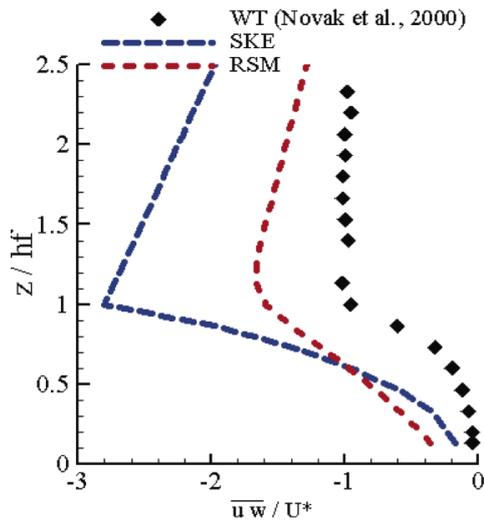


Figure 5: Comparisons between measured and modelled Reynolds stress velocity profiles by SKE and RSM turbulence models.

## 6. Conclusion

The RSM and SKE turbulence models were used to simulate turbulent air flow within and above a forest canopy. The interaction between the atmosphere and forest was represented by sink term in the transport equation of momentum, for both RSM and SKE models and source terms in the transport equations of  $k$  and  $\varepsilon$  only in the SKE model. The modelled wind speed in both models showed good agreement with wind tunnel measurements. The wind profile was characterized by a great wind shear at the canopy-atmosphere interface and by a region of relatively weak wind shear in the middle canopy.

The predicted turbulence intensity with both turbulence models, within and above the canopy, showed small discrepancies with the measurements. The magnitudes of the modelled Reynolds tensor below of  $z/h_f = 0.50$  were small compared to their values near the top of the canopy. Clearly, none of the two models reproduce well the measured Reynolds tensor above the canopy though the SKE was much worse than the RSM. There is no clear advantage in using the RSM versus the SKE in the simulation of the canopy flow, because the SKE model was computationally three times faster than the RSM model.

## 7. Acknowledgements

The authors acknowledge support from CNPq. The opinions expressed in this publication are those of the authors and do not necessarily reflect the views of this institution.

## 8. References

- Chen, J. M., Black, T. A., Novak, M. D. and Adams, R. S., 1995. "A wind tunnel study of turbulent air flow in forest clearings", In Coutts, M.P. and Grace J.(Eds.), *Wind and Trees*. Cambridge University Press, pp. 71–87.
- Cowan, I. R., 1968, Mass, heat and momentum exchange between stands of plants and their atmospheric environment, "Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society", vol. 94, pp. 523–544.
- Gardiner, B. A., 1993, Wind and Wind Forces in a Plantation Spruce Forest, "Boundary-Layer Meteorology", vol. 67, pp. 161–186.
- Gibson, M. M. and Launder, B. E., 1978, Ground Effects on Pressure Fluctuations in the Atmospheric Boundary Layer, "Journal of Fluid Mechanics", vol. 86, pp. 491–511.
- Katul, G. G. and Albertson, J. D., 1998, An Investigation of Higher-Order Closure Models for a Forest Canopy, "Boundary-Layer Meteorology", vol. 89, pp. 47–74.
- Katul, G. G. and Chang, W., Principal Length Scales in Second-Order Closure Models for Canopy Turbulence, "Journal of Applied Meteorology", vol. 38, pp. 1631–1643.
- Katul, G. G., Leuning, R., Kim, J., Denmead, O. T., Miyata, A., and Harazono, Y., 2001b, Estimating CO<sub>2</sub> Source/Sink Distributions within a Rice Canopy Using Higher-Order Closure Model, "Boundary-Layer Meteorology", vol. 98, pp. 103–125.
- Katul, G. G., Mahrt, L., Poggi, D. and Sanz, C., 2004, One-And Two-Equation Models for Canopy Turbulence, "Boundary-Layer Meteorology", vol. 113, pp. 81–109.
- Launder, B. E. and Spalding, D. B., 1972, "Lectures in Mathematical Models of Turbulence", Academic Press, London, England.
- Launder, B. E., Reece, G. J. and Rodi, W., 1975, Progress in the Development of a Reynolds-Stress Turbulence Closure, "Journal of Fluid Mechanics", vol. 68, pp. 537–566.
- Launder, B. E., 1989, Second-Moment Closure: Present and Future? "International Journal of Heat & Fluid Flow", vol. 10, pp. 282–300.
- Liu, J., Chen, J.M., Black, T.A., and Novak, M.D., 1996, E-epsilon Modelling of Turbulent Air Flow Downwind of a Model Forest Edge, "Boundary-Layer Meteorology", vol. 77, pp. 21–44.
- Meyer, T. and Paw U, K. T., 1986. Testing of a Higher-Order Closure-Model for Modelling Air-Flow within and above Plant Canopies, "Boundary-Layer Meteorology", vol.37, pp. 297–311.
- Novak, M. D., Warland, J. S., Orcahnsky, A. L., Ketler, R. and Green, S., 2000, Wind Tunnel and Field Measurements of Turbulent Flow in Forests. Part I: Uniformly Thinned Stands, "Boundary-Layer Meteorology", vol. 95, pp. 457–495.
- Novak, M.D., Orcahnsky, A.L., Warland, J.S. and Ketler, R., 2001, Wind Tunnel Modelling of Partial Cuts And Cutblock Edges For Windthrow, "Proceeding of the Windthrow Researchers Workshop", Richmond, British Columbia, pp. 176–192.
- Patankar, S. V., 1980, "Numerical Heat Transfer and Fluid Flow", Hemisphere Publishing, New York.
- Pereira, A. R and Shaw, R. H, 1980, A numerical experiment on the mean wind structure inside canopies of vegetation, "Agricultural Meteorology", vol. 22, pp. 303–318.
- Phaneuf, T. J., Jackson, P. L., Wang, Y. and Novak, M. D., 2004, Two and Three Dimensional Numerical Airflow Modelling Along Forest Edges, "26th Conference on Agricultural and Forest Meteorology", Vancouver, British Columbia.
- Richards, P. J. and Hoxey, R. P., 1993, Appropriate boundary conditions for computation wind engineering models using

- $k - \varepsilon$  turbulence model, "Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics", vols. 46 and 47, pp. 1451–153.
- Shaw, R. H., Brunet, Y., Finnigan, J. J. and Raupach, M.R., 1995, A Wind tunnel study of air flow in waving wheat: Two-point velocity statistics "Boundary-Layer Meteorology", vol. 76, pp. 349-376.
- Shaw, R. H., 1977, Secondary Wind Speed Maxima Inside Plant Canopies, Journal Applied Meteorological", vol. 16, pp. 514-521.
- Svensson, U. and Häggkvist, K., 1990, A Two-equation Turbulence Model for Canopy Flows, "Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics", vol. 35, pp. 201–211.
- Thom, A. S., 1971, Momentum absorption by vegetation, "Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society", vol. 97, pp. 414–428.
- Wilson, N. R. and Shaw, R.H., 1997, A Higher Order Closure Model for Canopy Flow, "Journal of Applied Meteorology", vol. 16, pp. 1198–1205.

## 9. Author rights

The authors are the only responsible for the printed material included in this paper.

## CONSIDERAÇÃO DOS EFEITOS DA IRREGULARIDADE DA SUPERFÍCIE EM UM PROBLEMA DE DISPERSÃO NA CAMADA LIMITE PLANETÁRIA ABORDADO ANALITICAMENTE

**Sérgio Wortmann**

Escola Técnica UFRGS, Ramiro Barcelos nº2777 Porto Alegre- RS/ Brasil  
wortmann@etcom.ufrgs.br

**Cíntia Ourique Monticelli**

FEEVALE, RS 239 nº 2755 Novo Hamburgo/ RS - Brasil  
cintiam@feevale.br

**Resumo.** Neste trabalho é apresentada uma solução analítica para o problema bidimensional estacionário de dispersão de poluentes na Camada Limite Planetária cujo domínio é de contorno irregular por contemplar o relevo da região em estudo. O equacionamento do problema é obtido a partir da aplicação do conhecido modelo difusivo-advectivo  $K_{zz}$ . A inclusão dos efeitos do relevo é efetuada por uma mudança de variáveis que leva em consideração a irregularidade da superfície do terreno. O problema é resolvido para uma situação idealizada e fictícia em que a deformidade do contorno é emulada por funções matemáticas. A equação é resolvida pela técnica **GITT** (Generalized Integral Transform Technique) com solução analítica de seu problema transformado obtida com o auxílio da Transformada de Laplace e do Método da Diagonalização. Os coeficientes de difusão e advecção da equação resolvida são tomados como constantes para simplificar a abordagem. Os resultados alcançados são relevantes nesta área da engenharia, uma vez que os trabalhos até agora publicados, que determinam soluções analíticas para o problema em questão, consideram somente domínios de contornos regulares para a avaliação da concentração de poluentes na Camada Limite Planetária.

**Palavras chave:** Camada Limite Planetária, Modelo Difusivo-Advectivo, GITT, Transformada de Laplace, superfícies irregulares

### 1. Introdução

Problemas de poluição, baseados no modelo de dispersão Euleriano, na baixa atmosfera têm sido abordados com sucesso pela técnica analítica conhecida na literatura como GITT (*Generalized Integral Transform Technique*) (Cotta, 1993; Cotta e Mikhaylov, 1997). Esta metodologia tem se mostrado de muita utilidade no que se refere à avaliação dos modelos matemáticos adotados na simulação de problemas difusivos-advectivos. Além disso, recentes avanços analíticos incorporados a ela têm contribuído para o aumento do interesse dos pesquisadores da área.

O modelo de dispersão Euleriano, tem sido largamente aplicado para estimar a concentração de poluentes na Camada Limite Planetária, provinda de uma fonte puntual e elevada. A partir da equação de difusão-advectação é possível se obter um modelo de dispersão para uma fonte de emissão contínua, dadas as apropriadas condições iniciais, de contorno, o conhecimento do tempo, do espaço e dos campos de velocidade do vento. A solução desta equação tem sido aproximada nas formas numérica, semi-analítica e analítica. Neste trabalho a atenção foi concentrada na obtenção da solução analítica pela técnica da GITT.

A GITT pode ser resumida nos seguintes passos (Cotta, 1993; Cotta e Mikhaylov, 1997):

- 1) o potencial original é expandido em uma base determinada pelas autofunções e autovalores associados de um problema de Sturm-Liouville que, por sua vez, é escolhido tendo como base o operador diferencial parcial do problema original;
- 2) uma integração é efetuada para, aproveitando a ortogonalidade da base, transformar o problema original em um sistema de equações, também chamado de problema transformado;
- 3) o sistema resultante é então resolvido e a fórmula da inversa é utilizada para reconstituir o potencial original.

Em muitas aplicações, o problema transformado é um sistema de equações diferenciais ordinárias acoplado. Historicamente este sistema de equações é resolvido com o uso de sub-rotinas numéricas. Recentemente Wortmann (2003) propôs sua solução utilizando Transformada de Laplace e Diagonalização de Matrizes, seguindo a mesma metodologia já empregada em Teoria de Transporte. Esta nova abordagem contribuiu para um avanço analítico da técnica.

Uma das características da GITT é o fato dela permitir controle de erro dos resultados. Entre outras vantagens, esta característica é de especial importância para avaliação dos modelos matemáticos usados nas simulações computacionais. Frequentemente, os resultados obtidos em simulações diferem dos resultados de referência. A origem destas diferenças, por vezes, é de difícil determinação porque podem ser o produto de vários fatores concomitantes. Por

eliminação, a estimativa de um destes fatores contribui para a análise dos demais. No que se refere à simulação, provavelmente os principais causadores destas diferenças sejam a adequação do modelo matemático utilizado e/ou a abordagem empregada na solução das equações. Portanto, uma vez conhecida ou predita a grandeza do erro devido ao segundo causador listado acima, pode-se mais facilmente avaliar a performance do modelo matemático. Além disso, o controle de erro de resultados permite a avaliação e calibração de outras técnicas de solução de equações diferenciais.

Outra característica da GITT é que ela permite a abordagens de problemas com contornos variáveis. Isto é de especial importância em problemas de poluição porque possibilita sua simulação levando em conta o relevo da região estudada. Até onde os autores tenham notícia, todos os problemas de poluição na CLP resolvidos por esta técnica encontrados na literatura têm domínios regulares, pode-se citar os trabalhos de (Wortmann, 2000; Moreira, *et. al.*, 2005; Wortmann, *et. al.*, 2005 e Cassol, 2006).

O principal objetivo deste trabalho é, portanto, resolver um problema bidimensional estacionário de poluição na CLP com contornos variáveis, devido ao fato de que o relevo da região em estudo é levado em consideração. A abordagem utilizada para a solução da equação diferencial parcial difusivo-advectiva, proveniente do modelo Euleriano, representante do fenômeno, é a GITT com solução analítica do problema transformado por transformada de Laplace e pelo Método da Diagonalização. São apresentados os resultados de simulações para alguns problemas fictícios, em que são emulados acidentes no relevo.

## 2. O Modelo

O estudo do transporte e dispersão de poluentes na atmosfera é comumente descrito pela equação de difusão-advectação, obtida da equação da continuidade, através da parametrização dos fluxos turbulentos de concentração, empregando-se o modelo do transporte do gradiente ou teoria K. (Moura *et. al.*, 1999).

Para um sistema de coordenadas cartesianas na qual a direção  $x$  coincide com a direção do vento médio, a equação de difusão estacionária pode ser escrita em sua forma clássica como (Arya, 1995):

$$U \frac{\partial c}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x} (K_x \frac{\partial c}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (K_y \frac{\partial c}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (K_z \frac{\partial c}{\partial z}) \quad (1)$$

onde,  $c$  denota a concentração média do contaminante passivo,  $U$  é a velocidade média do vento na direção  $x$ ,  $K_x$ ,  $K_y$  e  $K_z$  são os coeficientes de difusão turbulentos nas três direções:  $x, y, z$  respectivamente (Pasquill e Smith, 1983; Seinfeld, 1986).

O principal objetivo deste trabalho preliminar é considerar os efeitos do relevo na dispersão de poluentes na CLP em um modelo Euleriano de dispersão. Portanto, por simplicidade, os coeficientes de dispersão da equação (1) são assumidos como constantes. É importante ressaltar que a técnica de solução aqui utilizada já foi aplicada com sucesso à problemas com coeficientes variáveis (Moreira, *et. al.* 2005; Wortmann, *et. al.*, 2005; Moreira, *et. al.*, 2006 e Cassol, 2006), porém sem levar em consideração a irregularidade do domínio. Problemas mais realísticos fisicamente, com abordagem analítica, cujo equacionamento considera os coeficientes de advectação e de difusão como funções das variáveis espaciais e a irregularidade do domínio serão objeto de trabalhos futuros.

Desprezando a componente vertical do vento e o termo da difusão longitudinal em relação ao termo da advectação do vento nesta direção (ou seja, supõe-se que a velocidade média do vento é muito maior que a velocidade turbulenta nesta direção), considerando ainda um coeficiente de difusão turbulento vertical  $K_z$  tomado constante, e procedendo a integração transversal ao vento da Eq. (1) chega-se ao problema bidimensional:

$$U \frac{\partial c(x, z)}{\partial x} = K_z \frac{\partial^2 c(x, z)}{\partial z^2} \quad c(x, z); f_1(x) < z < f_2(x); 0 < x < \infty \quad (2)$$

onde,  $c(x, z)$  representa a concentração média integrada transversalmente ao vento e  $f_1(x)$  e  $f_2(x)$  são funções que interpolam respectivamente o relevo e uma eventual alteração na Camada Limite Planetária. Portanto qualquer relevo que resulte em um domínio convexo e passível de ser interpolado por uma função poderá ser simulado por esta abordagem.

As condições de contorno para o problema (Eq. 2) são:

$$K_z \frac{\partial c(x, z)}{\partial z} = 0 \quad \text{em } z = f_1(x), \text{ e } z = f_2(x) \quad (3)$$

$$Uc(0, z) = Q \delta(z - H_s) \quad (4)$$

ou seja, de fluxo zero na superfície do solo e no topo da camada limite, e uma fonte com taxa de emissão  $Q$  localizada a uma altura  $H_s$ . Onde  $\delta$  é a função generalizada delta de Dirac.

## 2.1 Solução Proposta

Seguindo o formalismo da GITT (Cotta, 1993), o primeiro passo é escolher o problema de Sturm-Liouville associado ao operador da equação (2):

$$\frac{\partial^2 \psi_i(x, z)}{\partial z^2} + \lambda_i^2 \psi_i(x, z) = 0 \quad (5)$$

$$\frac{\partial \psi_i(x, z)}{\partial z} \Big|_{z=f_1(x)}^{z=f_2(x)} = 0 \quad (6)$$

onde  $\lambda_i$  e  $\psi_i(x, z)$  são os  $i$ -ésimos autovalores e as  $i$ -ésimas autofunções associadas.

Fazendo uma troca de variáveis pode-se determinar a solução do problema classicamente encontrada na literatura (Ozisik, 1980):

$$\psi_i(x, z) = \cos(\beta_i \frac{z - f_1(x)}{f_2(x) - f_1(x)}) \quad (7)$$

onde  $\beta_i$ , são as raízes positivas de  $\text{sen}(\beta_i) = 0$ .

Seguindo a idéia do Método da Transformada Integral Generalizada, GITT, (Cotta e Mikhaylov, 1997), o próximo passo é definir o par transformada-inversa:

$$\overline{C}_i(x) = \frac{1}{f_2(x) - f_1(x)} \int_{f_1(x)}^{f_2(x)} \frac{c(x, z) \psi_i(x, z)}{\sqrt{N_i}} dz \quad (\text{transformada}) \quad (8)$$

$$c(x, z) = \sum_{i=0}^n \frac{\psi_i(x, z)}{\sqrt{N_i}} \overline{C}_i(x) \quad (\text{inversa}) \quad (9)$$

com

$$N_i = \frac{1}{f_2(x) - f_1(x)} \int_{f_1(x)}^{f_2(x)} [\psi_i(x, z)]^2 dz \quad (10)$$

onde  $\psi_i(x, z)$  é a solução do problema de Sturm-Liouville associado,  $N_i$  é a norma e  $\overline{C}_i(x)$  é a concentração no espaço transformado.

Uma vez definido o par transformada-inversa, deve-se então efetuar a transformação integral propriamente dita. Para tanto, aplica-se ao problema descrito pela equação (2) o operador:

$$\int_{f_1(x)}^{f_2(x)} \frac{(\cdot) \psi_j(x, z)}{(f_2(x) - f_1(x)) \sqrt{N_j}} dz \quad (11)$$

onde a notação utilizada na Eq (11) significa multiplicar pela autofunção ortogonal, dividir pela norma e, finalmente, integrar em toda a dimensão transversal ao escoamento principal.

Faz-se uso das propriedades de ortogonalidade entre  $\psi_i(x, z)$  e  $\psi_j(x, z)$ :

$$\int_{f_1(x)}^{f_2(x)} \frac{\psi_i(x, z) \psi_j(x, z)}{(f_2(x) - f_1(x)) \sqrt{N_i N_j}} dz = \begin{cases} 1, & i = j \\ 0, & i \neq j \end{cases} \quad (12)$$

e do par transformada-inversa, para produzir o sistema de equações diferenciais ordinárias para  $\overline{C}_i(x)$  escrito resumidamente como:

$$\frac{d}{dx} \overline{C}_i(x) + M(x) \overline{C}_i(x) = 0 \quad (13)$$

o qual está sujeito à condição:

$$\overline{C}_i(0) = \frac{Q}{U[f_2(0) - f_1(0)]\sqrt{N_i}} \psi_i(0, H_s) \quad (14)$$

onde  $\overline{C}_i(x)$  é o vetor solução para a concentração de poluentes no espaço transformado,  $M(x)$  é a matriz dos coeficientes gerados pela aplicação da GITT, e seus termos podem ser descritos como:

$$M(i, i) = \frac{-2i\pi f_1'(x) + 2i\pi \cos(2i\pi) f_2'(x)}{4i\pi(f_1(x) - f_2(x))}, i \neq 0 \quad (15)$$

$$M(i, 0) = \frac{\sqrt{2}(-if_1'(x) + i\pi \cos(i\pi) f_2'(x))}{i\pi(f_1(x) - f_2(x))}, i \neq 0 \quad (16)$$

$$M(0, j) = 0 \quad (17)$$

$$M(0, 0) = 0 \quad (18)$$

$$M(i, j) = \frac{2i[(-i^3\pi + ij^2\pi)f_1'(x) + i(i^2 - j^2)\pi \cos(i\pi)\cos(j\pi)f_2'(x)]}{(i - j)^2(i + j)^2\pi(f_1(x) - f_2(x))}, i \neq j, i \neq 0, j \neq 0 \quad (19)$$

O domínio na variável espacial é então subdividido de forma a gerar  $m$  problemas acoplados pelos contornos. Assim reescrevem-se as Eq. (13) e (14):

$$\frac{d}{dx} \overline{C}_{i,m}(x_m) + M_m(x_m) \overline{C}_{i,m}(x_m) = 0, \quad 0 < x_m < L_m \quad (20)$$

$$\overline{C}_{i,m}(0) = \frac{Q}{U[f_2(0) - f_1(0)]\sqrt{N_i}} \psi_i(0, H_s) \quad (21)$$

$$\overline{C}_{i,m}(0) = \overline{C}_{i,m-1}(L_m), \quad m=1, 2, 3... \quad (22)$$

onde  $L_m$  são as dimensões limite de cada  $m$ -ésimo subintervalo da variável espacial longitudinal.

Além disso, em cada subintervalo a matriz  $M_m(x_m)$  é tomada como constante e seus elementos são assumidos como os valores medianos dos elementos da matriz original em cada intervalo, ou seja: são avaliados os valores médios de  $x_m$ , ou seja, para cada matriz  $M_m(x_m)$ :

$$M_m(x_m) = M_m\left(\frac{L_m}{2}\right) \quad (23)$$

Aplicando-se a transformada de Laplace à variável espacial e o Método da Diagonalização (Segatto, *et. al.*, 1999) para cada subintervalo da variável espacial  $x$ , a solução do problema transformado é determinada:

$$\overline{C}_{i,m}(x_m) = L^{-1}[(sI + A_{i,m})^{-1}] \overline{C}_{i,m}(0) \quad (24)$$

onde o operador  $L^{-1}$  representa a transformada inversa de Laplace da matriz  $(sI + A_{i,m})^{-1}$ ,  $I$  é a matriz identidade,  $A_{i,m}$  é a matriz de coeficientes numéricos que é gerada para cada  $m$ . Esta matriz será então decomposta em autovalores e autovetores como prevê o Método da Diagonalização.

Obtida a solução do problema transformado pela Eq. (24), para se determinar, então, a concentração de poluentes no espaço original,  $c(x, z)$ , utiliza-se a fórmula inversa da GITT descrita anteriormente pela Eq. (9).

### 3. Resultados e discussões

Para todas simulações feitas foram utilizados os seguintes parâmetros (Cassol, 2005):  $U=3,6m/s$ ,  $H_s=115m$ ,  $Q=400g/s$ ,  $K_z = 40$ ,  $z_i= 2070m$ ,  $n=10$  (ou seja, foram tomados 10 termos no somatório da Eq. (9)) e  $m=14$  (significando que o domínio longitudinal ao escoamento principal foi subdividido em 14 sub-intervalos). Os valores de  $K_z$  e  $U$ , foram obtidos calculando-se a média dos usados por Cassol, 2005.

Além disso, a função  $f_2(x)$  que limita o valor máximo da variável transversal, foi definida como sendo:

$$f_2(x) = \left( \frac{x}{50+x} + 1 \right) \frac{z_i}{2}, \quad 0 \leq x \leq 6000m \quad (25)$$

onde  $z_i$  é a altura da CLP. Esta escolha foi feita de forma a aumentar a precisão dos resultados para pequenos valores da variável transversal, sem que seja necessário um aumento da quantidade de autovalores na fórmula da inversa da GITT (Eq. (9)). Este procedimento, portanto, permite aumentar significativamente a precisão dos resultados sem prejudicar seu desempenho computacional.

As alterações do relevo, como citadas anteriormente, foram simuladas através de funções matemáticas escolhidas devido a sua capacidade de mostrar um acidente geográfico e a solução proposta ao problema.

Para uma primeira simulação escolheu-se uma curva Gaussiana:

$$f_1(x) = ae^{b(x-x_0)^2} \quad (26)$$

para  $a=0$ , a superfície torna-se plana e a distribuição da concentração pode ser observada pela Figura 1.

Para  $a=0.15$ ,  $b=-0.00001$  e  $x_0 = 3000m$ , obtem-se uma gaussiana de centro em  $x_0$ , isto é no meio do domínio considerado. O parâmetro  $a$  determina a altura da curva, assim observando a Figura 2 verifica-se que o relevo apresenta uma curva suave.

Aumentando o valor de  $a$  para  $a=0.3$ , dobra-se a altura da curva gaussiana, assentando a alteração no relevo como mostra a Figura 3. Pode-se verificar que, conforme esperado, a pluma contorna o acidente geográfico mostrando o acerto qualitativo dos resultados. Além disso, para o caso em que a superfície é regular ( $a=0$ , Fig. (1)), a solução repete os resultados para domínios regulares, já encontrada anteriormente.

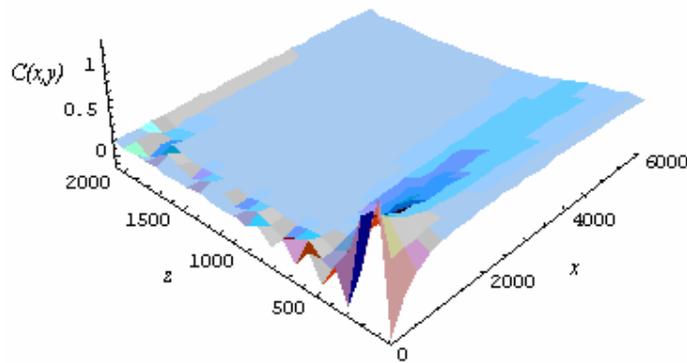


Figura 1. Concentração,  $C(x,z)$ , em um relevo regular ( $a=0$  na Eq.(26))

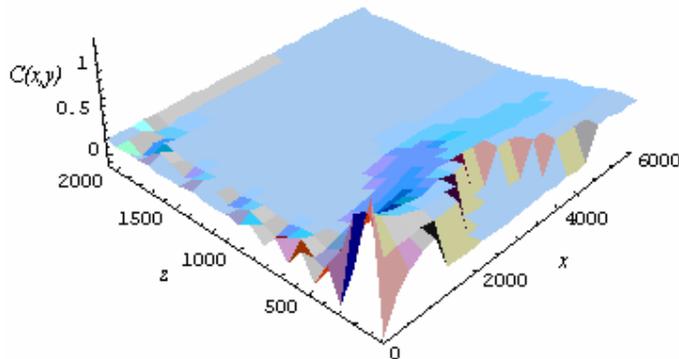


Figura 2. Concentração,  $C(x,z)$ , em um relevo fictício irregular ( $a=0.15$  na Eq.(26))

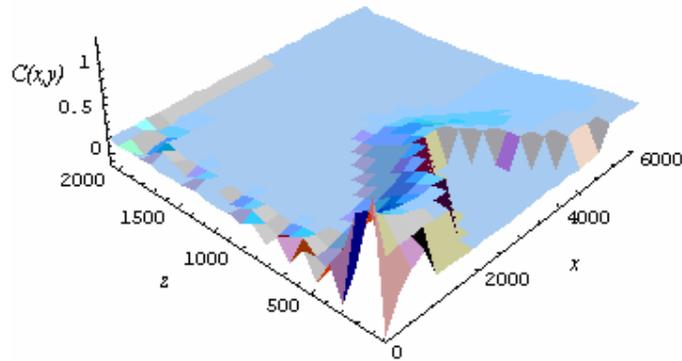


Figura 3. Concentração,  $C(x,z)$ , em um relevo fictício irregular ( $a=0.3$  na Eq.(26))

O objetivo das duas próximas simulações é mostrar que o algoritmo pode ser aplicado para qualquer tipo de relevo passível de ser aproximado por uma função matemática. É importante registrar que qualquer domínio convexo passível de ser representado por uma função pode ser simulado, utilizando este método. Por exemplo, que um relevo convexo qualquer pode ser interpolado por um polinômio de forma a ser representado matematicamente por ele. Uma vez determinado este polinômio, o algoritmo aqui apresentado é capaz de efetuar a simulação.

Na quarta simulação tomou-se:

$$f_1(x) = z_i \left( \frac{a}{2} e^{-b(x-\frac{x_0}{2})^2} + a e^{-b(x-\frac{3x_0}{2})^2} \right), \text{ com } z_i=2070\text{m}, a=0.3 \text{ e } b=-1.10^{-5}, x_0=3000\text{m} \quad (27)$$

Fez-se então, a soma de duas curvas, simulando um acidente geográfico composto por dois morros, representados na Figura 4, na qual pode-se perceber que a dispersão de poluentes sofreu os efeitos das barreiras impostas pelo relevo.

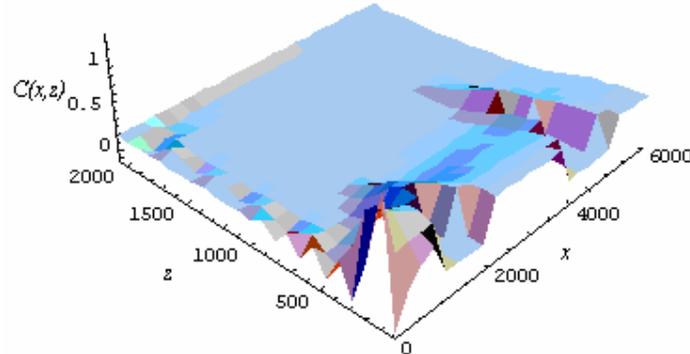


Figura 4. Concentração,  $C(x,z)$ , em um relevo fictício irregular (utilizando Eq.(27))

E na quinta simulação utilizou-se uma função trigonométrica, esta escolhida de forma a mostrar efetivamente a eficiência do método. Simulou-se então uma alteração no relevo em forma de onda cossenoidal.

$$f_1(x) = \frac{z_i}{40} \left( \text{Cos}\left[\pi \frac{x}{1000} + 500\right] + 1 \right), \text{ com } z_i=2070\text{m} \quad (28)$$

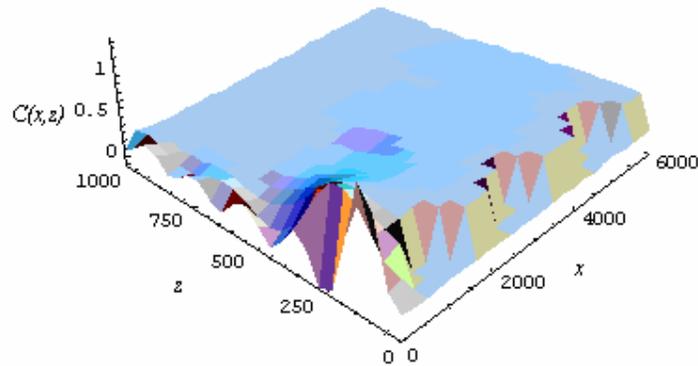


Figura 5. Concentração,  $C(x,z)$ , em um relevo fictício irregular (utilizando Eq.(28))

#### 4. Conclusões

Este trabalho apresentou os resultados para a simulação de um problema de poluição bidimensional estacionário na CLP em que foi levada em consideração a interferência do relevo em um modelo Euleriano de dispersão. A abordagem utilizada para solução da equação diferencial parcial difusivo-advectiva foi a GITT com solução analítica, por transformada de Laplace e Diagonalização de Matrizes do problema transformado.

No equacionamento utilizado, os coeficientes de difusão e advecção foram tomados como constantes, por questão de simplicidade, uma vez que este é um trabalho preliminar. Todavia, a técnica da GITT já foi aplicada em vários outros problemas similares, quem contemplam somente relevos homogêneos, onde tais coeficientes são tomados como variáveis. O principal objetivo aqui foi mostrar a habilidade da técnica em tratar problemas com contornos variáveis nesta área de aplicação física.

Os resultados foram obtidos para um problema fictício, portanto sua análise foi meramente qualitativa. É possível perceber claramente a influência da irregularidade do domínio no perfil de concentrações obtido.

Nos próximos trabalhos pretende-se estender a metodologia aqui demonstrada, à problemas mais realísticos, para resolver problemas governados por equações diferenciais parciais difusivo-advectivas com coeficientes de difusão e advecção variáveis em que a irregularidade do domínio é levada em consideração.

#### 5. Agradecimentos

A segunda autora agradece ao Centro Universitário FEEVALE pelo suporte financeiro à realização deste trabalho.

#### 6. Referências

- Arya, P.S., 1995 J. Appl. Meteor., vol.34, pp. 1112-1122.
- Cassol, M., 2006. "Solução Analítica do Problema Bidimensional Transiente de Dispersão de Poluentes Atmosféricos pelo Método GITT Dupla. Dissertação de mestrado". Univeridade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, Brasil, 68 pp.
- Cotta, R. M., 1993. "Integral Transforms in Computational Heat and Fluid Flow", CRC Press.
- Cotta, R. M. e Mikhailov M. D. , 1997, "Heat Conduction Lumped Analysis , Integral Transforms, Symbolic Computation". John Wiley Sons, Baffins Lane, Chinchester, England.
- Moreira, D.M., Vilhena, M.T., Buske, D. E Tirabassi, T., 2006. "The GILTT solution of the advection – diffusion equation for an inhomogeneous and non-stationary PBL". Atmospheric Environment. In Press.
- Moreira, D.M., Vilhena, M. T., Tirabassi, T., Buske, D. e Cotta, R. M. , 2005. "Near-source atmospheric pollutant dispersion using the new GILTT method". Atmospheric Environment 39, 6289-6294.
- Moura, A. D., et al., 2002, "Two Dimensional Dispersion Analytical Models: Eddy Diffusivities Depending on the Source Distance" Il Nuovo Cimento, v. 25 C, n. 3, p. 273-286.
- Ozisik, M. N., 1980. "Heat Conduction". John Wiley Sons Baffins Lane, Chinchester, England.
- Segatto, C. F., Vilhena, M. T. e Gomes, M. G., 1999 " The One-Dimensional  $LTS_N$  Solution in a Slab with High Degree of Quadrature", Annal of Nuclear Energy 26 (10), 925-934.
- Wortmann, S., Vilhena, M. T., Moura, A., 2000. "Analytical solution of the one dimensional transient pollutant problem with variable eddy diffusivity coefficient". ENCIT.
- Wortmann, S., 2003. "Formulação Semi-analítica para a Equação Transformada Resultante da Aplicação da GITT em Problemas Difusivos-Advectivos". Tese de doutorado. Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, Brasil, 94 pp.
- Wortmann, S., Vilhena, M.T., Moreira, D.M. e Buske, D., 2005. "A new analytical approach to simulate the pollutant

dispersion in the PBL". Atmospheric Environment 39, 2171-2178.

## **CONSIDERATION OF THE SURFACE IRREGULARITY EFFECTS IN A PROBLEM OF DISPERSION IN THE PLANETARY BOUNDARY LAYER WITH AN ANALYTICAL APPROACH**

Sérgio Wortmann

Escola Técnica UFRGS, Ramiro Barcelos nº2777 Porto Alegre-RS/ Brazil

[wortmann@etcom.ufrgs.br](mailto:wortmann@etcom.ufrgs.br)

Cíntia Ourique Monticelli

FEEVALE, RS239 nº 2755 Novo Hamburgo – RS/Brazil

[cintiam@feevale.br](mailto:cintiam@feevale.br)

### **Abstract**

In this work an analytical solution for the stationary bidimensional problem of dispersion of pollutants in the Planetary Boundary Layer is presented whose domain has irregular contour contemplating the relief of the studied region. The mathematical model of the problem is gotten from the application of the known difusive-advective model  $K_{zz}$ . The inclusion of the effects of the relief is done by a change of variable that takes in consideration the irregularity of the land's surface. The problem is solved for an idealized and fictional situation where the deformity of the contour is emulated by mathematics function. The equation is solved by GITT technique (Generalized Integral Transform Technique) with analytical solution of its problem transformed gotten with the aid of the Laplace Transform and of Diagonalization Method. The coefficients of diffusion and advection of the decided equation are taken as constant to simplify the approach. The reached results are relevant in this area of engineering, once that the works so far published, that determine analytical solutions for the problem in question, only consider areas of regular contours for the evaluation of the concentration of pollutants in the Planetary Boundary Layer.

Keywords: Planetary Boundary Layer, Difusive-Advective Model, GITT, Laplace Transform, irregular surfaces

## ESTUDO DA DECOMPOSIÇÃO TÉRMICA DE CALCÁRIOS PELO MÉTODO ISOCONVERSIONAL. A RELAÇÃO COM A POROSIDADE E A CAPACIDADE DE SORÇÃO DO SO<sub>2</sub>

**Paula Manoel Crnkovic**

Escola de Engenharia de São Carlos – Dep. Engenharia Mecânica – Av. Trabalhador São Carlense, 400 CEP 13566-590  
e-mail: [paulam@sc.usp.br](mailto:paulam@sc.usp.br)

**Cecília Rocio Morales Leiva**

Escola de Engenharia de São Carlos – Dep. Engenharia Mecânica – Av. Trabalhador São Carlense, 400 CEP 13566-590  
e-mail: [cleiva2@ford.com](mailto:cleiva2@ford.com)

**Fernando Eduardo Milioli**

Escola de Engenharia de São Carlos – Dep. Engenharia Mecânica – Av. Trabalhador São Carlense, 400 CEP 13566-590  
e-mail: [Milioli@sc.usp.br](mailto:Milioli@sc.usp.br)

### Resumo:

O uso de combustíveis com altos índices de enxofre aumenta a necessidade de se aplicar processos eficientes de desulfurização gasosa. Uma das mais promissoras técnicas com este propósito é a combustão em leito fluidizado utilizando-se calcários. Estes sorventes são atrativos devido ao seu baixo custo e por estarem disponíveis em várias partes do Brasil e outros países. Entre vários fatores, a porosidade, a distribuição de poros, as condições de calcinação são importantes no processo de dessulfurização. Como a sulfatação envolve o CaO, o tempo de residência dependerá também da velocidade de decomposição do CaCO<sub>3</sub>. Este estudo visa avaliar a energia de ativação da calcinação de dois diferentes calcários, calcítico (denominado CI) e dolomítico (denominado DP), (ambos com tamanho médio de partícula de 545 µm) e comparar este parâmetro cinético com a reatividade e a estrutura morfológica destes sorventes. Uma balança termogravimétrica foi usada para determinar a energia de ativação e a reatividade de sorção. Foi empregado o método isoconversional (*Model Free Kinetics*) para a determinação do parâmetro cinético Ea. A distribuição dos poros foi investigada utilizando-se um porosímetro de mercúrio e a estrutura morfológica foi avaliada por meio da microscopia eletrônica de Varredura (MEV). A energia de ativação resultou entre 192 e 195 kJ/mol ( $\alpha = 0,1-0,5$ ) e entre 188 e 195 kJ/mol ( $\alpha = 0,1-0,9$ ) para o calcário calcítico. Para o calcário dolomítico a energia de ativação resultou em 180 kJ/mol ( $\alpha = 0,1-0,9$ ). Em relação à reatividade os resultados mostraram que o calcário dolomítico é mais reativo que o calcítico e os valores de conversão foram  $0,55 \pm 0,089$  para o calcítico e  $0,4 \pm 0,061$  para o dolomítico. Considerando-se a distribuição de mesoporos, notou-se que após a calcinação o calcário dolomítico apresentou um pequena parcela de poros com diâmetro de 9,6 µm, enquanto que o calcário calcítico apresentou um distribuição de poros entre 0,08 e 10 µm. As microfotografias obtidas por MEV mostraram que o calcítico apresenta uma estrutura mais compacta quando comparado com a estrutura morfológica do dolomítico. Estes resultados mostram que há evidências de que a cinética de calcinação também afeta a reatividade do CaO, além de ser influenciada pela estrutura morfológica e distribuição de poros.

Palavras Chave: Cinética, calcário, calcinação, sulfatação

### 1. Introdução

A tecnologia do leito fluidizado apresenta-se como uma forma eficaz de queimar uma variedade de materiais contendo carbono e hidrogênio, sejam eles sólidos, líquidos, gases, emulsões, etc (Okasha *et al*, 2003)

Além do carvão, que representa uma das principais reservas de combustíveis fósseis do planeta, a utilização de leito fluidizado tem permitido a queima de muitos combustíveis líquidos (por exemplo: óleos pesados, alcatrões, piche, querosene, óleo de pirólise, emulsão de betume, líquidos residuais, etc). Muitas pesquisas mostraram resultados de retenção de enxofre por absorventes calcários na combustão em leito fluidizado de líquidos e sólidos com altos teores de enxofre.

Os carvões brasileiros possuem teores de cinza que variam de 40 a 60 % e altos índices de enxofre (de 1 a 6 %). A combustão desses carvões em plantas convencionais apresenta-se problemática. Uma das dificuldades refere-se à fusão das cinzas nas temperaturas elevadas, típicas destes processos (entre 1000 e 1300°C). Nestes sistemas há formação de particulado sinterizado que pode facilmente ser aderido às superfícies do reator dificultando a transferência de calor. Outra dificuldade refere-se aos índices excessivos de emissão de dióxido de enxofre, que é o maior contribuinte para a formação da chuva ácida.

Durante a combustão do carvão, ocorre a geração de SO<sub>2</sub>, que se não for removido será emitido como um gás para a atmosfera. A adição de calcário ao leito pode proporcionar sua remoção. Inicialmente, ocorre a calcinação do calcário (basicamente carbonato de cálcio- CaCO<sub>3</sub>) formando o óxido de cálcio (CaO). No leito fluidizado, por meio de uma reação heterogênea, grande parte do SO<sub>2</sub> reage com o sorvente CaO e o remove dos gases efluentes. Pode-se assim, utilizar combustíveis mais ricos em enxofre sem emissão excessiva de dióxido de enxofre para a atmosfera. Outra

vantagem deste processo é a viabilidade de se conduzir a combustão a temperaturas menores, evitando a fusão de cinzas e diminuindo a formação de óxidos de nitrogênio.

A reação entre o CaO e o SO<sub>2</sub> produz o sulfato de cálcio (CaSO<sub>4</sub>) como descarte do processo. No desenvolvimento de um reator de leito fluidizado para a queima do carvão, faz-se um esforço para que o carbonato de cálcio presente no calcário seja aproveitado o máximo possível. Desta forma, os estudos são direcionados para se aumentar substancialmente a conversão do material reagente em compostos de enxofre para que o volume de material necessário, assim como o impacto ambiental e o custo possam ser reduzidos.

Finalmente, a adição de sorventes como calcários e dolomitas ao leito permite queimar de forma limpa uma ampla variedade de combustíveis com altos teores de enxofre, disponíveis no Brasil. Fundamentalmente, o calcário é o sorvente utilizado em plantas de leito fluidizado por dois motivos: a alta reatividade com o SO<sub>2</sub> e a sua viabilidade comercial (Kocaefe *et al.*, 1987; Fuertes *et al.*, 1994; Yrjas *et al.* 1995).

Quando o calcário é termicamente tratado em temperaturas entre 800°C e 850°C, o produto sólido apresenta uma porosidade e área superficial maiores que o reagente inicial. Aliás, uma característica essencial da maioria das reações gás-sólido, onde o produto sólido é produzido, é a mudança da estrutura física da partícula, que dependerá das condições na qual o processo ocorre.

Dogu (1981) mostrou que quando calcários fossem calcinados em temperaturas acima de 950°C, a porosidade decrescia linearmente com a temperatura. Fischer (1955) observou que tanto a temperatura quanto a razão de aquecimento influenciam na porosidade. Davini *et al.* (1991) observaram um decréscimo na área superficial BET com o aumento da temperatura a partir de 800°C até 1300°C e correlacionaram a diminuição da área superficial com diminuição da reatividade.

Estas perdas de porosidade devido ao tratamento térmico são geralmente aceitas como mecanismo de sinterização. A sinterização é um processo onde pequenos cristais se aglomeram formando cristais maiores, reduzindo assim a área superficial específica do calcário calcinado podendo resultar em um decréscimo mensurável no tamanho da partícula (Newton *et al.*, 1989).

Vários modelos mostram a dependência da taxa de sinterização em relação às concentrações de CO<sub>2</sub> e H<sub>2</sub>O (Mai e Edgar, 1989; Milne, 1990). Entretanto, a maioria deles não insere a distribuição do tamanho de poros, que podem ter um considerável efeito para se prever a capacidade de sulfatação e os valores dos parâmetros cinéticos (Beruto, 1980; Bruce *et al.*, 1989).

Muitos autores atribuem uma significativa importância ao processo de calcinação influenciando nas características estruturais do sorvente, tais como porosidade e área superficial específicas desenvolvidas durante a calcinação (Mai e Edgar, 1989). As variáveis em um processo típico de calcinação são: tempo, temperatura, razão de aquecimento, massa e atmosfera. A energia de ativação do processo de calcinação é um parâmetro cinético que, juntamente com a porosidade, pode ser estabelecida como um fator que relaciona a calcinação com a capacidade reativa do sorvente.

Neste caso, a energia de ativação pode ser obtida a partir de ensaios experimentais e a análise térmica é uma ferramenta útil possibilitando tal determinação. Para tal, necessita-se definir modelos descritivos destes processos. Na literatura, inúmeros trabalhos propuseram e ainda propõem modelos cinéticos e isto gera muita incerteza e controvérsia, principalmente em relação sobre qual é o mais adequado para determinado processo.

Métodos cinéticos tradicionais para se analisar reações de primeira ou segunda ordem não são frequentemente aplicáveis em reações complexas e de interesse prático envolvendo, por exemplo, reação gás-sólido. Conseqüentemente, uma variedade de técnicas matemáticas, freqüentemente denominadas por análise cinética global, foi desenvolvida para caracterizar o comportamento cinético deste tipo de reações (Burnham e Braun, 1999).

Quanto à capacidade reativa do sorvente, há vários trabalhos na literatura referindo-se ao estudo da reação de sulfatação em balança termogravimétrica (Wieczorek-Ciurowa, 1992; Tullin, 1989; Wiedemann, 1990; Snyder, 1978; Fuertes, 1996). Embora esta técnica não reproduza completamente as condições de um reator de leito fluidizado, pois fenômenos como choque térmico, atrito etc, não são levados em consideração, estes métodos permitem prever o comportamento do sorvente de forma rápida e eficiente. A sorção do SO<sub>2</sub> pelo CaO é uma reação complexa e testes em análise térmica mostraram que vários fatores podem interferir neste processo.

A porosidade é um dos fatores essenciais que estabelecem a reatividade do sorvente, pois o SO<sub>2</sub> deve se difundir para dentro da partícula e reagir com o CaO disponível. Não somente a porosidade, mas a distribuição do tamanho dos poros adequada permite acomodar o produto da sulfatação de modo a melhorar o aproveitamento do material sorvente.

Neste trabalho, a termogravimetria e o método cinético isoconversional *Model Free Kinetics* de Vyazovkin (Vyazovkin e Lesnikovich, 1992) foram usados para se determinar a energia de ativação da decomposição de dois tipos diferentes de calcários, também se busca avaliar a porosidade desenvolvida por estes calcários após a calcinação e relacionar estes parâmetros com a capacidade de sulfatação.

## 2. Experimental

Foram utilizados dois tipos de calcários diferentes, calcário calcítico procedente de Itaú de Minas (MG) denominado neste trabalho por CI e calcário dolomítico procedente de Piracicaba (SP) denominado DP. Os calcários foram extraídos diretamente das minas. Estas pedras foram britadas e selecionadas no NETeF (Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos – EESC – USP) utilizando-se moinho de martelos e conjunto de peneiras vibratórias laboratoriais.

A granulometria do material para os ensaios foram obtidas sempre por meio de seleção entre duas peneiras sucessivas da série ASTM, de modo a compor a faixa mais estreita possível e minimizar o efeito da distribuição granulométrica. A granulometria média selecionada para estes estudos foi a de 545  $\mu\text{m}$ , resultado da passagem pela peneira de 590  $\mu\text{m}$  e retenção na peneira de 500  $\mu\text{m}$ . O processo de peneiramento teve duração de 10 minutos. A composição química dos calcários CI e DP estão indicadas na Tab. I.

Tabela I: Composição química (% massa/massa) dos calcários CI e DP

Calcário	Ca	Mg	Fe	Al	Sr	K	Mn
Calcítico CI	35,34	0,35	2,45	0,25	0,14	0,09	0,52
Dolomítico DP	17,07	11,73	0,32	0,42	0,08	0,13	0,09

A Fig. 1 mostra a análise para os calcários CI e DP naturais feita pela técnica de porosimetria por intrusão de mercúrio utilizando-se um porosímetro da marca Micromeritics modelo Poro Sizer 9320. Nota-se que estes calcários são diferentes quanto a esta distribuição. Para ambos os calcários a região indicada por valores acima de 100 $\mu\text{m}$  não deve ser levada em consideração na determinação da distribuição de tamanho de poro, pois este evento está relacionado ao preenchimento dos espaços intersticiais entre as partículas (Teixeira, 2001).

Assim, o calcário CI natural não apresenta meso e macroporos enquanto que o calcário DP natural apresenta uma distribuição na região de mesoporos ( $d_{\text{poro}} = 0,050 \mu\text{m}$ ).

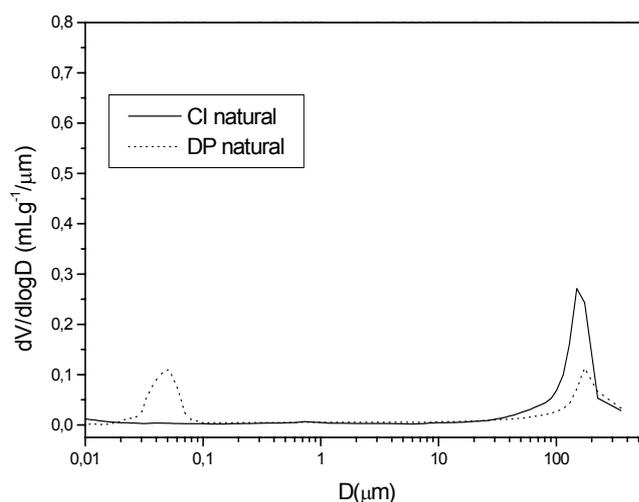


Figura 1 : Distribuições dos poros dos calcários CI e DP naturais obtidas com porosímetro de mercúrio

De acordo com Gregg (1982) a classificação dos poros em função do diâmetro está mostrada na Tabela II.

Tabela II: Classificação dos poros em função do diâmetro (Gregg 1983)

Classificação	Diâmetro ( $\mu\text{m}$ )
Microporo	$\theta < 0,02$
Mesoporo	$0,02 < \theta < 0,50$
Macroporo	$\theta > 0,50$

#### Experimentos TG para a determinação da energia de ativação

Neste trabalho utilizaram-se experimentos TG não-isotérmicos para a determinação da energia de ativação da calcinação e ensaios isotérmicos para se avaliar a capacidade de sorção dos sorventes. Todos os experimentos foram conduzidos em balança termogravimétrica Shimadzu modelo 51H.

Os ensaios não-isotérmicos foram conduzidos sob atmosfera dinâmica de ar sintético com vazão de 80 mL  $\text{min}^{-1}$  com razões de aquecimento de 5, 10, 20, 30 e 40  $^{\circ}\text{C} \text{ min}^{-1}$  entre a temperatura ambiente até 1000 $^{\circ}\text{C}$ . A massa da amostra utilizada foi de 10,0  $\pm$  0,5 mg e inserida em suporte de alumina (diâmetro = 5,8 e altura = 2,6 mm).

Para se determinar a Energia da Ativação da calcinação para ambos os calcários utilizou-se o Método isoconversional "Model Free Kinetics" com base na teoria de Vyazovkin e descrito a seguir.

Os fatores que mais influenciam a taxa de reação são: grau cinético de conversão ( $\alpha$ ), temperatura ( $T$ ) e tempo ( $t$ ). Nota-se que a conversão relacionada a este estudo cinético é melhor determinada por grau cinético de conversão e empregou-se o símbolo  $\alpha$  para distinguir da conversão ( $X$ ) adotada para a conversão relacionada ao grau de reatividade do sorvente.

Este modelo é baseado em técnicas iso-conversionais para o cálculo da energia de ativação efetiva ( $E$ ) como uma função da conversão ( $\alpha$ ) da reação química,  $E=f(\alpha)$  e permite obter informações cinéticas de reações complexas.

A taxa de reação representada como uma função da conversão  $f(\alpha)$  é diferente para cada processo, é o modelo da reação e deve ser determinada experimentalmente.

Assim, em sua aproximação seguem-se todas as conversões obtidas a partir de múltiplos experimentos. A teoria é baseada assumindo-se que :

$$\frac{d\alpha}{dt} = k(T)f(\alpha) \quad (1)$$

sendo  $k(T)$  a constante de velocidade de Arrhenius, então:

$$\frac{d\alpha}{dt} = A \exp\left(\frac{-E}{RT}\right) f(\alpha) \quad (2)$$

Sendo  $R$  a constante geral dos gases.

Tomando-se como base esta Eq.(1) e dividindo pela razão de aquecimento  $\beta = dT/dt$ , obtém-se:

$$\frac{d\alpha}{dT} = \frac{k}{\beta} f(\alpha) \quad (3)$$

Substituindo-se a Eq. 3 na Eq. 2, obtém-se:

$$\frac{d\alpha}{dT} = \frac{A}{\beta} \exp\left(\frac{-E}{RT}\right) f(\alpha) \quad (4)$$

Integrando-se até a conversão  $\alpha$  a uma dada temperatura  $T$ , obtém-se:

$$\int_0^\alpha \frac{1}{f(\alpha)} d\alpha = g(\alpha) = \frac{A}{\beta} \exp^{-E/RT} dT \quad (5)$$

Desde que  $E/RT \gg 1$ , a integral da temperatura pode ser aproximada por:

$$\int_{T_0}^T \exp^{-E/RT} dT \approx \frac{R}{E} T^2 \exp^{-E/RT} \quad (6)$$

Substituindo-se a integral da temperatura e rearranjando na forma logarítmica, obtém-se:

$$\ln \frac{\beta}{T_\alpha^2} = \ln \left[ \frac{RA}{E_\alpha g(\alpha)} \right] - \frac{E_\alpha}{R} \frac{1}{T_\alpha} \quad (7)$$

A Eq. 7 é definida como equação dinâmica, que é usada para a determinação da energia de ativação para todos os valores de conversão.

Em experimentos típicos é necessário obter pelo menos três diferentes razões de aquecimento ( $\beta$ ) e as respectivas curvas de conversão são avaliadas a partir das curvas TG. Para cada conversão ( $\alpha$ ), plotando-se  $\ln(\beta/T^2)$  versus  $1/T_\alpha$  obtém-se uma reta cujo coeficiente angular é  $-E_\alpha/R$ , assim, a Energia de ativação da calcinação é obtida em função da conversão.

Experimentos TG para a determinação da capacidade de sorção

Quanto à capacidade de sorção, os experimentos isotérmicos foram conduzidos utilizando-se as seguintes condições termogravimétricas: atmosfera do forno composta por ar sintético com vazão de 80 mL min<sup>-1</sup>, razão de aquecimento de 30°C min<sup>-1</sup> desde a temperatura ambiente até 850°C, isoterma de 10 minutos, injeção de SO<sub>2</sub> (100 %v/v) com vazão de 20 mL min<sup>-1</sup> por 30 minutos. A massa da amostra foi em torno de 10 mg e o suporte da amostra de alumina. Nestes experimentos, o mecanismo da balança foi protegido pela passagem constante de fluxo de ar para evitar qualquer corrosão provocada pelo dióxido de enxofre

O grau de reatividade do sorvente foi observado durante o período de injeção do SO<sub>2</sub>, isto é, na região correspondente ao ganho de massa devido à formação do produto CaSO<sub>4</sub>.

A avaliação do comportamento de cada calcário quanto à capacidade de sorção também foi feita com base na conversão (X). Neste caso, a conversão de um reagente indica uma relação quantitativa entre o número de moles da espécie alimentada no processo e o número de moles desta mesma espécie que efetivamente reage.

Para se calcular a conversão, utilizaram-se as curvas TG obtidas nos experimentos isotérmicos e empregou-se a Eq. 8

$$X = \frac{\frac{\Delta m}{M_{SO_2} + M_{1/2O_2}}}{\frac{w \cdot Y_{Ca}}{M_{Ca}} + \frac{w \cdot Y_{Mg}}{M_{Mg}}} \quad (8)$$

Sendo X a conversão, Δm a variação de massa após a injeção de SO<sub>2</sub> na balança termogravimétrica, M<sub>SO<sub>2</sub></sub> a massa molar do SO<sub>2</sub>, M<sub>1/2O<sub>2</sub></sub> a massa molar de ½ O<sub>2</sub>, w a massa de calcário natural, Y<sub>Ca</sub> a fração em massa de Ca no calcário natural, Y<sub>Mg</sub> a fração em massa de Mg no calcário natural, M<sub>Ca</sub> a massa molar do cálcio e M<sub>Mg</sub> a massa molar do magnésio.

3. Resultados e Discussões

A Fig. 2 mostra a distribuição dos poros dos calcários calcinados e a Tab. III os valores de porosidade dos calcários CI e DP naturais e calcinados. Nota-se que a porcentagem de porosidade para ambos aumentou após a calcinação. No caso dos calcários calcinados, estes valores são próximos.

Desconsiderando-se a região em torno de 150 μm devido ao preenchimento dos espaços intersticiais ou vazios nota-se que após a calcinação, o calcário DP apresenta uma pequena parcela de mesoporos (d<sub>poro</sub>= 9,6μm), enquanto que o calcário CI apresenta uma distribuição de poros que variam entre 0,080 e até cerca de 10 μm.

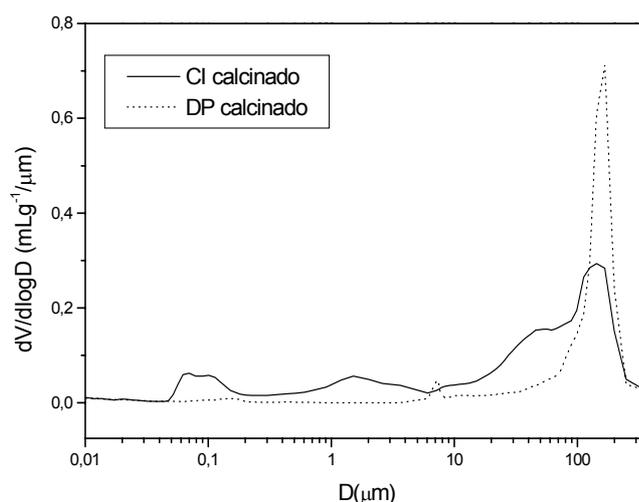


Figura 2 : Distribuições dos poros dos calcários CI e DP calcinados obtidas com porosímetro de mercúrio

Tabela III: Porcentagens das porosidades dos calcários CI e DP naturais e calcinados

Calcário	Porosidade / %	
	Natural	Calcinado
CI	15,12	27,11
DP	19,70	28,52

Em relação aos microporos, nada se pode afirmar a partir da porosimetria por intrusão de mercúrio, porém a microscopia eletrônica de varredura (MEV) permite avaliar qualitativamente estas estruturas morfológicas. As Fig. 3a e 3b apresentam os resultados obtidos por MEV para os calcários calcinados e nota-se que após a calcinação o calcário CI apresenta em sua estrutura morfológica poros com aberturas maiores enquanto que o calcário DP apresenta microporos e uma maior evidência da presença de aglomerados..

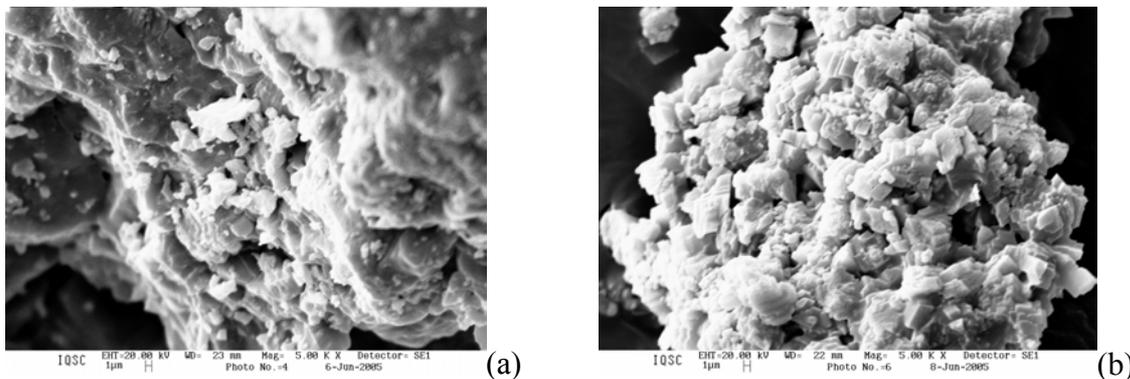


Figura 3: (a) Calcário calcítico CI calcinado e (b) Calcário Dolomítico DP calcinado

Para se avaliar o comportamento cinético da etapa de calcinação, utilizou-se do modelo cinético *Model Free Kinetics*, descrito no procedimento experimental.

As curvas termogravimétricas de ambos os calcários apresentam uma perda de massa referente à liberação de CO<sub>2</sub>. No presente trabalho foram feitos experimentos com 5 razões de aquecimento diferentes ( $\beta = 5, 10, 20, 30$  e  $40^\circ\text{C min}^{-1}$ ) e a Fig. 4 mostra estas curvas apenas para o calcário DP, pois para o calcário CI o formato da curva é semelhante, diferindo quanto ao intervalo de temperatura entre o início e final da decomposição, por exemplo, para  $\beta = 20^\circ\text{C min}^{-1}$  a decomposição do calcário CI ocorre entre 644 e  $908^\circ\text{C}$  e para o calcário DP entre  $645$  e  $868^\circ\text{C}$ .

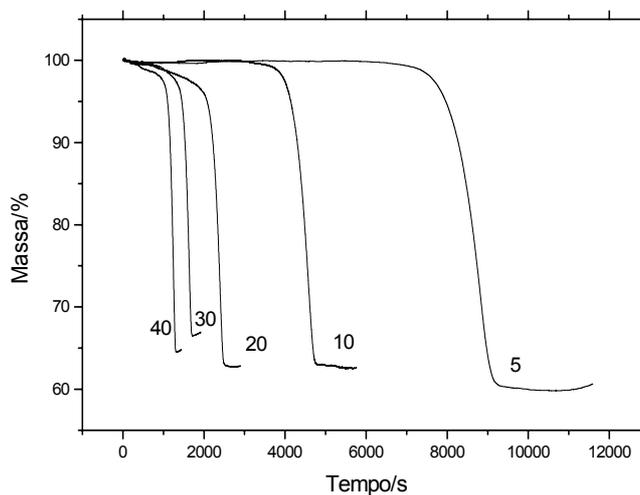


Figura 4: Curvas de perda de massa do calcário DP em diferentes razões de aquecimento. As razões de aquecimento de cada experimento (em  $^\circ\text{C min}^{-1}$ ) está indicada em cada curva.

As respectivas curvas de conversão relacionadas à calcinação foram calculadas a partir das curvas TG. As curvas de conversão como função da temperatura estão apresentadas na Fig. 5a e 5b para os calcários calcítico (CI) e dolomítico (DP) respectivamente.

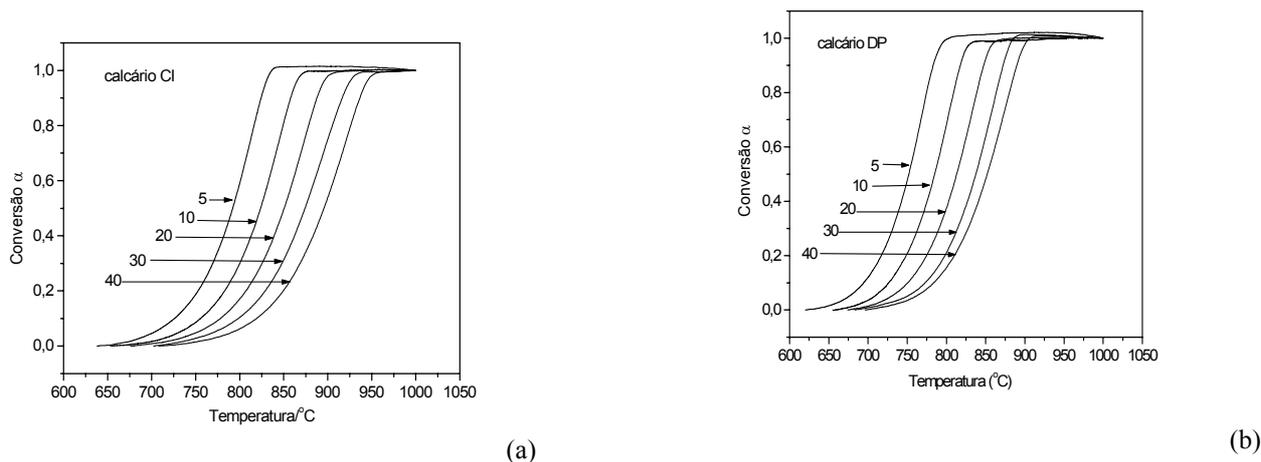


Figura 5. Curvas da conversão do processo de calcinação como função da temperatura para o calcário calcítico (CI) (a) e dolomítico (DP) (b).

De acordo com o método cinético, a energia de ativação foi obtida como função da conversão ( $\alpha$ ). As Fig. 6a e 6b apresentam as energias de ativação da calcinação para o calcário CI DP respectivamente.

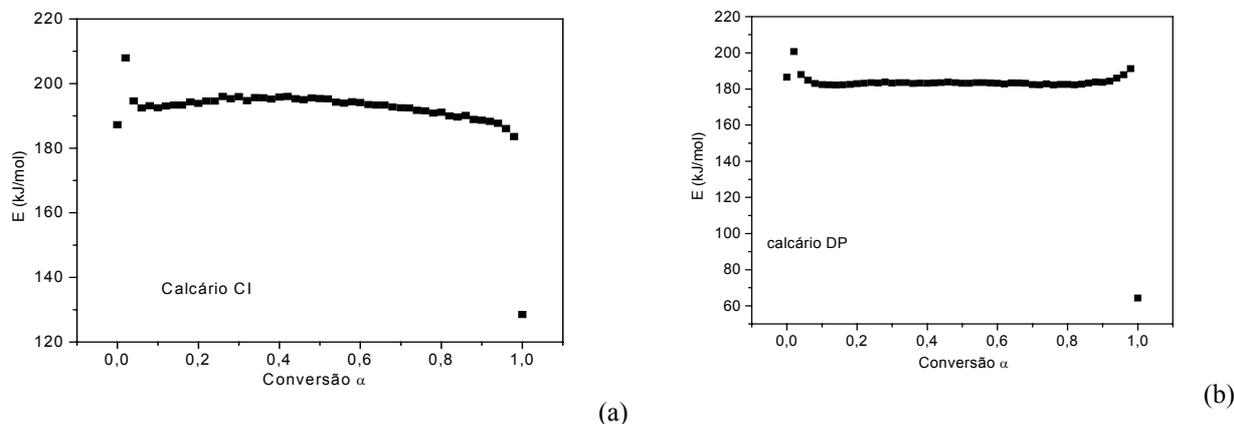


Figura 6: Energias de ativação da calcinação como função da conversão ( $\alpha$ ) para o calcário calcítico CI (a) e dolomítico DP (b)

Nota-se na Fig. 6a que a energia de ativação do calcário CI variou entre 192 e 195 kJ/mol ( $\alpha=0,1-0,5$ ) e entre 195-188 kJ/mol ( $\alpha=0,6-0,9$ ). A Fig. 6b mostra que a energia de ativação para o calcário DP é praticamente constante em torno de 180 kJ/mol ( $\alpha=0,1-0,9$ ). Embora as curvas tenham formatos levemente diferentes, pode-se estimar um valor da energia de ativação médio com seu respectivo desvio padrão. Para o CI a  $E_a = 191,8 \pm 9,7$  kJ/mol e para o calcário DP a  $E_a = 181,6 \pm 2,3$  kJ/mol.

Comparando-se estes resultados com outros encontrados na literatura, pode-se notar que Beruto e Searcy (1974) estudaram a calcinação de partículas de calcário pulverizadas em analisador TG e encontraram o valor da energia de ativação de 163,8 a 169,7 kJ mol<sup>-1</sup>. Estes valores indicaram que os processo de decomposição neste caso foi controlado pela difusão interpartícula. Estes mesmos autores demonstraram que a energia de ativação da calcinação em um sistema à vácuo resultou em 205kJ mol<sup>-1</sup>, sugerindo, portanto, que o aumento da energia de ativação foi devido à eliminação da resistência da difusão.

Outros estudos feitos sob condição à vácuo (Powell e Searcy, 1980) levaram a valores de 209,5 kJ mol<sup>-1</sup> e argumentaram que a decomposição do CaCO<sub>3</sub> é dominada pela resistência química, porém considerando-se partículas com tamanho médio de 50  $\mu$ m. Assim, os valores de energia de ativação determinados neste trabalho apresentam-se intermediários àqueles da literatura pois deve se levar em consideração o tamanho das partículas utilizados (545 $\mu$ m) e pela calcinação ter sido feita sob pressão atmosférica ambiente, ou seja, tanto o efeito de resistência de difusão quanto a resistência química são relevantes no processo.

Embora os valores de energia de ativação encontrados neste trabalho não distinguem com clareza um calcário de outro, mas mostram uma tendência de comportamento, ou seja, o calcário CI, mais compactado e menos poroso na forma natural apresenta uma energia de ativação menor no processo de calcinação, levando a uma estrutura morfológica constituída por meso e macro poros. Já para o calcário DP, que na forma natural apresenta mesoporos, durante a calcinação possui energia de ativação maior levando à formação de microporos, observados por MEV

Considerando-se estes dois calcários, os resultados sugerem que a maior  $E_a$  está correlacionada com a formação de macro e meso poros, enquanto que o calcário DP apresenta uma  $E_a$  menor e com pouca formação de macroporos.

A evolução do sistema de poros dos sorventes mostraram diferenças importantes no que se referem a ser mais e menos reativos. A Fig. 7 mostra o comportamento destes sorventes frente ao  $SO_2$

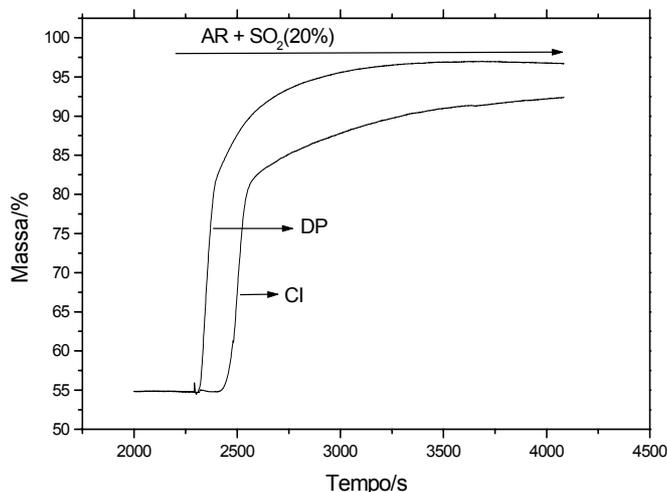


Figura 7: Curvas TG da sulfatação dos calcários CI e DP

Embora estas curvas permitam por si só avaliarem o comportamento reativo destes calcários por meio do ganho de massa que ocorre a partir da injeção do  $SO_2$ , a conversão é um parâmetro que indica quantitativamente tal efeito. Nota-se que o calcário DP mostra-se mais reativo com valor de conversão em  $0,55 \pm 0,089$ , enquanto que o calcário CI apresenta conversão em  $0,40 \pm 0,061$ .

Para o sorvente menos reativo (CI) há formação de meso e macro poros e para o mais reativo (DP), não há evidências de formação de poros destas dimensões após a calcinação.

Relacionando-se a formação da estrutura porosa do sorvente no processo de calcinação com sua capacidade reativa frente ao  $SO_2$  pode-se dizer que em sorventes que apresentam poros maiores, o bloqueio devido à formação de  $CaSO_4$  na superfície ocorre mais rapidamente do que em relação aos sorventes com poros menores. Assim, a difusão iônica do gás  $SO_2$  através do  $CaSO_4$  se torna o fator limitante mais pronunciado para calcários que têm a tendência de formar poros maiores. Complementando tal evento, a Energia de Ativação do processo de calcinação pode mostrar uma tendência da formação da estrutura destes sorventes.

#### 4. Conclusões

Os resultados mostram que o calcário DP na sua forma natural é mais poroso (19,70%) que o calcário CI (15,12%) e com forte diferença em relação à distribuição do tamanho dos poros (mostrado na Fig. 1). Após a calcinação, ambos apresentam porosidades muito próximas (CI = 27,11% e DP = 28,52%), porém, tanto a distribuição dos poros quanto à estrutura morfológica na formas calcinada também são diferente (Fig. 2 e Fig. 3a e 3b). Tanto para o calcário DP quanto para o calcário CI, a distribuição em torno de 100  $\mu m$  não deve ser avaliada como poros e sim como espaços intersticiais ou vazios.

Os valores de energia de ativação encontrados foram: para o CI a  $E_a = 191,8 \pm 9,7$  kJ/mol e para o calcário DP a  $E_a = 181,6 \pm 2,3$  kJ/mol. Estes resultados mostram-se intermediários àqueles apresentados na literatura, pois deve se levar em consideração o tamanho das partículas utilizadas (545 $\mu m$ ) e também pelo fato de a calcinação ter sido feita sob pressão atmosférica ambiente, ou seja, tanto o efeito de resistência de difusão quanto a resistência química são relevantes no processo.

Nota-se que, embora a energia de ativação do processo de calcinação para ambos os calcários sejam próximas, há uma diferença indicando que a menor energia de ativação é voltada para o calcário DP em que a grande parte dos poros, após a calcinação estão na região de microporos (observados por microscopia eletrônica de varredura- MEV), não apresentando meso e macroporos. Por outro lado, a energia de ativação mais elevada foi encontrada para o calcário CI, que por porosimetria de mercúrio, foi possível determinar a presença de meso e macroporos e por MEV observou-se em sua estrutura morfológica, poros com aberturas maiores.

Estes resultados apontam para o fato de que a energia necessária para a formação de poros maiores é menor que a energia necessária para a formação de poros menores.

À partir dos testes TG, pode-se comparar a grau de reatividade destes calcários frente ao SO<sub>2</sub> e os resultados mostraram que o calcário DP é aproximadamente 25% mais reativo que o calcário CI. Provavelmente, a formação de poros menores é o que caracteriza a qualidade de ser potencialmente um melhor sorvente frente ao SO<sub>2</sub>, como pode ser comprovado por meio das curvas TG de ganho de massa dos ensaios isotérmicos em atmosfera de SO<sub>2</sub>(20% v/v) (Fig. 7).

Levando-se em consideração a formação da estrutura porosa do sorvente no processo de calcinação, pode-se dizer que em sorventes com poros maiores e mais compactados o bloqueio devido à formação de CaSO<sub>4</sub> na superfície ocorre mais rapidamente do que em relação aos sorventes com poros menores, fazendo com que a difusão iônica do gás SO<sub>2</sub> através do CaSO<sub>4</sub> se torna o fator limitante mais pronunciado para calcários que têm a tendência de formar poros maiores. Assim, o completo uso do sorvente é dependente da estrutura porosa que permite a penetração do gás reagente para dentro da partícula

#### 4. Agradecimentos

Os autores agradecem à Fapesp (proc. N. 04/06894-4) e à Capes pelo apoio financeiro.

#### 5. Referências

- Beruto D., Searcy, W., 1974 "Use of Langmuir Method for Kinetic Studies of Decomposition Reaction: Calcite (CaCO<sub>3</sub>)" *J. Chem. Soc. Faraday Trans*, Vol 7, No. 2, pp.145
- Beruto, D. 1980, "Characterization of the Porous CaO Particles Formed by Decomposition of CaCO<sub>3</sub> and Ca(OH)<sub>2</sub> in vacuum" *J. Am. Ceramic Soc.*, Vol.63, No. 2, pp.972.
- Bruce, K., Gullet, B.K., Beach, L.O., 1989, "Comparative SO<sub>2</sub> Reactivity of CaO Derived from CaCO<sub>3</sub> and Ca(OH)<sub>2</sub>", *AIChE Journal*, Vol. 35, No. 1, pp. 37-41.
- Burnham A., Braun R.L., 1999, "Global Kinetic Analysis of Complex Material", *Energy & Fuels*, Vol. 13, No.1, pp. 1-22.
- Davini, P.; Demichele, G. And Bertacchi S. 1991, "Reaction between Calcium-Based Sorbents and Sulphur Dioxide: a Thermogravimetric Investigation", *Fuel*, Vol. 70, pp.201-204.
- Fuertes, A.B.; Fernandez, M.J., 1996, "The Effect of Metallic Salt Additives on Direct Sulfation of Calcium Carbonate and on Decomposition of Sulfated Samples", *Thermochim. Acta*, Vol. 276, pp. 257-269.
- Fuertes, A.B.; Fernandez, M.J. 1996 "The Effect of Metallic Salt Additives on Direct Sulfation of Calcium Carbonate and on Decomposition of Sulfated Samples". *Thermochim. Acta*, Vol. 276, pp. 257-269..
- Fuertes, A.B.; Velasco, G.; Fuente, E.; Alvarez T. 1994 "Study of the Direct Sulfation of Limestone Particles at High CO<sub>2</sub> Partial Pressures". *Fuel Processing Technol.*, Vol.38, pp.181-192.
- Kocaefe, D.; Karman, D. Steward, F.R. 1987, "Interpretation of the Sulfation Rate of CaO, MgO, and ZnO with SO<sub>2</sub> and SO<sub>3</sub>". *AIChE J.*, Vol. 33, No. 11, pp. 1835-1843.
- Mai, M.C.; Edgar, T.F. 1989, "Surface Area Evolution of Calcium Hydroxide During Calcination and Sintering". *AIChE J.*, Vol.35, No 1, pp.30-36.
- Milne, C.R., Silcox, G., Pershing D.W., Kirchgessner, D. 1990, "High-Temperature, Short-Time Sulfation of Calcium-Based Sorbents. 1. Theoretical Sulfation Model, *Ind. Eng. Chem. Res.*, Vol. 29, pp. 2192-2201.
- Newton, G.; Chen, S.L.; Kramlich, J.C. "Role of Porosity Loss in Limiting SO<sub>2</sub> Capture by Calcium Based Sorbents". *AIChE J.*, Vol. 35, No. 6, pp. 988-991.
- Okasha, F. M., El-Emam, S. H. And Mostafa, H. K., 2003, "The fluidized bed combustion of a heavy liquid fuel", *Experimental Thermal and Fluid Science*, Vol. 27, pp.473-480.
- Powell, E. K., Searcy, A.W., 1980 "The Rate and Activation Enthalpy of Decomposition of CaCO<sub>3</sub>," *Metallurgical Trans*, Vol. 11B, pp.427.
- Roquerol, F., Roquerol, J., Sing, K., 1999, "Adsorption by Powders & Porous Solids", Academic Press, London, 467p.
- Snyder, R. Wilson, W.I., Johnson, I., 1978, "Limestone Reactivities with SO<sub>2</sub> as Determined by Thermogravimetric Analysis and as Measured in Pilot Scale Fluidized-Bed Coal Combustors", *Thermochim. Acta*, Vol. 26, pp. 257-267.
- Teixeira, V.G.; Coutinho, F.M.B.; Gomes, A.S., 2001, "Principais Métodos de Caracterização da porosidade de Resina à Base de Divinilbenzeno", *Química Nova*, vo. 24, N.6, pp. 808-818.
- Tullin, C.; Ljungstrom, E. 1989, "Reaction between Calcium Carbonate and Sulfur Dioxide". *Energy Fuel*, Vol. 3, pp. 284-287.
- Vyazovkin, S., Lesnikovich. A.I. 1992, "Practical Application of Isoconversional Methods", *Thermochim. Acta*, Vol 203, pp. 177-185.
- Wieczorek-Ciurowa, K., 1922. "The Thermal Behaviour of Compounds in the Ca-S-O System". *J. Therm. Anal.*, Vol. 38, pp. 523-530.
- Wiedemann H.G.; Boller, A., 1990, "Thermogravimetric Studies of the Reactions between Dolomite and Sulfur Dioxide". *Solid State Ionics*, Vol. 43, pp.53-60.

Yrjas, P.; Lisa K.; Hupa, M. 1995, "Comparison of SO<sub>2</sub> Captures Capacities of Limestones and Dolomites under Pressure". Fuel, Vol.74, No.3, pp.395.

## STUDY OF THERMAL DECOMPOSITION OF LIMESTONES EMPLOYING ISOCONVERSIONAL METHOD. THE RELASHIONSHIP WITH POROSITY AND SORPTION CAPACITY OF SO<sub>2</sub>

### **Paula Manoel Crnkovic**

Escola de Engenharia de São Carlos – Dep. Engenharia Mecânica – Av. Trabalhador São Carlense, 400 CEP 13566-590  
e-mail: [paulam@sc.usp.br](mailto:paulam@sc.usp.br)

### **Cecília Rocio Morales Leiva**

Escola de Engenharia de São Carlos – Dep. Engenharia Mecânica – Av. Trabalhador São Carlense, 400 CEP 13566-590  
e-mail: [cleiva2@ford.com](mailto:cleiva2@ford.com)

### **Fernando Eduardo Milioli**

Escola de Engenharia de São Carlos – Dep. Engenharia Mecânica – Av. Trabalhador São Carlense, 400 CEP 13566-590  
e-mail: [Milioli@sc.usp.br](mailto:Milioli@sc.usp.br)

### **Abstract**

The use of fuels with high sulfur content increases the need to apply efficient processes of flue gas desulfurization. One of the more promising techniques with this purpose is the fluidized bed combustion using limestones. These sorbents are attractive for this because of its low cost, and widespread availability throughout the Brazil and many other countries. Among many factors, the porosity, the pore distribution, the calcination conditions play a crucial role on the sulfation rate reaction. As the sulfation involves the CaO, the residence time will also depend on the rate of decomposition of the CaCO<sub>3</sub>. This study aims to evaluate the activation energy of calcination for two different limestones, calcite and dolomite (with average grain size of 545 μm), and compare these kinetic parameter with the reactivity and the morphological structure of these sorbents. A thermogravimetric balance were used to determine the activation energy and the reactivity of sorption. The isoconversional method (Model Free Kinetics) were applied. The pore distributions were investigated using a mercury porosimeter and the morphological structure was evaluated through scanning electron microscopy (SEM). The activation energy resulted between 192 and 195 kJ/mol ( $\alpha = 0,1-0,5$ ) and between 188 and 195 kJ mol<sup>-1</sup> ( $\alpha = 0,6-0,9$ ) to the calcite. To the dolomite the activation energy resulted in 180kJ mol<sup>-1</sup> ( $\alpha = 0,1-0,9$ ). Related to the reactivity, the results showed that the dolomite is more reactive than calcite and the conversions values were  $0,55 \pm 0,089$  to the calcite and  $0,40 \pm 0,061$  to the dolomite. Concerning the mesopores distribution, it was noted that after the calcination the dolomite presented a very small quantity of pores with diameter of 9,6μm, while the calcite presents a range of porous distribution between 0,080 and about 10 μm. The SEM showed that the calcite displays more compact structure comparing with the dolomite structure. These results show that there is evidence that the calcination kinetics also effect the reactivity of the CaO product by influencing its morphological structure and pore distribution.

**Keywords:** Kinetics, limestone, calcination, sulfation.

## ESTUDO DE DESSULFURAÇÃO NA PLANTA DE BANCADA PARA COMBUSTÃO DE CARVÃO EM LEITO FLUIDIZADO DO NETeF

### **Pedro H. L. Paludo**

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
pedropaludo@yahoo.com.br

### **Ivonete Ávila**

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
iavila@sc.usp.br

### **Anderson A. U. Moraes**

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
ubices@sc.usp.br

### **Julio E. Lindo Samaniego**

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
jelindo@sc.usp.br

### **Manoel C. D. Costa**

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
mcosta@sc.usp.br

### **Josmar D. Pagliuso**

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
josmar@sc.usp.br

### **Fernando E. Milioli**

Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo - Av. Trabalhador São-carlense, n.º. 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
milioli@sc.usp.br

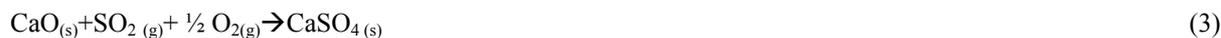
**Resumo.** O grupo de pesquisa do Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos (NETeF) da EESC-USP desenvolve pesquisas em combustão de carvão e absorção de SO<sub>2</sub> por calcários em reatores de leito fluidizado. Um dos sistemas experimentais disponíveis para pesquisa é uma planta de bancada para combustão em leito fluidizado atmosférico borbulhante projetada e construída no próprio NETeF. Neste trabalho apresenta-se os principais detalhes construtivos e de projeto da planta, descreve-se etapas de testes realizados, problemas ocorridos e soluções encontradas. Obtém-se resultados de ensaios de dessulfuração por calcário na combustão de carvão mineral. Utilizou-se carvão energético CE4500 procedente de Criciúma-SC e calcário dolomítico de Ipeuna-SP. A variável principal de análise foram a relação (Ca+Mg)/S de alimentação. Foram medidas concentrações de SO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> e CO<sub>2</sub> na descarga do reator. A partir dos dados empíricos determinou-se a conversão e o coeficiente global de taxa de reação na dessulfuração. Apresenta-se discussões relativas aos resultados obtidos, e relacionadas às emissões observadas.

*Palavras chave:* dessulfuração; combustão de carvão; leito fluidizado.

### **1. Introdução**

O carvão mineral constitui-se em importante fonte de energia não renovável do Brasil e apresenta-se como alternativa viável para suprir as crescentes demandas no setor energético brasileiro. As reservas disponíveis conhecidas estão estimadas em 32 bilhões de toneladas, e são suficientes para séculos de exploração termoelétrica em larga escala. Os problemas frequentemente associados à queima dos carvões minerais referem-se principalmente à poluição ambiental. O carvão nacional está na categoria de "Carvão Betuminoso de Alto Volátil C, não Coqueificável" da classificação ASTM. Possui altos teores de cinzas, que variam de 40 a 60% e altos teores de enxofre (de 1 a 6%) (Süffert, 1997).

Na queima de combustíveis contendo enxofre, tais como carvões minerais e óleos pesados, produz-se significativas emissões de SO<sub>2</sub>, um dos gases causadores da chuva ácida. Assim, procedimentos de dessulfuração de gases da combustão são empregados para minimizar impactos ambientais. Absorventes calcários são largamente empregados para remoção de óxidos de enxofre de gases da combustão. Quando submetido a altas temperaturas o calcário natural absorve energia para calcinar, formando principalmente óxido de cálcio (CaO) e de magnésio (MgO) com a liberação de dióxido de carbono (CO<sub>2</sub>), aumentando assim a sua porosidade (Equações 1 e 2). Expostos ao SO<sub>2</sub>, o CaO e MgO sulfatam produzindo principalmente sulfato de cálcio e de magnésio (Equações 3 e 4).



Alguns autores afirmam que apenas o CaO dos calcários é absorvente de SO<sub>x</sub> nas temperaturas de interesse em processos de combustão, posto que o produto MgSO<sub>4</sub> torna-se instável a altas temperaturas (Weidemann e Boller, 1990; Fuertes e Fernandez, 1995). Outro argumento é que a reação do MgO com o SO<sub>2</sub> é muito lenta e não ocorre sulfatação significativa (Borgwardt e Harvey, 1972). Há também na literatura evidência da ocorrência de MgSO<sub>4</sub> como produto da reação (Borgwardt, 1970). Contudo, alguns resultados obtidos no NETeF apontam uma possível atividade do MgO (Pagliuso et al., 2002).

Reatores de leito fluidizado são de grande aplicação na queima de combustíveis potencialmente poluidores, principalmente visando exploração termoelétrica. O processo permite redução efetiva de emissões poluentes, e consta entre as denominadas *clean coal technologies*. Nos reatores de leito fluidizado os óxidos de enxofre são eficientemente removidos pela adição de absorventes calcários, sendo injetados na própria câmara de combustão promovendo remoção de SO<sub>x</sub> *in loco*, no mesmo ambiente em que é formado (Van Houte e Delmon, 1979).

A absorção de óxidos de enxofre por calcários depende amplamente dos complexos padrões de escoamento que se desenvolvem nos combustores de leito fluidizado. As taxas de reação são controladas por efeitos cinético-químicos e de transporte de massa de gases reativos. Há várias resistências à reação a considerar, notadamente devido ao transporte do gás reativo através do filme gasoso que envolve as partículas reativas; devido à difusão do gás reativo através de camadas externas reagidas de cada partícula; devido à difusão do gás reativo através da estrutura porosa de núcleos de partícula não reagidos; e resistência cinético-química. Pode-se distinguir resistências à reação intrínsecas (intra-partículas) e externas (externas as partículas). As resistências intrínsecas são de difícil avaliação individual. São em geral determinadas em bloco, como uma resistência efetiva resultante da composição de efeitos difusivos e cinético-químicos intra-partícula. A composição das resistências intrínsecas com resistências externas as partículas permite estabelecer coeficientes globais de taxa de reação.

O Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos (NETeF) da EESC-USP desenvolve pesquisas em reatores de leito fluidizado gás-sólido. As pesquisas enfatizam a minimização de emissões poluentes, e refere-se a estudos reativos e da mecânica dos fluidos dos escoamentos em ambientes fluidizados. Vários trabalhos feitos em batelada com atmosfera simulada de queima de carvão (ar com SO<sub>2</sub> em concentrações de 1000 ppm) foram realizados no reator de leito fluidizado de bancada do NETeF para investigar o processo de dessulfuração por calcário na combustão de carvão. Foram avaliados: efeito da temperatura na conversão e no coeficiente global de taxa de reação (Costa, 2000; Camargo, 2001), efeito da granulometria do calcário (Silva, 2001), influência do tamanho médio de partícula de diferentes calcários (Silva, 2003) e efeito da concentração de SO<sub>2</sub> na sulfatação de calcários (Samaniego Lindo, 2003). Os primeiros trabalhos do grupo em que fez-se a queima de carvão mineral energético brasileiro no reator de bancada do NETeF foram desenvolvidos por Michels Jr. (2004) e Costa (2005).

Neste trabalho apresenta-se os principais detalhes construtivos e de projeto da planta de bancada, descreve-se etapas de testes realizados, problemas ocorridos e soluções encontradas. Apresenta-se resultados de ensaios de dessulfuração por calcário na combustão de carvão mineral brasileiro.

## 2. Sistema Experimental

O Esquema da planta de bancada para combustão em leito fluidizado, idealizado construído e em funcionamento no NETeF é apresentado na Fig. (1).

O reator é uma coluna cilíndrica com diâmetro interno de 0,160 m, altura de 0,450 m e espessura de parede de 3mm. O material é aço inoxidável AISI 304, sendo este material imune ao ataque de enxofre e resistente a temperaturas elevadas. A escolha da geometria cilíndrica foi feita por simplicidade de confecção. Dispensou-se o uso de material refratário resultando em maior resistência mecânica, maior volume útil e versatilidade nas mudanças de temperaturas.

No topo do reator há uma tampa cônica com visor de inspeção onde são feitas as conexões do sistema de alimentação de particulado e do ciclone, colocado na exaustão. O ciclone foi construído conforme a configuração *Stairmand* e possui na sua descarga de sólidos um recipiente fechado que coleta, para análise posterior, o material arrastado com os gases de processo (elutriado). O recipiente possui seção cônica e uma válvula de esfera na sua parte

inferior para facilitar a descarga do particulado. No topo do ciclone, está fixada à sonda do sistema de análise de gases.

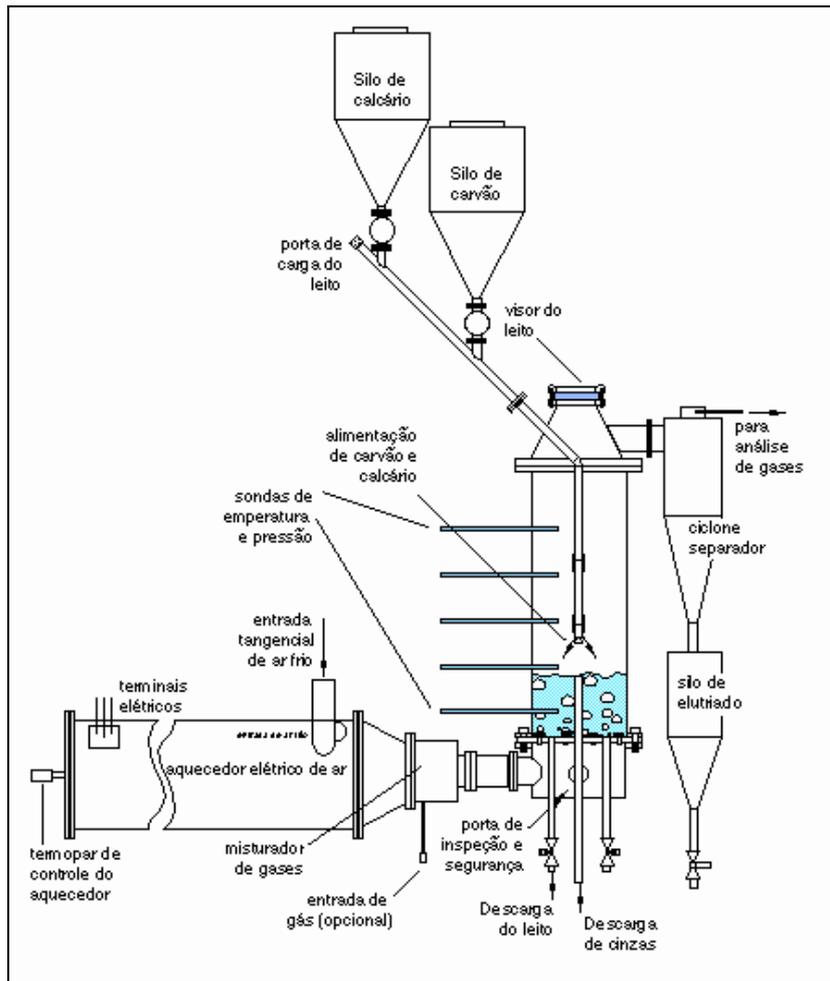


Figura 1. Esquema da planta de bancada para combustão em leito fluidizado, idealizado, construído e em funcionamento no NETeF.

Na parte inferior da coluna há a câmara plena, separada do reator por meio da placa injetora. O *plenum*, ou câmara plena, tem a função de homogeneizar a pressão do ar de fluidização à montante da placa injetora. A câmara plena é ligada ao misturador de gases, cuja utilidade prática é misturar  $\text{SO}_2$  ao ar quente nos estudos de simulação da atmosfera de queima de carvão.

O projeto da placa de injetores obedece ao procedimento desenvolvido no NETeF (Lombardi, Pagliuso e Goldstein Jr., 1997) para assegurar movimentação e homogeneidade em todo volume do leito. Os injetores são construídos em aço inoxidável, sendo projetados de tal modo que a perda de carga concentra-se nos orifícios assegurando igual vazão de ar em cada um deles. A extensão dos canais radiais dos injetores é suficiente para prevenir retorno de sólido ao *plenum* e o topo cônico facilita a movimentação do leito. Como o ar chega ao reator já aquecido, não há necessidade de elevar-se os injetores acima da placa distribuidora para proteção térmica da mesma, sendo estes montados rente à placa permitindo que o reator seja mais baixo, ou então, que o *freeboard* seja mais alto. São utilizados 13 injetores com 5 ou 6 furos, dependendo da sua localização. Os injetores possuem diâmetro externo de 0,01489 m, diâmetro interno de 0,00693 m, diâmetro dos canais radiais de 0,002 m e comprimento de canal de 0,00398 m.

A parede externa do reator é isolada com fibra cerâmica (Fiber-Frax) com espessura de 0,025 m. Para garantir a uniformidade radial da temperatura no interior do leito, montou-se uma resistência elétrica sob o isolamento térmico. A resistência minimiza a perda de calor do leito e inibe a formação do gradiente térmico.

O sistema de alimentação de ar de fluidização é constituído por um ventilador centrífugo com vazão de  $5,94 \text{ m}^3 \text{ min}^{-1}$  e pressão de  $1,5 \text{ mH}_2\text{O}$  a 3500 rpm. Uma válvula globo foi utilizada para o ajuste manual da vazão de ar e um sistema de placa de orifício para sua quantificação. A placa de orifício foi construída em aço inoxidável seguindo-se a norma ASME (1959), utilizando-se tomadas de pressão do tipo *corner taps*. Vários componentes foram empregados na linha. O tubo do sistema de medida de vazão tem comprimento linear sem acidentes de 2,5 m à montante e 1,3 m à jusante da placa de orifício e diâmetro de 0,0387 m. O diâmetro do orifício da placa é 0,01176 m. Manômetros de tubo em "U" foram utilizados para medição das pressões e determinação da vazão no sistema.

Como não é possível encontrar um aquecedor de ar comercial que atendesse às necessidades da planta de bancada

(altas temperaturas e amplas faixas de vazão de ar), o mesmo foi totalmente projetado e construído no NETeF. O aquecedor de ar é do tipo regenerativo e consiste em dois tubos concêntricos de aço inoxidável 304 com comprimento de 1,5 m. O casco externo possui diâmetro externo de 0,2 m e espessura de 0,002 m, enquanto que o interno apresenta diâmetro de 0,16 m e espessura de 0,004 mm. O casco interno abriga um feixe hexagonal de 37 tubos de molita com diâmetro externo de 0,018 m e diâmetro interno de 0,015 m  $\times$  1,2 m de comprimento. Dentro dos tubos de molita estão alojadas dezoito resistências elétricas de fio Kantal DS com diâmetro de 0,0025 m num total de 155 m de fios enrolados em espiras com diâmetro externo de 0,011 m e diâmetro interno de 0,006 m. A potência total das resistências elétricas é de 10 kW. Como o efeito da radiação térmica no interior dos tubos não pode ser desprezado, a temperatura máxima atingida pela resistência não está na sua extremidade de saída, mas a cerca de  $\frac{3}{4}$  do comprimento do aquecedor. O tubo central do feixe não abriga resistências (suas extremidades são fechadas), e sua função é alojar quatro termopares de segurança, igualmente distanciados.

A instrumentação de medida de temperatura do sistema é composta de quinze termopares do tipo K (Cromel-Alumel) com fios de 0,001 m de diâmetro, construídos com técnica desenvolvida no NETeF. Os termopares utilizados no reator foram isolados eletricamente com cerâmica de alumina com diâmetro externo de 0,003 m, sendo encamisados em tubos de aço inoxidável com diâmetro externo 0,005 m. O encamisamento da alumina é necessário para proteção contra choques mecânicos ou esforços elevados que podem quebrá-las e permitir contato entre os fios, resultando em erros na leitura. Foram instalados um total de quinze termopares com 0,16 m de comprimento, possuindo capacidade de movimentação radial para determinação do perfil de temperaturas.

As leituras consideradas para análise dos resultados são dadas por dez termopares localizados na região do leito onde as reações de interesse ocorrem. Outros cinco termopares estão localizados no aquecedor de ar. Há um termopar que indica as maiores temperaturas dentro do aquecedor, sendo utilizado como segurança para proteção das resistências elétricas, e outro localizado na saída do aquecedor que atua como controle da temperatura do ar.

Os efluentes gasosos são coletados na descarga de gases do ciclone e suas concentrações são medidas em analisadores Horiba Enda 1400 - modelo VIA-510 para os gases SO<sub>2</sub>, CO e CO<sub>2</sub> e modelo MPA-510 para o gás O<sub>2</sub>. O modelo VIA-510 utiliza o método de absorção de radiação no infravermelho e o MPA-510 utiliza o método de variação de pressão magnética, que ocorre quando um gás paramagnético atravessa uma região de campo magnético heterogêneo. Os analisadores, que possuem precisão de 0,5 % do fundo de escala e de quatro a cinco faixas de calibração, são conectados eletricamente ao sistema de aquisição de dados que recebe e processa continuamente as leituras. Os analisadores de gases são calibrados antes do início de operação da bancada experimental. A calibração dos analisadores é feita com gás padrão primário contendo frações do gás de análise em balanço de N<sub>2</sub> equivalentes a 70 ou 80 % do fundo de escala na várias faixas de calibração. Procurou-se manter as linhas de amostragem de gases tão curtas quanto possível, de forma a minimizar reações químicas e mistura na linha, que pudessem alterar o resultado e também diminuir a velocidade de resposta dinâmica na aquisição.

A aquisição de dados de concentrações de gases e de temperaturas é realizada por um computador equipado com placa de aquisição e programa *Lab View* da *National Instruments Corp.* As leituras de pressão são feitas a cada 5 min nos manômetros de tubo em "U", sendo inseridas manualmente no programa pelo operador, quando necessário. Desta forma, através de um programa específico, o computador apresenta em tempo real velocidades de fluidização, concentrações de gases e temperaturas.

Os sistemas de alimentação de carvão e de calcário são constituídos por duas válvulas rotativas acopladas a conjuntos motor-reductor de corrente contínua. Em razão das pequenas quantidades alimentadas (cerca de 1 kg/h), foi necessário construir as câmaras no próprio eixo e utilizar material de vedação na parede, invertendo o *design* convencional. O controle de rotação de cada válvula é feito com uma fonte de corrente contínua de precisão cuja voltagem pode ser fixada entre 3 e 12 V.

### 3. Problemas e Soluções

*Aglomerção de carvão e calcário nas válvulas:* as válvulas rotativas de alimentação de carvão e calcário foram inicialmente projetadas como um eixo de aço inoxidável 304 com oito cavidades com cantos a 90°. Isto favorecia o empacotamento do material particulado de forma que o mesmo não era totalmente descarregado da cavidade, implicando em variações de vazão mássica e diminuição considerável da capacidade de alimentação da válvula. Esse problema foi resolvido com a mudança da geometria das câmaras para a forma semi-esférica. Essa geometria possui ângulo de saída favorável que não permite a retenção de material sólido. Entretanto, ainda houve alguns empacotamentos de calcário nas câmaras, devido possivelmente à umidade excessiva de alguma parte desse material. Para evitar ao máximo a possibilidade desse problema influenciar os resultados, o duto de alimentação de calcário foi constantemente monitorado visualmente e sempre que necessário aplicava-se pancadas leves no corpo da válvula para eliminar qualquer empacotamento de calcário. Com o carvão este problema não ocorreu.

*Falha nos motores de acionamento das válvulas rotativas:* inicialmente foram utilizados motores de passo para acionamento das válvulas rotativas. Nas faixas de rotações de 0,20 a 1 Hz ocorria travamento das válvulas por torque insuficiente dos motores de passo. A solução foi a troca destes motores de passo por sistemas motor-reductor iguais aos empregados em limpadores de pára-brisa de automóveis. Esses motores são de corrente contínua e operam com tensão de 3 a 12 V com torque suficiente para impedir qualquer travamento das válvulas rotativas.

*Altura baixa de entrada de carvão e calcário:* a altura de queda do carvão da saída da válvula de alimentação até a entrada no reator era de 0,5 m. O carvão percorria um tubo de alimentação que fazia duas curvas de 45 ° antes de cair no leito. Adicionalmente parte do tubo de alimentação ficava dentro do reator e era aquecido a temperaturas iguais ou superiores à temperatura de ignição do carvão. Isto fazia com que parte do carvão gaseificasse e liberasse voláteis e alcatrão ainda dentro do tubo de alimentação, causando seu entupimento devido à aglutinação do carvão causada pelo alcatrão. A solução foi a retirada desse tubo de dentro do reator, substituição do ponto de entrada por outro que permite uma entrada praticamente vertical do carvão no reator, e elevação da altura de queda desse material para obter-se maior quantidade de movimento das partículas na entrada do reator.



Figura 2. (a) Aquecedor de ar, reator, silos de alimentação de carvão e calcário. (b) Silos de alimentação de carvão e calcário e válvulas de alimentação. (c) Aquecedor de ar, reator, quadro de controle. (d) Válvulas de alimentação de carvão e calcário com motores de acionamento. (e) Reator com material particulado do leito ao fundo.

*Problemas de aglomeração em algumas partes do leito:* a aglomeração de material particulado (carvão, calcário e cinzas) ocorre principalmente no início da alimentação de carvão para o leito do reator, que está relativamente frio, cerca de 450 – 500 °C. Nesta faixa de temperaturas, se a taxa de alimentação de carvão for alta ocorre problema semelhante àquele do tubo de alimentação dentro do leito, ou seja, gaseificação e liberação de alcatrão. Por isso o processo inicial de alimentação de carvão deve ser intermitente e com taxa de alimentação em torno de 30 a 40 % da prevista para operação em regime permanente.

*Entupimento da linha de amostragem de gases:* o ponto de picada da sonda de amostragem encontra-se logo na saída do ciclone e, embora o ciclone retenha a maior parte do particulado elutriado, ainda assim uma quantidade considerável de material particulado escapa pela saída do ciclone. Parte desse material é formada por partículas finas de carvão não queimado, mas em processo de gaseificação e molhadas por alcatrão. Muitas dessas partículas são sugadas para dentro da sonda e aderem na sua parede interna até obstruir completamente a sonda. Além disso as partículas que passam pela sonda vão ficando retidas no filtro primário dos analisadores de gás e, juntamente com a umidade gerada na combustão, obstruem o filtro. A solução para este problema foi a adoção de procedimento de limpeza da sonda com ar comprimido a cada teste, e troca do filtro quando saturado de partículas e umidade.

*Infiltração de ar na linha de amostragem de gases:* este problema era consequência do entupimento da sonda e também de vazamentos ou folgas nas conexões das mangueiras de teflon e flanges dos filtros e do condensador de umidade. A solução para minimizar a infiltração de ar foi a aplicação de abraçadeiras em todas as conexões de mangueiras de teflon e silicone e teste de estanqueidade dos filtros e condensador.

*Entupimento do dreno do leito e controlador de sua altura:* nos testes iniciais, o tubo de drenagem do leito trabalhava conectado a um reservatório de aço inoxidável completamente fechado. Assim, quando ocorria o

entupimento deste tubo (com diâmetro interno de 0,01 m) não se tinha indicação deste fato. Somente depois de horas de operação é que se percebia o problema, pois parte do corpo do reator na região do *freeboard*, que deveria ficar escura, apresentava-se incandescente. O nível do leito não aumentava de forma linear devido ao aumento simultâneo da taxa de elutrição. A solução para este problema foi a retirada do reservatório de aço inoxidável fechado e utilização de um reservatório aberto. Assim a drenagem de cinzas do leito era constantemente monitorada visualmente e, quando a drenagem era interrompida, prontamente se injetava ar comprimido no tubo de drenagem e o processo voltava ao normal. Este procedimento de injeção de ar comprimido foi necessário poucas vezes ao longo de muitos testes.

*Entupimento da linha de alimentação de carvão e calcário:* este problema foi devido ao aquecimento elevado da tampa cônica do reator onde está a entrada de carvão e calcário para o reator. Esse aquecimento ocorreu em consequência da elevação do nível do leito por entupimento do dreno, e pela combustão de voláteis e produtos de gaseificação quando se tentava operar o reator com altas taxas de alimentação de carvão. Com a tampa cônica em temperatura acima ou próxima de ignição do carvão, este sofria o processo de molhagem por alcatrão e aderiu na parede do tubo de alimentação até obstruí-lo completamente. Quando isto ocorria a temperatura do leito caía rapidamente e o teste era abortado.

#### 4. Materiais Particulados

O carvão utilizado é um carvão energético obtido do beneficiamento de carvão mineral da região de Criciúma-SC, denominado CE4500 (i.e. com poder calorífico superior de 4500 kcal/kg). O minério bruto é um carvão betuminoso com altos teores de cinzas e enxofre, e o CE4500 é obtido por britagem e lavagem deste carvão. O beneficiamento permite considerável redução dos teores de minerais inertes (principalmente sílico aluminosos) e de enxofre (principalmente sulfetos). O carvão CE4500 apresenta, em média, 35,36 % de carbono fixo, 22,13 % de voláteis, 42,52 % de cinzas e 2,39 % de enxofre.

O calcário utilizado como absorvente neste trabalho é o calcário de Ipeuna (SP), classificado como dolomítico, segundo a classificação dada por Malavolta (1981), i.e., contendo de 13 a 20 % de MgO no calcário calcinado. Seguindo a nomenclatura utilizada nos trabalhos desenvolvidos no NETeF, o calcário dolomítico de Ipeuna, é denominado por DP.

Areia é utilizada como material inerte do reator de leito fluidizado. Foi utilizada areia de quartzosa industrial (AG 30-40) doado pela Mineração Jundu Ltda., localizada em Descalvado (SP).

#### 5. Metodologia de Redução de Dados

Nos experimentos de combustão de carvão em reator de leito fluidizado mede-se concentrações de descarga de gases da combustão, e de entrada de gases no ar de fluidização. Entre estes gases estão SO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> e CO. Mede-se também concentrações de gases através do leito, usadas para determinar concentrações médias no volume do leito. A partir das medições determina-se a conversão e coeficiente global de taxa de reação na combustão do carbono fixo do carvão, e na sulfatação do calcário.

Segundo Ross e Davidson (1981), assume-se que o carbono do carvão seja oxidado para formar CO, que é posteriormente oxidado no meio fluidizado para gerar CO<sub>2</sub>. Para controle de combustão intrínseco, assume-se que apenas a concentração O<sub>2</sub> e a massa de carbono fixo limitem a taxa de reação. Da mesma forma, para controle de sulfatação intrínseco assume-se que apenas a concentração de SO<sub>2</sub> e a massa de calcário limitem a taxa de reação.

Em reatores de leito fluidizado, como o escoamento em torno de partículas reativas ocorre a baixos números de Reynolds, o transporte de massa externo é difusivo (Avedesian e Davidson, 1973). Para estabelecer taxas de reação sob controle externo, aplica-se a lei de difusão de Fick para descrever o transporte de gases no meio fluidizado (transportes de O<sub>2</sub> na direção de uma partícula individual de carvão, e de SO<sub>2</sub> na direção de uma partícula individual de calcário). Para a combustão, a taxa de reação sob controle externo será igual a taxa de consumo de O<sub>2</sub> na superfície externa das partículas de carvão. Para a sulfatação, a taxa de reação sob controle externo será igual a taxa de consumo de SO<sub>2</sub> na superfície externa das partículas de calcário.

Um parâmetro importante para análise de resultados de dessulfuração é a relação molar (cálcio+magnésio)/enxofre. Há considerável discussão na literatura relacionada à efetividade do Mg para absorção de SO<sub>2</sub> (ver, por exemplo, Crnkovic et al., 2006). Nos estudos realizados no NETeF têm-se considerado o Mg ativo em vista de evidências experimentais apontando para conversões superiores a 100 % quando a absorção pelo Mg é desconsiderada (Costa, 2000).

A relação  $(Ca+Mg)/S$  na alimentação do reator é dada por:

$$(Ca + Mg)/S = \frac{F_A \left( \frac{Y_{Ca}}{W_{Ca}} + \frac{Y_{Mg}}{W_{Mg}} \right)}{F_F \left( \frac{Y_S}{W_S} \right)} \quad (5)$$

A seguinte simbologia é utilizada na equação acima, e no equacionamento descrito nas seções seguintes:

$A$	Área da seção transversal do leito fluidizado, $m^2$
$C_i^s, C_i^e$	Concentrações do gás $i$ na descarga e na entrada do reator, $kmol/m^3$
$C_{i,\infty}$	Concentração do gás $i$ distante da superfície de uma partícula, $kmol/m^3$
$C_i^A, C_i^C$	Concentração do gás $i$ na descarga do reator, com e sem injeção de calcário, $kmol/m^3$
$F_F, F_A$	Taxas de alimentação de carvão e de calcário no reator, $kg/s$
$K_C, K_S$	Coefficientes globais de taxa de reação do carbono fixo do carvão e de sulfatação, $m/s$
$M_F, M_A$	Massas de carvão e de calcário no reator em regime permanente de operação, $kg$
$n_F, n_A$	Números de partículas de carvão e de calcário no reator em regime permanente de operação, $adm$
$r$	Raio de partícula, $m$
$\mathfrak{R}_C, \mathfrak{R}_{O_2}$	Taxas de reação para uma partícula de carvão, de C, $kmol_C/s$ , e de $O_2$ , $kmol_{O_2}/s$
$\mathfrak{R}_{SO_2}$	Taxa de absorção de $SO_2$ por uma partícula de calcário, $kmol_{SO_2}/s$
$R_C$	Taxa de consumo de carbono fixo no reator, $kmol_C/s$
$U$	Velocidade superficial de fluidização, $m/s$
$W$	Peso molecular, $kg/kmol$
$X_C, X_S$	Conversão de carbono fixo, $kmol_{C\text{ reagido}}/kmol_{C\text{ alimentado}}$ , e de calcário, $kmol_{SO_2\text{ absorvido}}/kmol_{Ca+Mg\text{ alimentado}}$
$Y$	Fração mássica, $adm$
$\eta_S$	Eficiência de absorção de enxofre no reator, $adm$
$\rho_F, \rho_A$	Densidade aparente do carvão e do calcário alimentados, $kg/m^3$

### 5.1. Combustão de carvão mineral

Define-se conversão de carbono fixo como a relação entre a sua taxa de consumo para formar  $CO + CO_2$ , e a sua taxa de alimentação no reator. Assim, tem-se:

$$X_C = \frac{UA \left[ (C_{CO}^s - C_{CO}^e) + (C_{CO_2}^s - C_{CO_2}^e) \right]}{F_F \left( \frac{Y_C}{W_C} \right)} \quad (6)$$

Considere-se a possibilidade de controle de taxa de reação por fatores intrínsecos (cinética química + transporte de massa de gases intra-partícula), externos (transporte de massa de gases no meio particulado) ou combinados. Correlações podem ser estabelecidas para a taxa de reação considerando cada uma destas condições.

Considerando-se o caso mais genérico de controle de taxa de reação combinado intrínseco/externo, a taxa de reação do carbono fixo de uma partícula de carvão pode ser expressa como:

$$\mathfrak{R}_C = 2\mathfrak{R}_{O_2} = 8\pi r^2 K_C C_{O_2,\infty} \quad (7)$$

A taxa de consumo de carbono fixo para todas as partículas de carvão do leito pode ser obtida de:

$$R_C = UA \left[ (C_{CO}^s - C_{CO}^e) + (C_{CO_2}^s - C_{CO_2}^e) \right] = n_C \cdot \mathfrak{R}_C \quad (8)$$

Assumindo um  $K_C$  médio efetivo para todas as partículas de carvão do leito, obtém-se

$$K_C = \frac{\rho_F r}{6M_F} UA \frac{(C_{CO}^s - C_{CO}^e) + (C_{CO_2}^s - C_{CO_2}^e)}{C_{O_2,\infty}} \quad (9)$$

Observa-se que  $C_{CO}^s, C_{CO}^e, C_{CO_2}^s$  e  $C_{CO_2}^e$  são diretamente medidos nos experimentos.  $C_{O_2,\infty}$  é determinado como o valor médio obtido de perfis de concentração de  $O_2$  medidos através do volume do reator.

### 5.2. Dessulfuração por calcário

Nos experimentos em reator de leito fluidizado mede-se concentrações de  $SO_2$  na descarga do reator. A partir das medições determina-se parâmetros taxa de conversão e coeficiente global de taxa de sulfatação de calcários. Define-se conversão do calcário como a relação entre a taxa de absorção de  $SO_2$  (ou de reação de  $Ca + Mg$ ), e a taxa de

alimentação de (Ca + Mg). Assim, obtém-se:

$$X_S = \frac{UA(C_{SO_2}^C - C_{SO_2}^A)}{F_A \left( \frac{Y_{Ca}}{W_{Ca}} + \frac{Y_{Mg}}{W_{Mg}} \right)} \quad (10)$$

No caso da dessulfuração, é também usual definir-se uma eficiência de remoção de SO<sub>2</sub> no reator, dada por:

$$\eta_S = \frac{(C_{SO_2}^C - C_{SO_2}^A)}{C_{SO_2}^C} \quad (11)$$

Considere-se a possibilidade de controle de taxa de reação por fatores intrínsecos, externos ou combinados. Correlações podem ser estabelecidas para a taxa de reação considerando cada uma destas condições. Da mesma forma que para a combustão do carvão, a taxa de absorção de SO<sub>2</sub> por uma partícula de calcário pode ser expressa como:

$$\mathfrak{R}_{SO_2} = 4\pi r^2 K_S C_{SO_2, \infty} \quad (12)$$

A taxa de absorção de SO<sub>2</sub> para todas as partículas de calcário do leito pode ser obtida de:

$$R_{SO_2} = UA(C_{SO_2}^C - C_{SO_2}^A) = n_A \cdot \mathfrak{R}_{SO_2} \quad (13)$$

Assumindo um  $K_S$  médio efetivo para todas as partículas de calcário do leito, obtém-se:

$$K_S = \frac{\rho_A r}{3M_A} UA \frac{(C_{SO_2}^C - C_{SO_2}^A)}{C_{SO_2, \infty}} \quad (14)$$

## 6. Resultados e Discussões

Anteriormente à partida do reator de leito fluidizado de bancada é necessário fazer toda a preparação do sistema experimental, tais como: a limpeza e montagem do sistema, preparação dos sólidos (carvão, calcário e areia), calibração (analisadores de gases, termopares e sistema de alimentação dos sólidos), etc. Esta preparação demanda aproximadamente cinco dias. Optou-se em trabalhar com faixas granulométricas abertas. Testes com alimentação contínua requererem maiores quantidades de materiais, comparando-se a testes em batelada, demandando muito tempo na preparação e separação dos particulados. As análises granulométricas dos materiais sólidos utilizados nos testes foram feitas previamente seguindo a descrição dada por Howard (1989), obtendo-se:

$$d_{m(\text{carvão})} \cong 0,383 \text{ mm}, \quad d_{m(\text{calcário})} \cong 0,718 \text{ mm} \quad \text{e} \quad d_{m(\text{areia})} \cong 0,410 \text{ mm}$$

As vazões mássicas de carvão e de calcário são dadas pelas curvas de calibração das respectivas válvulas rotativas. Aplica-se durante 60 s tensões variando-se de 0,5 em 0,5 V para cada sólido. Recolhe-se o material em um recipiente e pesa-se em seguida. Calcula-se a vazão mássica (em g/s) e plota-se *vazão mássica* × *tensão aplicada*, obtendo-se as equações de calibração através do ajuste linear dos pontos. As equações correspondentes são:

$$\dot{m}_{\text{carvão}} = -0,14977 + 0,09411 \cdot V \quad \text{e} \quad \dot{m}_{\text{calc}} = -0,0755 + 0,12323 \cdot V$$

Após todos os preparativos necessários, procedeu-se à execução do experimento. Inicialmente o leito é formado por 3 kg de areia, sendo esta massa fluidizada com ar aquecido até sua temperatura atingir 500 °C e velocidade superficial de 0,6 m/s. Nesta condição o carvão é adicionado no leito gradativamente até atingir-se uma temperatura em torno de 850 °C. Amostras dos gases de combustão emitidos na descarga são extraídas continuamente para os analisadores de gases que medem as concentrações de CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> e SO<sub>2</sub>. Atingida a condição de regime, adiciona-se calcário a uma taxa inicial constante. As cinzas são constantemente drenadas por um tubo que adentra ao leito, mantendo-se seu nível constante. O material elutriado retido no ciclone é drenado periodicamente.

O reator de bancada se comportou de maneira muito estável durante todos os testes. Não ocorreram problemas que comumente acontecem em testes com queima contínua de carvão mineral, como entupimento da alimentação contínua e formação de aglomerado no interior do leito. Realizaram-se quatro testes contínuos de absorção de SO<sub>2</sub> sendo que cada teste teve duração aproximada de 2 h (incluindo-se a estabilização das concentrações dos gases e temperatura, limpeza e troca de filtros de drenagem e retirada do material elutriado). Os parâmetros que se variou em cada teste foram as taxas de alimentação de calcário e carvão. Com isso obteve-se diferentes relações (Ca+Mg)/S. Na Fig.3 mostra-se o reator de leito fluidizado em operação. Nota-se a incandescência do reator durante a operação.

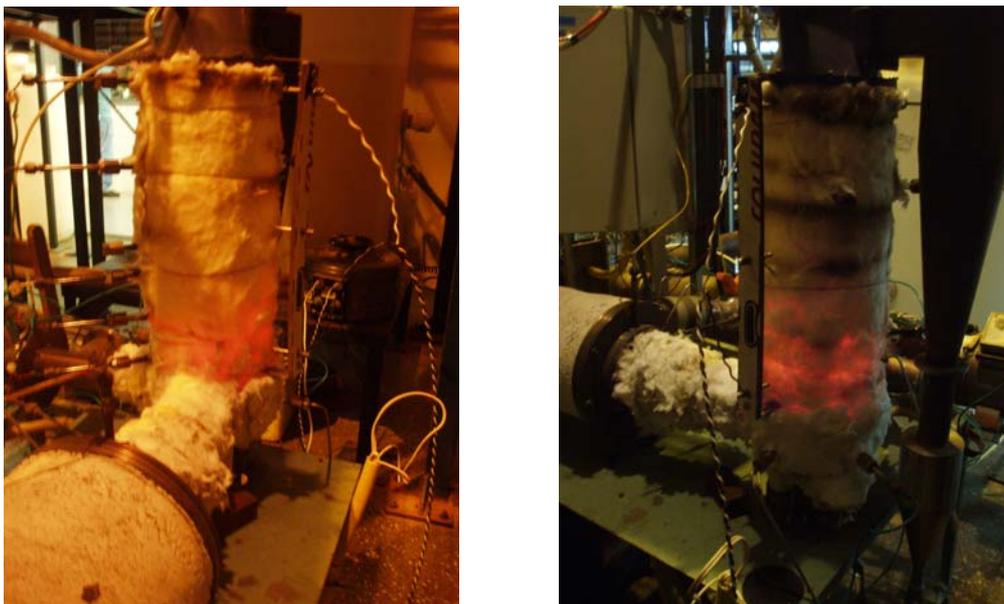


Figura 3. Reator de Leito Fluidizado de Bancada do NETeF em operação.

Na Fig. 4 apresenta-se os resultados obtidos nos quatro testes realizados, para as relações  $(Ca+Mg)/S$  consideradas.

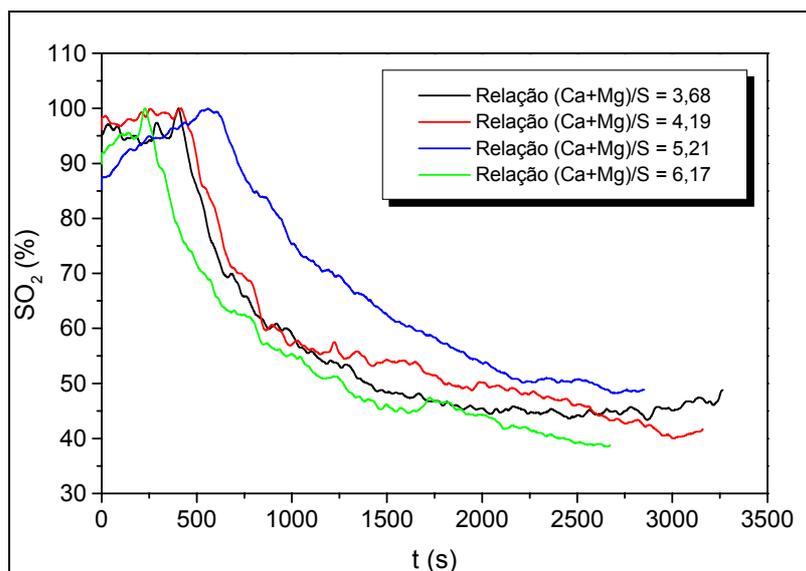


Figura 4. Variação da concentração de  $SO_2$  ( $C_{SO_2}$ ) na saída do reator de leito fluidizado de bancada do NETeF em função do tempo ( $t$ ).

Nota-se em todos os casos que inicialmente há altas concentrações de  $SO_2$ . Espera-se o sistema entrar em regime e que a concentração de  $SO_2$  registrado no analisador se estabilize para proceder à alimentação de calcário. A partir da alimentação do calcário nota-se diminuição na concentração de  $SO_2$  e novamente espera-se que a concentração de  $SO_2$  registrada no analisador fique aproximadamente estável.

Com a tensão aplicada calculou-se as vazões mássicas de carvão e calcário e obteve-se a relação de  $(Ca+Mg)/S$ . Os resultados são apresentados na Tab. 1. Observa-se que para os quatro testes só foi possível operar com relações  $(Ca+Mg)/S$  maiores de 3 devido à limitação de torque em rotação baixa do motor da válvula. Relações  $(Ca+Mg)/S$  menores que 3 levaram ao travamento da válvula rotativa.

Controlou-se a temperatura de operação para  $850\text{ }^\circ\text{C}$ . Durante a realização dos experimentos conseguiu-se manter a temperatura estabilizada oscilando em  $5\text{ }^\circ\text{C}$  em torno da temperatura de  $845\text{ }^\circ\text{C}$ . Em um único momento a temperatura atingiu um pico de  $905\text{ }^\circ\text{C}$  durante o processo de aquecimento do reator, já com alimentação de carvão. Neste momento, desligou-se o sistema de aquecimento de ar e abrindo-se de forma gradativa a válvula paralela para ar frio até a estabilização da temperatura ( $\approx 850\text{ }^\circ\text{C}$ ).

Tabela 1. Obtenção da Relação (Ca+Mg)/S

Testes	Tensões Aplicadas (V)		Vazão Mássica (g/s)		Relação (Ca+Mg)/S
	$T_{Carvão}$	$T_{Calcário}$	$\dot{m}_{calvão}$	$\dot{m}_{calcário}$	
1	5,5	1,5	0,3678	0,1093	3,68
2	5,8	1,7	0,3960	0,1339	4,19
3	5,5	2,1	0,3678	0,1832	6,17
4	5,6	1,9	0,3772	0,1586	5,21

□ - Dados Experimentais; □ - Dados Calculados

De acordo com a alimentação de carvão em cada teste, as concentrações de SO<sub>2</sub> na saída do reator, sem adição de calcário, variaram em torno de 800 ppm e 1010 ppm. Ajustou-se a velocidade de fluidização em torno de 0,65 m/s, sendo aproximadamente 6 vezes a velocidade mínima de fluidização ( $U_{mf}$  – Wen e Yu, 1966). As curvas e os dados de aquisição obtidos durante a operação do reator são apresentados na Fig. 4 e na Tab. 2 respectivamente.

Tabela 2. Resultados obtidos na aquisição de dados durante os testes.

Testes	$T_m^*$ (°C)	$U$ (m/s)	$C_{SO_2}^{SC}$ (ppm)	$C_{SO_2}^{CC}$ (ppm)	$\rho_{SO_2}$ (kg/m <sup>3</sup> )
1	846	0,639	801	352	0,6302
2	847	0,648	1008	412	0,6298
3	842	0,659	837	328	0,6326
4	848	0,664	846	413	0,6290

□ - Dados Experimentais; □ - Dados Calculados

(\*)  $T_m$  a temperatura média de cada teste.

O valor de  $U$  é dado pelo programa durante a aquisição sendo calculada a partir da diferença de pressão obtida com a placa de orifício com construção e algoritmo de cálculo segundo norma ASME, incluindo todos os fatores de correção previstos pela norma (Pagliuso, 1994).

Os valores de  $C_{SO_2}^{SC}$  e  $C_{SO_2}^{CC}$  são calculados após os experimentos, sendo dados pela média em torno do ponto de maior e menor concentração respectivamente.

De maneira geral a temperatura do leito variou pouco com a taxa de alimentação de calcário. Era de se esperar que a temperatura diminuísse com o aumento da taxa de alimentação de calcário, pois no início da alimentação o calcário frio que entra no leito tende a baixar sua temperatura. As Tab. 3 e 4 apresentam dados necessários aos cálculos.

Tabela 3. Dados gerais.

$m_{leito}$ (g)	$A$ (m <sup>2</sup> )	$\rho_{calc}$ (kg/m <sup>3</sup> )	$d_{m(cal)}$ (mm)	$r$ (m)
1087	0,0201	2850	0,718	0,000359

Tabela 4. Massa atômica ou molar e Fração molar dos sólidos

Massa Atômica ou Molar (kg kmol <sup>-1</sup> )			Fração (%)		
$W_{Ca}$	$W_{Mg}$	$W_S$	$Y_{Ca}$	$Y_{Mg}$	$Y_S$
40,08	24,31	32,1	0,1707	0,1173	0,0235

Considerando-se o calcário e carvão mineral utilizados no presente trabalho obteve-se os valores da conversão ( $X_S$ ), eficiência de absorção de SO<sub>2</sub> ( $\eta_S$ ) e coeficiente global de taxa de reação ( $K_S$ ) através das Eqs. (10), (11) e (14) respectivamente, nas condições experimentais do reator de leito fluidizado do NETeF. Os resultados são apresentados na Tab. 5.

Tabela 5. Resultados Obtidos.

Testes	$X_S$ ( $kmol_{SO_2}/kmol_{Ca+Mg}$ )	$K_S$ (m/s)	$\eta_S$ (%)
1	0,0571	0,0224	56,05
2	0,0627	0,0234	59,13
3	0,0400	0,0194	60,81
4	0,0394	0,0148	51,18

Costa (2005) realizou experimentos contínuos no reator de bancada do NETeF com relações (Ca+Mg)/S iguais a 2, 3, 4 e 5, e a temperatura de processo em torno de 900 °C. O autor obteve valores de taxa de conversão e de coeficiente global de reação relativamente próximos aos obtidos no presente estudo. Entretanto, nos testes de Costa (2005) o rendimento foi cerca de 30 % maior. Porém a concentração inicial de SO<sub>2</sub> nos testes de Costa (2005) foi aproximadamente o dobro da concentração inicial deste trabalho. Assim, observa-se que as concentrações iniciais de SO<sub>2</sub> influenciam significativamente nas taxas de reação e conseqüentemente nos resultados.

## 7. Conclusões

A eficiência dos processos de remoção de SO<sub>2</sub> nos reatores de leito fluidizado é fortemente influenciada pela concentração inicial dos gases do processo (dióxido de enxofre). Isto porque as concentrações iniciais dos reagentes influenciam as taxas de reação (cinética química).

O tempo de residência dos gases no reator, sendo este diretamente proporcional ao volume da massa contida no mesmo, influencia a conversão do processo. Quanto maior a massa do reator, maior a conversão e vice-versa.

Neste trabalho obtiveram-se conversões bastante baixas, que pode ser atribuído ao tempo de residência dos gases no leito ser bastante reduzido. Este problema pode ser corrigido aumentando-se a altura do leito.

## 8. Agradecimentos

Ao Núcleo de Engenharia Térmica e Fluidos (NETeF), da Escola de Engenharia de São Carlos (EESC) da Universidade de São Paulo (USP) pela infra-estrutura necessária ao desenvolvimento deste trabalho.

À FAPESP pelo apoio financeiro. (05/50152-5).

## 9. Referências

- Avedesian, M. M. and Davidson, J. F., 1973, "Combustion of carbon particles in a fluidised bed", *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, Vol. 51, pp. 121-131.
- Borgwardt, R. H.; Harvey, R. D., 1972, "Properties of carbonate rocks to SO<sub>2</sub> reactivity", *Env. Sc. Tech.*, 6, 350-360.
- Borgwardt, R.H., 1970, "Kinetics of the reaction of SO<sub>2</sub> with calcined limestone". *Environ. Sci. Technol.*, v. 4, nr.1, p.59-63.
- Camargo, F.L., 2001, "Qualificação de calcário brasileiro quanto à absorção de SO<sub>2</sub> em leito fluidizado para condições típicas de combustão de carvão", Dissertação de Mestrado, Universidade de São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos, v.1,p.54- 63.
- Costa, M. C. D., 2000, "Efeito da Temperatura sobre a Conversão e o Coeficiente de Taxa de Reação na Absorção de SO<sub>2</sub> por Calcário em Reator de Leito Fluidizado", Dissertação de Mestrado, EESC-USP, 174p.
- Costa, M.C.D., 2005, "Emissões poluentes na combustão em leitos fluidizados de carvão mineral", Tese de Doutorado, EESC-USP, 114p.
- Crnkovic, P. M., Milioli, F. E. and Pagliuso, J. D., 2006, "Kinetics study of the SO<sub>2</sub> sorption by Brazilian dolomite using thermogravimetry", *Thermochimica Acta* (accepted for publication).
- Davison, J.F and Harrison, D., 1993, "Fluidised Particles", Cambridge University Press, Cambridge-UK.
- Fuertes, A.B., Fernandez, M.J., 1995, "Kinetics of the calcium sulfate decomposition". *Trans. IChemE*, vol. 73, Part A.
- Lombardi, G., Pagliuso, J.D. and Goldstein Jr., L., 1997, "Performance of a tuyère gás distributor", *Powder Technology*, v.94, p. 5-14.
- Lyngfelt, A. and Leckner, B., 1989, "SO<sub>2</sub> capture in fluidized-bed boilers: re-emission of SO<sub>2</sub> due to reduction of CaSO<sub>4</sub>", *Chemical Engineering Science*, v.44, n.2 p.207-13.
- Malavolta, E., 1981, "Manual de Química Agrícola: Adubos e Adubação", 3.ed. São Paulo, Ed. Agronômica Ceres, 596p.
- Michels Jr., V., 2004, "Influência da temperatura na absorção de SO<sub>2</sub> por calcários na combustão em leito fluidizado de carvão mineral", Dissertação de Mestrado, EESC-USP, 111f.
- Pagliuso, J.D., 1994, "Determinação do coeficiente de transferência de calor em leito circulante: influência da distribuição granulométrica", Tese de Doutorado, EESC-USP, v.2, p.4.18-4.31.
- Pagliuso, J.D., Milioli, F.E., Crnkovic, P.M., Costa, M.L.D., Silva, G.F., Camargo, F.L., 2002, "Absorption of sulfur dioxide by different types of limestone in fluidized bed reactor and TGA". *AICHE Annual Meeting*, Indianápolis.
- Ross, I. B. and Davidson, J. F., 1981, "The combustion of carbon particles in a fluidised bed", *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, Vol. 59, pp. 108-114.
- Samaniego Lindo, J.E.S., 2003, "Efeito da concentração de SO<sub>2</sub> nas reações de calcinação e sulfatação de calcários em reator de leito fluidizado", Dissertação de Mestrado, EESC-USP, 116p.
- Silva, F.F da, 2003, "Efeito da distribuição granulométrica do calcário na absorção de SO<sub>2</sub> em reator de leito fluidizado", Dissertação de Mestrado, EESC-USP, 114p.
- Silva, G.F. da, 2001, "Efeito do tamanho médio de particulado sobre a conversão e o coeficiente global de taxa de reação na absorção de SO<sub>2</sub> por calcário em reator de leito fluidizado", Dissertação de Mestrado, Universidade de

São Paulo, Escola de Engenharia de São Carlos, v.1, p. 44-79.

Spitsbergen, U.; Vincent, C. J.; Longe, T. A., 1981, "Comparison of selected European limestones for desulphurization of gases from atmospheric fluidized bed combustion", *J. Inst. Energy*, 54, 94-99.

Süffert, T., 1997, "Carvão nos estados do Rio Grande do Sul e Santa Catarina", Porto Alegre: CPRM, p. 1-39.

Toomey, R. D. and Johnstone, H.F., 1952, "Gaseous fluidization of solid particles", *Chemical Engineering Progress*, v. 48, p. 220-226.

Van Houte, G.; Delmon, B., 1979, "Kinetics of reaction of CaCO<sub>3</sub> with SO<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> below 650 °C", *J. Chem. Soc. Faraday Trans. I.*, v.75, p.1593-1605.

Weidemann H.G., Boller, A., 1990, "Thermogravimetric studies of the reactions between dolomite and sulfur dioxide", *Solid State Ionics*, v.43, p.53-60.

Wen, C. Y. e Yu, Y. H., 1966, "A generalized method for predicting the minimum fluidization velocity", *AIChE Journal*, v.12, n.3, p. 610-612.

## **DESULFURATION STUDY IN THE PLANT FOR COAL COMBUSTION IN BED FLUIDIZED OF THE NETeF**

Pedro H. L. Paludo

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
pedropaludo@yahoo.com.br

Ivonete Ávila

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
iavila@sc.usp.br

Anderson A. U. Moraes

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
ubices@sc.usp.br

Julio E. Lindo Samaniego

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
jelindo@sc.usp.br

Manoel C. D. Costa

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
mccosta@sc.usp.br

Josmar D. Pagliuso

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
josmar@sc.usp.br

Fernando E. Milioli

Group and Thermal and Fluids Engineering, School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo, Av. Trabalhador São-carlense 400, 13566-590, São Carlos - SP, Brazil.  
milioli@sc.usp.br

### **Abstract**

Group and Thermal and Fluids Engineering (NETeF), School of Engineering of São Carlos, University of São Paulo (EESC-USP) develops researches on combustion of mineral coal and the absorption of SO<sub>2</sub> by limestones in fluidized bed. One of the experimental systems available for research is a bench scale plant to combustion in atmospheric bubbling fluidized bed that was projected and built in the own NETeF. This work shows the main details of construction and project of the plant, performed tests stages, occurred problems and solution obtained. The results of desulfuration experiments by limestone of mineral coal were obtained. A CE4500 energetic coal from Criciúma-SC was used, alongside with a dolomitic limestone from Ipeuna-SP. The parameters varied for analysis were the (Ca+Mg)/S feeding ratio and the time of residence of the limestone in the reactor. Gas concentrations were measured at the reactors exit (SO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> e CO<sub>2</sub>). The conversion and the global reaction rate coefficient for sulfur absorption by limestone were determined in a bench scale fluidized bed reactor. Discussions are showing about the results obtained regarding to emissions observed.

Keywords: dessulfuration; coal combustion; bed fluidized.

## AN ANALYTICAL AIR POLLUTION MODEL FOR WARM SOURCES

### Daniela Buske

Universidade Federal do Rio Grande do Sul – Programa de Pós Graduação em Engenharia Mecânica - PROMEC  
Sarmiento Leite, 425, 3º andar, CEP: 90046-900, Porto Alegre, RS, Brasil – Bolsista CNPq / CAPES  
[buske@mecanica.ufrgs.br](mailto:buske@mecanica.ufrgs.br)

### Marco Túlio de Vilhena

Universidade Federal do Rio Grande do Sul – Programa de Pós Graduação em Engenharia Mecânica - PROMEC  
Sarmiento Leite, 425, 3º andar, CEP: 90046-900, Porto Alegre, RS, Brasil  
[vilhena@mat.ufrgs.br](mailto:vilhena@mat.ufrgs.br)

### Davidson Martins Moreira

Universidade Federal do Rio Grande do Sul – Programa de Pós Graduação em Engenharia Mecânica - PROMEC  
Sarmiento Leite, 425, 3º andar, CEP: 90046-900, Porto Alegre, RS, Brasil  
[davidson@mecanica.ufrgs.br](mailto:davidson@mecanica.ufrgs.br)

### Tiziano Tirabassi

Istituto ISAC of CNR, Bologna, Italy – Bolsista CAPES  
[t.tirabassi@isac.cnr.it](mailto:t.tirabassi@isac.cnr.it)

**Abstract.** *In this work we present the GILTT method for the solution of the transient two-dimensional advection-diffusion equation incorporating the plume rise effect (warm source) using the approach proposed by Briggs (1975). A correct estimation of buoyant plume rise is one of the basic requirements for the determination of ground-level concentrations of airborne pollutant emitted by industrial stacks. This improvement turns out a more operative model. To investigate the performances of the model with the plume rise effect, we report numerical simulations of the ground-level centerline concentrations compared with the observed concentrations measured during the Kinkaid experiment.*

**Keywords:** *GILTT, Analytical Solution, Advection-Diffusion equation, Atmospheric Dispersion, Warm Sources.*

## 1. Introduction

Eulerian approach for modelling the statistical properties of the concentrations of contaminants in a turbulent flow as the Planetary Boundary Layer (PBL) is widely used in the field of air pollution studies. Despite well known limits, the K-closure is largely used in several atmospheric conditions because it describes the diffusive transport in an Eulerian framework where almost all measurements are Eulerian in character, it produces results that agree with experimental data as well as any more complex model, and it is not computationally expensive as higher order closures are.

The advection-diffusion equation has been widely applied in operational atmospheric dispersion models to predict ground-level concentrations due to low and tall stacks emissions. Analytical solutions of equations are of fundamental importance in understanding and describing physical phenomena, since they are able to take into account all the parameters of a problem, and investigate their influence.

In the last years (Tirabassi, 2003) special attention has been devoted to the task of searching analytical solutions for the advection-diffusion equation. Recently, the Generalized Integral Laplace Transform Technique (GILTT method) has been applied for the simulation of pollutant dispersion in the atmosphere by solving analytically the two-dimensional diffusion-advection equation assuming non-homogeneous conditions. (Moreira et al., 2006). We applied the above approach in this paper. The main steps of this method comprehend: reduction of the time-dependent problem to a stationary by the applications of the Laplace transform technique, construction of an auxiliary Sturm-Liouville problem associated to the stationary problem, expansion of the contaminant concentration in a series in terms of the obtained eigenfunctions, replacement of this expansion in the original problem. Finally, taking moment, we come out with a set of ordinary differential equations which are then solved analytically by the Laplace transform technique. The time-dependent concentration is obtained by inverting numerically the solution of the stationary problem by the Gaussian quadrature scheme.

In this work we step forward incorporating the plume rise effect (warm source) in the model using the approach proposed by Briggs (1975). A correct estimation of buoyant plume rise is one of the basic requirements for the determination of ground-level concentrations of airborne pollutant emitted by actual industrial stacks. This improvement turns out a more operative model. To investigate the influence of the plume rise effect, we report numerical simulations of the ground-

level crosswind integrated centerline concentrations compared with the observed concentrations measured during the Kinkaid experiment (Hanna and Paine, 1989).

To reach this goal, we outline the paper as follows: in section 2, we report the derivation of the GILTT solution for the transient two-dimensional advection-diffusion equation. In section 3 the turbulent parameterisations assumed in this work are presented. In section 4, the plume rise approach is presented. The numerical results attained by the analytical method are reported as well the comparison with experimental data are presented in section 5, and finally in section 6, the conclusions.

## 2. The GILTT method

Let us consider the crosswind integrated time dependent advection-diffusion equation with advection in the  $x$  direction (as usual, the along-wind diffusion is neglected because considered little in respect to the advection):

$$\frac{\partial c(x,z,t)}{\partial t} + U \frac{\partial c(x,z,t)}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial z} \left( K_z \frac{\partial c(x,z,t)}{\partial z} \right), \quad (1)$$

where  $c$  denotes the crosswind integrated concentration,  $K_z$  is the vertical eddy diffusivity and  $U$  is the component longitudinal of the wind speed. Equation (1) is subjected to the boundary conditions of zero flux at the ground and PBL top, and a source with emission rate  $Q$  at height  $H_s$ :

$$K_z \frac{\partial c(x,z,t)}{\partial z} = 0 \quad \text{at } z = 0, z = h \quad (1a)$$

$$Uc(0,z,t) = Q \delta(z - H_s) \quad \text{at } x = 0 \quad (1b)$$

and also assume that at the beginning of the pollutant releasing the dispersion region is not polluted, we mean:

$$c(x,z,0) = 0 \quad \text{at } t = 0, \quad (1c)$$

where  $h$  is the PBL height. In the sequel we consider that  $K_z$ , the wind speed  $U$  depend only on the variable  $z$ .

Using the Laplace Transform technique, transforming  $t$  into  $s$  and  $c$  into  $C$ , we have:

$$U \frac{\partial C(x,z,s)}{\partial x} = K_z \frac{\partial^2 C(x,z,s)}{\partial z^2} + K_z' \frac{\partial C(x,z,s)}{\partial z} - sC(x,z,s). \quad (2)$$

Now we are in position to solve the stationary problem (2) by the GILTT approach. Firstly, we expand the pollutant concentration in the series:

$$C(x,z,r) = \sum_{i=0}^N \bar{c}_i(x,r) \zeta_i(z), \quad (3)$$

where  $\zeta_i(z)$  and  $\lambda_i$  are the respective eigenfunctions ( $\zeta_i(z) = \cos(\lambda_i z)$ ) and eigenvalues ( $\lambda_i = \frac{i\pi}{h}$  for  $i = 0, 1, 2, 3, \dots$ ) of

a associated Sturm-Liouville problem. Following the procedure adopted in Wortmann et al. (2005) and Moreira et al. (2005), we replace the above ansatz in Eq. (2) and by taking moments we get:

$$\sum_{i=0}^N \left[ \bar{c}_i'(x,r) \int_0^h U \zeta_i(z) \zeta_j(z) dz + \lambda_i^2 \bar{c}_i(x,r) \int_0^h K_z \zeta_i(z) \zeta_j(z) dz - \bar{c}_i(x,r) \int_0^h K_z' \zeta_i(z) \zeta_j(z) dz + r \bar{c}_i(x,r) \int_0^h \zeta_i(z) \zeta_j(z) dz \right] = 0. \quad (4)$$

Rewriting Eq. (4) in matrix fashion, we obtain:

$$Y'(x,r) + FY(x,r) = 0, \quad (5)$$

where  $Y(x, r)$  is the column vector whose components are  $\bar{c}_i(x, r)$  and the matrix  $F$  is defined like  $F = B^{-1}E$ . The matrices  $B$  and  $E$  are respectively given by:

$$b_{i,j} = \int_0^h U \zeta_i(z) \zeta_j(z) dz \quad (6a)$$

and

$$e_{i,j} = -\int_0^h K'_z \zeta'_i(z) \zeta_j(z) dz + \lambda_i^2 \int_0^h K_z \zeta_i(z) \zeta_j(z) dz + r \int_0^h \zeta_i(z) \zeta_j(z) dz \quad (6b)$$

The transformed problem represented by the Eq. (5) is solved by the Laplace Transform technique and diagonalization and his solution is (Wortmann et al., 2005; Moreira et al., 2005):

$$Y(x, r) = X.G(x, r).\xi \quad (7)$$

where  $\xi$  is the integration constant vector,  $G$  is the diagonal matrix with elements have the form  $e^{-d_i x}$ ,  $X$  is the eigenfunction matrix and  $d_i$  are the eigenvalues of the matrix  $F$ . Therefore, the transformed solution given by Eq. (3) is well determined.

Finally, the time dependent concentration is obtained by inverting numerically the transformed concentration  $C(x, z, r)$  by a Gaussian Quadrature scheme:

$$c(x, z, t) = \sum_{k=1}^M \frac{P_k}{t} A_k \sum_{i=0}^N \bar{c}_i(x, \frac{P_k}{t}) \zeta_i(z) \quad (8)$$

where  $A_k$  and  $P_k$  are the weights and roots of the Gaussian quadrature integration scheme and are tabulated in the book by Stroud and Secrest (1966).

It is important to recall that the solution of problem (1) given by equation (8), is analytical, in the sense that no approximation is made along its derivation, except for the Laplace numerical inversion and round-off error. Regarding the issue of Laplace numerical inversion, it is important to mention, that this approach is exact if the transformed function is a polynomial of degree  $2M-1$  in the  $1/s$  variable. Furthermore, we must point out that we specialize this application, without loss of generality for an eddy diffusivity coefficient depending only on the  $z$  variable.

### 3. Turbulent Parameterizations

In the atmospheric diffusion problems the choice of a turbulent parameterization represents a fundamental decision for the pollutants dispersion modeling. From a physical point of view the turbulence parameterization is an approximation to the nature in the sense that we are putting in mathematical models an approximated relation that in principle can be used as a surrogate for the natural true unknown term. The reliability of each model strongly depends on the way as turbulent parameters are calculated and related to the current understanding of the PBL (Mangia *et al.*, 2002).

The lateral dispersion parameter  $\sigma_y$  is important to calculate the concentration in the ground-level centerline concentration:

$$C(x, 0, 0) = \frac{c(x, 0)}{\sqrt{2\pi}\sigma_y} \quad (9)$$

where in this study the ground-level cross-wind integrated concentration in the Eq. (9) is calculated employing the GILTT model ( Eq. (8)).

The lateral dispersion parameter  $\sigma_y$  for a CBL derived by Degrazia et al. (1998) presents the following form:

$$\frac{\sigma_y^2}{z_i^2} = \frac{0.21}{\pi} \int_0^\infty \sin^2(2.26\psi^{1/3} Xn') \frac{dn'}{(1+n')^{5/3} n'^2} \quad (10)$$

where  $X$  is a nondimensional distance ( $X = xw_*/Uz_i$ ),  $w_*$  is the convective velocity scale and  $z_i$  is the top of the PBL.

The Eq. (10) contain the unknown function  $\psi$ , the molecular dissipation of turbulent velocity is a leading destruction terms in equations for the budget of second-order moments, and according Højstrup (1982), has the form:

$$\psi^{1/3} = \left[ \left( 1 - \frac{z}{z_i} \right)^2 \left( \frac{z}{-L} \right)^{-2/3} + 0.75 \right]^{1/2}, \quad (11)$$

where  $L$  is the length of Monin-Obukhov.

In terms of the convective scaling parameters the vertical eddy diffusivity can be formulated as (Degrazia *et al.*, 1997):

$$\frac{K_z}{w_* z_i} = 0.22 \left( \frac{z}{z_i} \right)^{1/3} \left( 1 - \frac{z}{z_i} \right)^{1/3} \left[ 1 - \exp\left( -\frac{4z}{z_i} \right) - 0.0003 \exp\left( \frac{8z}{z_i} \right) \right]. \quad (12)$$

The wind speed profile used has been parameterized following the similarity theory of Monin-Obukhov and “OML” model (Berkowicz *et al.*, 1986):

$$U = \frac{u_*}{k} \left[ \ln(z/z_0) - \Psi_m(z/L) + \Psi_m(z_0/L) \right], \quad \text{if } z \leq z_b, \quad (13)$$

$$U = U(z_b), \quad \text{if } z > z_b, \quad (14)$$

where  $z_b = \min[L, 0.1z_i]$ , and  $\Psi_m$  is a stability function given by (Paulson, 1970).

Thus, in this study we introduce the vertical eddy diffusivity (Eq. (12)) and wind profile (Eq. (13) and (14)) in the GILTT model (Eq. (8)) to calculate the ground-level crosswind integrated concentration. Finally, these crosswind integrated concentration and the lateral dispersion parameter (Eq. (10)) will be introduced into Eq. (9) to simulate the ground-level centerline concentrations of buoyant emissions released from an elevated continuous source point in an unstable PBL.

#### 4. Plume rise

A correct estimation of buoyant plume rise is one of the basic requirements for the determination of ground level concentrations of airborne pollutant emitted by industrial stacks. In fact, maximum ground level concentration is roughly inversely proportional to the square of the final height  $h_e$ . For this reason, in many simple dispersion models, stack gases are assumed to be emitted from a virtual source located at height  $h_e$  along the vertical above the stack. The effective plume height  $h_e$  (elevation of plume centerline relative to ground level) results from the sum of stack height  $H_s$  and plume rise  $\Delta h$ :

$$h_e = H_s + \Delta h. \quad (15)$$

Some formula provide the plume rise as a function of the distance, but most of them provide a constant value (final plume rise) that the plume reaches at a large downwind distance. These formula contain height depending atmospheric variables normally specified at the stack outlet height.

Several studies and review works have provided semiempirical formula for evaluating  $\Delta h$  (e.g., Briggs, 1975; Stern, 1976; Hanna *et al.*, 1982; and many others). Others researchers have provided more complex and comprehensive descriptions of several physical interactions between the plume and the ambient air (e.g., Golay, 1982; Netterville, 1990). Relevant and exhaustive review papers on the plume rise subject can be found in the literature, for instance, Briggs (1975) and Weil (1988). In this work, we are utilizing the formula of Briggs (1975) applied by Moreira (2000).

Briggs (1975) made a distinction between neutral and unstable conditions accounting for the effects of ambient turbulence on the plume rise. While self-generated turbulence affects the entrainment process near the source, ambient turbulence (with both small and large scale eddies) becomes important further downwind. Small scale eddies, are responsible for the increase of the plume growth rate beyond that given by self-induced turbulence. The breakup model (Briggs, 1975; Weil, 1988) assumes that plume rise finishes when ambient turbulence “breaks up” the self-generated structure of the plume, causing a vigorous mixing, and, consequently, gradually loses buoyancy and momentum and eventually level off. Thus, this process leads to an asymptotic rise. According to Briggs, the plume breakup occurs when the ambient rate of dissipation of turbulent kinetic energy,  $\epsilon_a$ , exceeds the one of the plume  $\epsilon$ . Large scale eddies

(updrafts and downdrafts in the convective boundary layer (CBL)) may transport plume segments up and down, thereby dispersing the plume by vertical meandering and pushing some of them to the surface. When this happens, the time averaged ground level concentration is more dependent on how many times, during the averaging period, the plume touches the ground than on the height of the asymptotic rise. As a consequence, in the CBL case, the leading parameter is assumed to be the surface sensible heat flux, which plays the major role in the development of updrafts and downdrafts.

In strong convection ( $z_i/L > 10$ ) the model “breaks up” has a final behavior given for:

$$\Delta h = 4.3 \left( \frac{F}{Uw_*^2} \right)^{3/5} z_i^{2/5}, \quad (16)$$

where the rate of ambient dissipation is assumed to be  $0.1 \frac{w_*^3}{z_i}$ . The buoyancy parameter  $F$  is given for:

$$F = gV_i r_i^2 \frac{(T_i - T_a)}{T_i}, \quad (17)$$

where  $V_i$  and  $T_i$  are the vertical velocity and temperature, respectively, in the exit of the chimney,  $T_a$  is the ambient temperature,  $g$  the acceleration of the gravity and  $r_i$  is the radius of the source. The model defines a “touchdown” for moderate convective conditions predicts the behavior of the plume for:

$$\Delta h = 1.0 \left( \frac{F}{Uw_d^2} \right) \left( 1 + \frac{2H_s}{\Delta h} \right)^2, \quad (18)$$

where  $w_d$  is the medium speed of the downdrafts, considered as  $w_d = 0.4w_*$ . The resulting equation is iteratively solved for  $\Delta h$ . In neutral stability, the “breaks up” model predicts the following behavior:

$$\Delta h = 1.3 \frac{F}{Uu_*^2} \left( 1 + \frac{H_s}{\Delta h} \right)^{2/3}. \quad (19)$$

In this work, the penetration of the plume is not considered due to the boundary conditions of the K-model. Then, if the plume is completely prey, Weil (1979) suggests that the restriction geometric limit for  $\Delta h$  is:

$$\Delta h = 0.62(z_i - H_s). \quad (20)$$

In certain cases, Briggs (1975) recommends to use the formulae that provides the minimum plume rise; this result is “the most conservative”, since it gives rise to the maximum values of concentration expected at the ground, thus limiting the risk of a possible underestimation. Then, the formulas can be summarized as it proceeds:

$$\Delta h = \min(\text{Eqs. 16, 18, 19, 20}). \quad (21)$$

## 5. Experimental data and Results

The performance of the GILTT model has been evaluated against experimental ground level concentration using experimental data from dispersion experiments carried out in Kinkaid, Illinois, USA. The Kincaid field campaign (Bowne and Londergan, 1981) concerns an elevated release in a flat farmland with some lakes. During the experiment, SF<sub>6</sub> was released from 187 tall stacks and recorded on a network consisting of roughly 200 samplers positioned in arcs from 0.5 to 50 km downwind of the source. The data set includes the meteorological parameters as friction velocity, Obukhov-Monin length and height of boundary layer. The measured concentration levels is frequently irregular, with high and low concentrations occurring intermittently along same arc, moreover there are frequent gaps in the monitoring arcs. For the above reasons a variable has been assigned as a quality factor in order to indicate the degree of readability of data (Olesen, 1995). The quality indicator (from 0 to 3) has been assigned. Here, only the data with quality factor 3 were considered. A complete description of the experiment is found in the work of Hanna and Paine (1989) relatively only convective condition (for  $z_i/L > 10$ ). The meteorological parameters were derived using

preprocessing methods. Observed mixing heights were determined by interpretation of radiosonde data. The distributed dataset contains hourly mean values of concentrations and meteorological data. The time dependence in the model was evaluated with hourly average concentration (time resolution of 10 min) in the sampling period.

Figure 1 shows the observed and predicted scatter diagram of ground-level centerline concentrations using the GILTT model for the Kinkaid experiment. In this respect, it is important to note that the GILTT model reproduce fairly well the observed concentration.

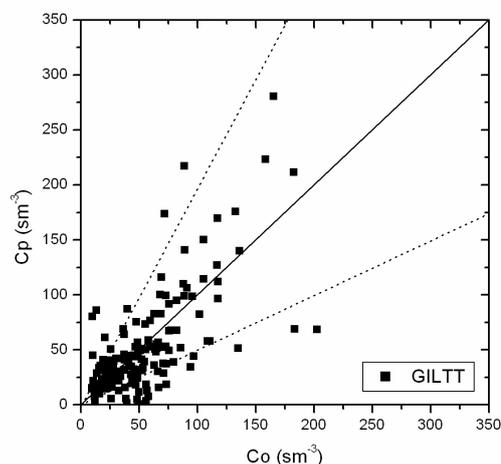


Figure 1. Observed ( $C_o$ ) and predicted ( $C_p$ ) crosswind ground-level integrated concentration scatter diagram for the GILTT model. Dotted lines indicate a factor of two.

The datasets were applied subsequently to the following statistical indices (Hanna, 1989):

$$\text{NMSE (normalized mean square error)} = \frac{\overline{(C_o - C_p)^2}}{\overline{C_o C_p}},$$

$$\text{FA2 = fraction of data (\%)} \text{ for } 0.5 \leq (C_p / C_o) \leq 2$$

$$\text{R (correlation coefficient)} = \frac{\overline{(C_o - \overline{C_o})(C_p - \overline{C_p})}}{\sigma_o \sigma_p},$$

$$\text{FB (fractional bias)} = \frac{\overline{C_o} - \overline{C_p}}{0.5(\overline{C_o} + \overline{C_p})},$$

$$\text{FS (fractional standard deviations)} = \frac{(\sigma_o - \sigma_p)}{0.5(\sigma_o + \sigma_p)}$$

where subscripts  $o$  and  $p$  refer to observed and predicted quantities, respectively,  $\sigma$  the standard deviation and an overbar indicates an average.

The results of the statistical indices for the GILTT model are compared with those obtained from a Gaussian model (Moreira et al., 2004) and are shown in Tab. 1. The statistical indices point out that a good agreement is obtained between the Gaussian and GILTT model, although the statistical indices indicate that the GILTT reproduces more adequately the observed ground-level centerline concentrations (in particular fit the Kinkaid data set, where data are more numerous and difficult to be model by dispersion models).

Table 1. Results of statistical indices used to evaluate the model performance.

Model	NMSE	R	FA2	FB	FS
<b>GILTT</b>	0.40	0.69	0.75	0.05	-0.22
<b>Gaussian</b>	0.54	0.61	0.74	0.33	0.20

## 6. Conclusion

In this work we present numerical simulations of pollutants diffusion released from a buoyant source, by the GILTT model. In the model we consider the dispersion parameters and eddy diffusivities described in terms of the energy-containing eddies.

The statistical analysis of the results shows a good agreement between the results of the proposed approach with the experimental data of the Kinkaid experiment and the Gaussian results. We promptly realize also that the GILTT might yield better results than Gaussian (that shows good results either) approach. Bearing in mind that in Gaussian model the turbulence is assumed homogeneous and constant dispersion parameters, we are confident that

this fact explains the better performance of the GILTT model. Indeed, in the GILTT approach we consider the parameterization derived by Degrazia et al. (1997, 1998) for nonhomogeneous turbulence having a dependence on the vertical distance  $z$ . Now, we would like to stress that from above discussion, the GILTT model is a robust method, under computational point of view, to simulate the pollutant dispersion in the PBL. This argument is reinforced by the comparable computation effort between the GILTT and Gaussian solutions besides their analytical features. Finally, we will focus our future attention in the solution of the GILTT incorporating simple chemical pollutant reactions as source term, in order to make this solution an operational model to air quality simulation.

## 7. Acknowledgement

The authors thank to CNPq and CAPES for the partial financial support of this work.

## 8. References

- Berkowicz, R.R., Olesen, H.R. and Torp U., 1986, "The Danish Gaussian air pollution model (OML). Description, test and sensitivity analysis in view of regulatory applications", Air Pollution modeling and its application. Edited by C. De Wispelaere, F.A. Schiermeier and N.V. Gillani, Plenum Publishing Corporation, pp. 453-480.
- Briggs, G.A., 1975, "Plume Rise Predictions, Lectures on Air Pollution and Environmental Impact Analyses", D.A. Haugen ed., Amer. Meteor. Soc., Boston, MA, pp. 59-111.
- Degrazia, G.A., Campos Velho, H.F. and Carvalho, J.C., 1997, "Nonlocal exchange coefficients for the convective boundary layer derived from spectral properties", *Contr. Atmos. Phys.*, pp. 57-64.
- Degrazia, G.A., Mangia, C. and Rizza U., 1998, "A comparison between different methods to estimate the lateral dispersion parameter under convective conditions", *J. Appl. Meteor.*, Vol. 37, pp. 227-231.
- Golay, M.W., 1982, "Numerical modeling of buoyant plumes in a turbulent stratified atmosphere", *Atmos. Environ.*, Vol. 16, pp. 2373-2381.
- Hanna, S.R., Briggs, G.A. and Jr. Hosker, R.P., 1982, "Handbook on atmospheric diffusion", Prepared for the Office of Health and Environmental Research, Office of Energy Research, U.S. Department of Energy, DOE/TIC 11223, J.S. Smith, Publication Editor.
- Hanna, S.R., 1989, "Confidence limit for air quality models as estimated by bootstrap and jackknife resampling methods", *Atmos. Environ.*, Vol. 23, pp. 1385-1395.
- Hanna, S.R. and R.J. Paine, 1989. "Híbrido Plume Dispersion Model (HPDM) development and evaluation", *J. Appl. Meteorology*, Vol. 28, pp. 206-224.
- Højstrup, J., 1982, "Velocity spectra in the unstable boundary layer", *J. Atmos. Sci.*, Vol. 39, pp. 2239-2248.
- Mangia, C., Moreira, D.M., Schipa, I., Degrazia, G.A., Tirabassi, T. and Rizza, U., 2002, "Evaluation of a new eddy diffusivity parameterization from turbulent Eulerian spectra in different stability conditions", *Atmos. Environ.*, Vol. 36, pp. 67-76.
- Moreira, D.M., 2000, "Modelo Euleriano semi-analítico de difusão turbulenta de contaminantes", Ph.D. thesis. Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, Brazil, 88 pp. In Portuguese.
- Moreira, D.M., Santos, D.P., Carvalho, J.C., Vilhena, M.T., Degrazia, G.A. and Tirabassi, T., 2004, "A solution of the steady K-diffusion equation for ABL dispersion in inhomogeneous turbulence with plume rise", *Revista Brasileira de Meteorologia*, Vol. 19, No. 2, pp. 113-122.
- Moreira, D.M., Vilhena, M.T., Tirabassi, T., Buske, D. and Cotta, R., 2005, "Near source atmospheric pollutant dispersion using the new GILTT method", *Atmos. Environ.*, Vol. 39, No. 34, pp. 6290-6295.
- Moreira, D.M., Vilhena, M.T., Buske, D. and Tirabassi, T., 2006, "The GILTT solution of the advection-diffusion equation for an inhomogeneous and nonstationary PBL", *Atmos. Environ.*, Vol. 40, pp. 3186-3194.
- Netterville, D.D.J., 1990, "Plume rise, entrainment and dispersion in turbulent winds", *Atmos. Environ.*, Vol. 24, pp. 1061-1081.
- Paulson, C.A., 1970, "The mathematical representation of wind speed and temperature profiles in unstable atmospheric surface layer", *J. Appl. Meteor.*, Vol. 9, pp.857-861.
- Stern, A.C., 1976, "Air pollution", Vol. I. 3<sup>rd</sup> Edition. Academic Press, New York, USA.
- Stroud, A.H. and Secrest, D., 1966, "Gaussian Quadrature Formulas", Englewood Cliffs, N.J., Prentice Hall, Inc.
- Weil, J.C., 1979, "Assessment of plume rise and dispersion models using LIDAR data, PPS-24", Prepared by Environmental Center, Martin Marietta Corporation, for Maryland Department of Natural Resources.
- Weil, J.C., 1988. "Plume Rise", In: *Lectures on Air Pollution Modeling*. A. Venkatram and J.C. Wyngaard, Eds. Amer. Meteor. Soc., Boston, pp. 119-166.
- Wortmann, S., Vilhena, M.T., Moreira, D.M. and Buske, D., 2005, "A new analytical approach to simulate the pollutant dispersion in the PBL", *Atmos. Environ.*, Vol. 39, No. 12, pp. 2187-2194.
- Olesen H.R., 1995, "Datasets and protocol for model validation", *Int. J. Environment and Pollution*, Vol. 5, pp.693-701.
- Bowne N.E. and Londergan R.J., 1989, "Overview, result and conclusions for the EPRI plume model validation and development project: plane site", EPRI report EA-3074

**6. Copyright Notice**

The authors are the only responsible for the printed material included in his paper.

# REGIONAL WASTEWATER TREATMENT FACILITIES OPTIMIZATION BY SIMULATED ANNEALING

## **Enéas Souza Machado**

Universidade de São Paulo, Departamento de Hidráulica e Saneamento, Cidade Universitária, SP.  
sm.eneas@gmail.com

## **Monica Porto**

Universidade de São Paulo, Departamento de Hidráulica e Saneamento, Cidade Universitária, SP.  
mporto@usp.br

## **Eloy Kaviski**

Universidade Federal do Paraná, Departamento de Hidráulica e Saneamento, Centro Politécnico, Curitiba, PR.  
eloy.dhs@ufpr.br

## **Clarissa Scuissiato**

Universidade Federal do Paraná, Departamento de Hidráulica e Saneamento, Centro Politécnico, Curitiba, PR.  
clascui@pop.com.br

**Abstract.** Regional wastewater treatment systems are widely applied in urban regions, due to economic scale it provides. Since there is a large number of effluent discharges as well as potential sites for the location of treatment facilities, traditional engineering techniques can handle just a few of the possibilities of locating such facilities, sometimes missing the optimal facilities location, in terms of budget minimization. Traditional optimization techniques have been applied to this engineering problem, such as linear or non linear programming. This paper shows some initial results of applying simulated annealing, a metaheuristic derived from statistical mechanics, as an optimization tool for locating wastewater treatment facilities. The results show the potential possibilities of using such technique with near optimal results in a reasonable computer time.

**Keywords.** *simulated annealing, optimization, wastewater treatment systems.*

## **1. Introduction**

One of the main environmental problems in less developed countries is the lack of adequate urban sewerage and sewage treatment, leading to poor water quality in rivers near urban and metropolitan areas. In Brazil, since such sewage works have not been built in the past decades, the estimated budget to cover the sanitary deficit is as high as R\$150 billions until 2015.

Since the end of the Planasa (Brazilian's National Plan for Sanitary Works) in the late seventies, the country still doesn't have an institutional and financial arrangement for handling such a huge problem. Some bills have been discussed in the Congress, and sooner or later, the country will have to find an adequate framework for the problem. Independently of the political model to be chosen, the financial challenge will have to take into account least cost optimal regional solutions.

Economies of scale are an important characteristic of regional sewage works and engineers must seek a proper design of such regional works. Traditional engineering techniques are not adequate, since they can handle only a few alternatives. Instead, it is necessary to apply optimization procedures to facilitate the study of a large number of alternatives. The problem is that the objective function and the restraints lead to non linear equations. Real world problems contain hundreds of restraints that are very difficult and time consuming to be solved by traditional optimization techniques such as Non Linear Programming.

This paper presents the formulation of the problem and its solution by use of simulated annealing (SA). SA is a metaheuristic technique that has been applied in the water resources field in the last years, with promising results. SA algorithm is presented and an application is showed and compared with traditional optimization results. A sensitivity analysis of SA parameters is also presented.

## **2. Literature Review**

Optimization models begun to be applied to regional water quality problems in the mid 1960s. Examples of such early models are Deininger (1965), Kerri (1966) and ReVelle, Loucks and Lynn (1967), all of them using Linear Programming. These first studies were applied to individual sewage treatment plants, and seek the minimum treatment efficiency in each plant to meet effluent standards or water quality objectives. Other optimization models have been widely used. Dynamic Programming was applied by Liebman and Lynn (1966), Converse (1972) and Rossmann (1978). Ecker (1975) and McNamara (1976) used Geometric Programming. Integer programming, with the decision to build or not a sewage treatment plant, has been widely used: Chang, Chen e Yang (1997), Chang, Brill, Jr. e Hopkins (1982) and Zhu and ReVelle (1988). Due to non-linearities of the problem, Non Linear Programming has also been extensively used: Nakamura e Brill, Jr. (1979), Ong (1983) and Carmichael e Strzepek (2000). These later studies deal

with regional treatment plants, where the objective is the size and location of the plants, some of them linked with a water quality simulation model to study water characteristics such as Dissolved Oxygen and Biological Oxygen Demand.

Recently the so-called metaheuristics models have been applied to solve complicated models such as the one here described. Burn and Yulanti (2001) applied a genetic algorithm to solve a multiobjective location model for sewage treatment plants. Mujumdar and Vemula (2004) also applied genetic algorithm along with fuzzy sets to study multiple and conflicting objectives, with the variables treated as fuzzy ones. Cunha and Ribeiro (2004) used a tabu search algorithm for water network optimization. The same problem was solved by simulated annealing by Cunha and Souza (1999). The same metaheuristic has been used for siting and sizing regional sewage treatment plants: Souza et al. (2002) developed a model based on optimization by annealing, coupled with a GIS interface. The model was further developed by Cunha et al. (2004), incorporating water quality constraints.

### 3. Simulated Annealing

Simulated annealing algorithms can guarantee the near optimum global solution of any function, including discontinuous and non convex functions. Its main advantage is its characteristic of using a descent strategy that allows ascent probabilistic movements, thus avoiding being trapped in local optima. The concept was first introduced by Metropolis et al. (1953) and an algorithm was independently developed by Kirkpatrick et al. (1983) and Cerny (1985) to solve the traveling salesman problem.

The algorithm is based on the physical process of annealing. According to Cunha and Souza (1999), in this process, temperature is raised allowing mobility to the molecules. Then a cooling slow schedule is applied, when the molecules will end forming a crystalline structure. The high mobility of the molecules at a high initial temperature allows them to reach different states. Following an adequate cooling scheme the molecules will arrive at a minimum energy state and an ordered crystalline configuration. The Metropolis algorithm generates a sequence of states. If the energy of the initial state is  $E_i$ , then a perturbation mechanism is applied, generating an energy  $E_j$  in this second state. If  $E_i - E_j \leq 0$ , then  $j$  will be the second state. Otherwise,  $j$  can still be accepted as the next state according to a probability  $p$  given by:  $p = \exp(E_i - E_j)/k_\beta t$ , where  $k_\beta$  is the constant of Boltzmann and  $t$  is the temperature of the process.

Aarts and Korst (1989) prove that the simulated annealing algorithm, formulated as a sequence of homogenous and finite length Markov chains converges in probability to the set of optimal solutions. In other words, asymptotically the algorithm finds an optimal solution with probability one. This result is achieved only after an infinite number of transitions, so that, in practical applications, one must resort to an approximation of the asymptotic convergence.

The algorithm can be described by the following steps:

- (i) choose an initial configuration
- (ii) test the viability of the initial configuration
- (iii) set an initial temperature and a cooling schedule
- (iv) for  $j = 1$  to number of cooling states repeat (v) to (ix)
- (v) generate a perturbation in the initial configuration to generate a candidate solution
- (vi) test the viability of the candidate solution
- (vii) if  $E_2 < E_1$ , the candidate solution is accepted
- (viii) if  $E_2 > E_1$ , the Metropolis criterion is tested; if  $p > 0$ , the candidate solution is accept
- (ix) repeat steps (v) to (viii) until number of simulations  $<$  maximum number of simulations or number of successes  $<$  maximum number of successes

The algorithm has the following parameters:

- a)  $a$  the initial temperature of the process, representing the probability of accepting a transition from the initial configuration to a candidate solution with an higher energy;
- b)  $n_1$  the number of iterations in the same temperature, even if there is no gain in the optimal state of the configuration;
- c)  $r$  cooling factor, representing the rate of temperature decreasing;
- d)  $n_2$  number of steps of temperature decreasing, performed without improvement in the optimum, before stopping the algorithm.

The values for initial temperature were used according to Press et al. (1992). In this paper  $n_2$  was substituted by a maximum number of total iterations,  $nmax$ . The literature reports that  $n_1$  and  $nmax$  should be linked to the number of variables of the Objective Function. The study below presented uses  $n_1$  and  $nmax$  equal to 10 and 100 times the number

of variables, respectively. For the cooling factor  $r$ , Kirkpatrick et al. (1983) suggest a constant factor between 0.8 and 0.99, which were also used here.

### 3.1 Initial and candidate solutions

The initial solution was obtained through random sampling. For each one of the components of the variables vector, in an independent manner, uniformly distributed values are generated, within its respective validity limits. Then the restrictions are verified, repeating the process until reaching a viable random solution.

The Metropolis algorithm can be used for generating a set of points in a space with  $X$  variables with a distributed density function  $f_X(\mathbf{X})$ . A sequence of points  $\mathbf{X}_0, \mathbf{X}_1, \dots$ , is generated, representing a random walk moving through the  $X$  space. The rules by which this random walk is made are as follows:

- Consider that the random way is on point  $\mathbf{X}_n$ .
- An iterative process is applied for generating the  $\mathbf{X}_{n+1}$  point. The new point can be randomly chosen over the surface of a hypersphere with a small radius  $\delta$ , around the  $\mathbf{X}_n$  point. The methods used for the random variables generation are presented in the appendix.
- A sampled point  $\mathbf{X}_t$ , is accepted, considering the following ratio:

$$r = \frac{f_X(\mathbf{x}_t)}{f_X(\mathbf{x}_n)} \quad (1)$$

- If  $r > 1$ , then the point  $\mathbf{X}_t$  is accepted ( $\mathbf{X}_{n+1} = \mathbf{X}_t$ ), while if  $r < 1$ , the point  $\mathbf{X}_t$  is accepted with probability  $r$ . In this procedure  $r$  is compared to  $r$  an uniformly distributed number  $u$ , in the interval  $[0,1]$ ,  $\mathbf{X}_t$  being accepted if  $u < r$ . When the point  $\mathbf{X}_t$  is not accepted, the random way keeps on point  $\mathbf{X}_n$  ( $\mathbf{X}_{n+1} = \mathbf{X}_n$ ).

- By using the same procedure the  $\mathbf{X}_{n+2}$  point is generated.
- 

The value of  $\delta$  should be chosen in such a way that 1/3 to 1/2 of the generated configurations are accepted; in other way, the method becomes less efficient. (Koonin e Meredith, 1990). If there is a large number of rejected configurations, this means that the value of  $\delta$  is too large; in other way, if  $\delta$  is too small, then one will have a large number of accepted configurations, but the explored region will be small. The best choice to the initial point  $\mathbf{X}_0$  lies where the probability distribution is at a maximum.

## 4. Model application and results

The simulated annealing algorithm was applied to a hypothetical regional sewage treatment plant location problem, formulated by Deinenger and Su (1971) and also applied by Ong (1983). Given a set of seven communities located along a river and its tributary, there are seven potential sites available for the construction of wastewater treatment plants. The objective is to find the size and location of wastewater treatment plants and the interconnecting conveyance system which will minimize the total construction cost. The problem is depicted in Fig. 1.

The objective function has the following mathematical formulation:

$$\text{Min } \sum_{i=1}^6 CP_i(Y_i) + \sum_{i=1}^6 CP_i(Z_i) + \sum_{i=1}^7 CT_i(X_i) \quad (2)$$

Subject to:

- a) Flow balance at each source node
- b) Upper and lower bound constraints

Where:

$Y_i$ : amount of wastewater carried by the  $i$ -th section of conveyance (in the direction from upstream to downstream). Considered as dependent variable;

$Z_i$ : amount of wastewater carried by the  $i$ -th section of conveyance (in the direction from downstream to upstream); Considered as dependent variable;

$X_i$ : amount of wastewater to be treated at plant  $i$ . Considered as independent variable;  
 $CP_i(Y_i)$ ,  $CP_i(Z_i)$ : cost of piping (gravity sewer or forcemain) as a function of  $Y_i$  or  $Z_i$ ;  
 $S_i$ : amount of wastewater generated at source  $i$  ( $Y_i$ ,  $Z_i$ ,  $X_i$  and  $S_i$  are used in the flow balance at each source node);  
 $XU_i$ ,  $YU_i$ ,  $ZU_i$ : maximum amount of flow at the treatment plants and the conveyances; these are the upper and lower bound constraints.

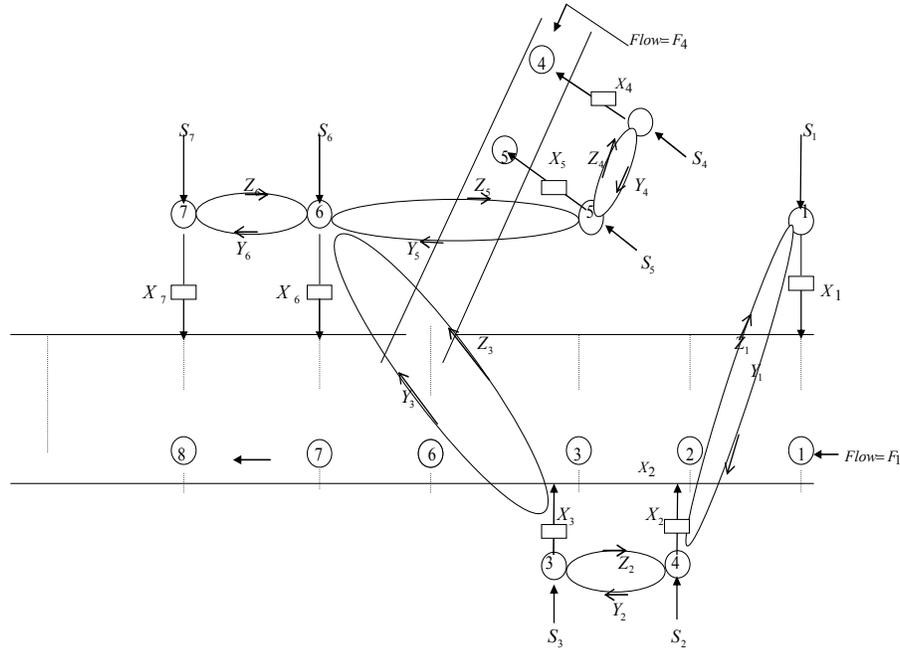


Figure 1 – River, sewerage and treatment plants system

The objective function has the following mathematical formulation:

$$\text{Min } \sum_{i=1}^6 CP_i(Y_i) + \sum_{i=1}^6 CP_i(Z_i) + \sum_{i=1}^7 CT_i(X_i) \quad (2)$$

Subject to:

- a) Flow balance at each source node
- b) Upper and lower bound constraints

Where:

$Y_i$ : amount of wastewater carried by the  $i$ -th section of conveyance (in the direction from upstream to downstream). Considered as dependent variable;  
 $Z_i$ : amount of wastewater carried by the  $i$ -th section of conveyance (in the direction from downstream to upstream); Considered as dependent variable;  
 $X_i$ : amount of wastewater to be treated at plant  $i$ . Considered as independent variable;  
 $CP_i(Y_i)$ ,  $CP_i(Z_i)$ : cost of piping (gravity sewer or forcemain) as a function of  $Y_i$  or  $Z_i$ ;  
 $S_i$ : amount of wastewater generated at source  $i$  ( $Y_i$ ,  $Z_i$ ,  $X_i$  and  $S_i$  are used in the flow balance at each source node);  
 $XU_i$ ,  $YU_i$ ,  $ZU_i$ : maximum amount of flow at the treatment plants and the conveyances; these are the upper and lower bound constraints.

The cost functions, either for the wastewater conveyance or for the treatment plants are of the type:

$$CT = (a - b * X_i) * X_i \quad (3)$$

Where  $a$  and  $b$  are coefficients of the equation.

Table (1) presents the SA results, compared to the results found by Ong (1983), by means of a heuristic technique called Random Polyhedron Search (RPS). The optimal solution calls for a single regional treatment plant located at site 6. The parameters' values for the lowest Objective Function value are:  $dxI=0.0090$ ,  $fat=0.902$  and  $tI=0.43$ .

Table 1. Results of the regional treatment plant location problem

	Objective Function (US\$10 <sup>6</sup> )	$X_1$ (mgd)	$X_2$	$X_3$	$X_4$	$X_5$	$X_6$	$X_7$
Simulated Annealing	2.734	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	6.6	0.0
RPS heuristic	2.730	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	6.6	0.0

## 5. Sensivity Analysis

A sensivity analysis was performed, verifying the results of the Objective Function, with varying values of the cooling factor ( $fat$ ), the initial temperature ( $t_1$ ) and the change of the radius of the hypersphere, when looking for a candidate solution ( $dx$ ). In all simulations, the number of steps to decrease the temperature was 100. The results are shown in Tab. (2). Lower temperatures resulted in most of the minimum values for the Objective Function. Also, lower values of the cooling factor led to better values of the Objective Function, showing that a slower cooling can find near optimal results. When  $tI$  and  $dx$  are maintained fixed, changing the values of  $fat$  gives higher changes in  $fmin$  in comparison with fixing  $fat$  and  $dx$  and changing the values of  $tI$ . Changing  $dx$ , with fixed values of  $fat$  and  $tI$ , gives small variations to the value of  $fmin$ . In other words, the model is less sensible to  $dx$  and  $tI$  variations, and a more sensible to the cooling factor  $fat$ .

Table 3 shows the results for the mean value of the Objective Function ( $fmed$ ), its Coefficient of Variation ( $cv$ ) and the ratio between the number of simulations of accepted solutions in the Metropolis algorithm and the total number of simulations ( $pac$ ). The same variations for the parameters were used as above. The values for the Coefficient of Variation were all less than 0.30, showing a smooth surface of the Objective Function. The values of the ration  $pac$  were not higher than 10%, showing that the range of simulated temperatures was quite near the optimal final temperature.

## 6. Conclusions

Simulated Annealing seems to be a promising optimization tool for the regional planning of wastewater treatment plants, as was already shown by Cunha et al. (2004). Such problems have nonlinear objective functions and constraints, being difficult ones to be solved by traditional non linear programming. Further investigations are needed to get a good knowledge of the parameters' behavior. The authors are also studying the addition of other constraints such as water quality constraints and budget considerations. The Simulated Annealing algorithm, maybe coupled with Dynamic Programming seems to be an adequate tool for the dynamic schedule of such engineering works.

CIT06-0675

Table 2. Objective Function Values for Different Cooling Schedules (fat and  $t_1$ ) and Hypersphere Radius ( $dx_1$ )

fmin dx1 = 0.0090							fmin dx1=0.0096						
fat/t1	0.35	0.37	0.39	0.41	0.43	0.45	fat/t1	0.35	0.37	0.39	0.41	0.43	0.45
0.890	2.827	2.964	3.064	2.955	3.119	2,783	0.890	2.781	3.148	2.959	2.990	3.262	3.039
0.894	2.791	3.130	3.029	2.940	2.932	2,790	0.894	2.983	3.188	2.908	2.810	2.810	2.907
0.898	2.951	2.921	2.813	2.922	2.962	3,196	0.898	3.279	2.836	2.838	2.858	3.016	2.993
0.902	2.846	2.860	3.191	2.828	2.734	2,966	0.902	3.122	2.817	2.963	2.742	2.921	2.768
0.906	2.915	2.870	3.203	2.836	2.909	2,814	0.906	2.830	2.924	2.830	3.292	2.959	2.913
0.910	2.951	2.901	2.737	2.974	3.187	2,739	0.910	2.940	2.808	2.829	2.795	2.937	2.899

Table 2. Objective Function Values for Different Cooling Schedules (fat and  $t_1$ ) and Hypersphere Radius ( $dx_1$ ) (Cont.)

fmin dx1=0.0102							fmin dx1=0.0108						
fat/t1	0.35	0.37	0.39	0.41	0.43	0.45	fat/t1	0.35	0.37	0.39	0.41	0.43	0.45
0.890	2.760	2.971	2.908	3.006	2.765	2,740	0.890	2.882	2.954	2.839	2.973	3.056	3.002
0.894	2.791	3.260	3.056	3.124	2.748	2,737	0.894	2.820	2.947	2.972	2.840	2.822	2.921
0.898	2.804	2.903	2.916	2.916	2.909	2,826	0.898	2.776	3.003	2.984	3.248	3.265	2.965
0.902	2.908	2.909	2.829	2.872	2.797	2,991	0.902	3.039	2.758	2.776	2.954	2.919	3.327
0.906	2.992	2.983	2.814	2.867	2.910	2,989	0.906	3.432	2.867	2.737	2.768	2.911	3.187
0.910	2.915	2.915	2.888	2.803	3.065	2,935	0.910	3.278	2.910	2.826	3.014	2.849	2.961

Table 2. Objective Function Values for Different Cooling Schedules (fat and  $t_1$ ) and Hypersphere Radius ( $dx_1$ ) (Cont.)

fmin dx1=0.0114							fmin dx1=0.0120						
fat/t1	0.35	0.37	0.39	0.41	0.43	0.45	fat/t1	0.35	0.37	0.39	0.41	0.43	0.45
0.890	2.948	3.203	2.921	2.911	2.771	2,851	0.890	2.836	2.910	2.884	2.796	2.938	2.774
0.894	3.199	3.049	2.767	2.789	3.001	2,919	0.894	2.833	2.851	2.775	2.786	2.911	2.911
0.898	2.777	2.786	2.910	2.920	2.911	2,924	0.898	2.748	2.874	2.829	2.919	3.009	3.281
0.902	2.991	2.852	2.750	2.932	2.989	2,810	0.902	3.188	2.742	2.948	2.744	2.740	2.915
0.906	2.918	2.798	2.929	2.789	2.940	2,924	0.906	3.057	2.781	2.921	3.057	2.757	2.914
0.910	2.737	2.817	2.740	2.995	2.756	2,953	0.910	3.188	2.976	2.803	2.925	2.911	2.758

CIT06-0675

Table 3. Numerical statistics for Different Cooling Schedules (fat and  $t_1$ ) and Hypersphere Radius ( $dx_1$ )

$dx_1 = 0.0090$

fat1/t1	0,35			0,37			0,39			0,41			0,43			0,45		
	fmed	cv	pac															
0,890	4,6984	0,21	0,0681	4,0753	0,21	0,0714	4,4535	0,23	0,0829	5,2288	0,27	0,0765	4,9735	0,19	0,0657	4,686	0,22	0,0775
0,894	4,6829	0,23	0,0673	4,4424	0,22	0,0766	5,3171	0,22	0,0660	4,6654	0,26	0,0688	4,4400	0,22	0,0845	4,9206	0,26	0,0672
0,898	3,9496	0,15	0,0795	4,6459	0,21	0,0891	4,9494	0,28	0,0710	4,2105	0,18	0,0838	4,8231	0,25	0,0853	4,3262	0,20	0,0932
0,902	4,8763	0,24	0,0768	4,8066	0,21	0,0963	4,0992	0,18	0,0919	4,5930	0,27	0,0775	4,7847	0,24	0,0818	4,8984	0,24	0,0769
0,906	4,7196	0,23	0,0985	5,1365	0,23	0,0873	5,1278	0,25	0,0994	4,7537	0,25	0,0824	4,0357	0,16	0,1053	4,2161	0,12	0,0849
0,910	4,5884	0,27	0,0965	4,9983	0,25	0,0856	4,3211	0,28	0,0881	4,0987	0,15	0,1070	4,6472	0,22	0,1138	3,8025	0,16	0,0931

Table 3. Numerical statistics for Different Cooling Schedules (fat and  $t_1$ ) and Hypersphere Radius ( $dx_1$ ) (cont.)

$dx_1 = 0.0096$

fat1/t1	0,35			0,37			0,39			0,41			0,43			0,45		
	fmed	cv	pac															
0,890	4,2482	0,21	0,06	4,9998	0,26	0,081	4,3243	0,18	0,0663	5,2288	0,27	0,0765	4,585	0,25	0,0828	4,6517	0,23	0,081
0,894	4,6683	0,18	0,0747	4,7626	0,26	0,0808	5,0872	0,25	0,0779	4,179	0,19	0,0762	4,4747	0,26	0,072	4,8899	0,28	0,0799
0,898	4,5541	0,19	0,0899	4,7751	0,24	0,0758	4,9271	0,25	0,0769	4,1083	0,15	0,0735	4,9021	0,25	0,0689	4,8023	0,25	0,0962
0,902	4,2946	0,23	0,0914	4,5997	0,21	0,0769	4,2511	0,21	0,0894	4,6152	0,27	0,0740	4,5465	0,19	0,0915	5,1714	0,25	0,0779
0,906	5,1428	0,28	0,0808	4,6553	0,25	0,0100	4,558	0,22	0,081	5,0013	0,25	0,1035	4,9839	0,26	0,0776	3,7793	0,14	0,0964
0,910	4,7151	0,25	0,1096	4,1704	0,15	0,0965	4,1693	0,20	0,0826	4,7023	0,23	0,0857	4,4489	0,18	0,0929	4,3738	0,20	0,0865

Table 3. Numerical statistics for Different Cooling Schedules (fat and  $t_1$ ) and Hypersphere Radius ( $dx_1$ ) (cont.)

$dx_1 = 0.0102$

fat1/t1	0,35			0,37			0,39			0,41			0,43			0,45		
	fmed	cv	pac															
0,890	4,6946	0,27	0,0703	4,9787	0,26	0,0769	5,0406	0,24	0,0709	4,6129	0,27	0,0757	4,4995	0,26	0,0624	4,7796	0,28	0,061
0,894	4,8417	0,27	0,0838	4,8011	0,2	0,0805	4,8226	0,26	0,087	4,7128	0,22	0,0758	4,7163	0,26	0,0656	4,6976	0,25	0,0679
0,898	4,5358	0,21	0,0657	4,2	0,2	0,0645	4,2866	0,21	0,0802	4,1849	0,20	0,0810	4,2315	0,19	0,0846	4,7963	0,2	0,0785
0,902	4,4274	0,19	0,0686	3,9124	0,22	0,0824	4,2413	0,17	0,0813	3,91	0,19	0,095	4,6948	0,29	0,0776	5,2847	0,25	0,0895
0,906	4,4778	0,16	0,0863	4,773	0,24	0,0907	4,0179	0,19	0,0794	4,6708	0,26	0,0797	4,6194	0,29	0,0925	4,0143	0,11	0,0102
0,910	4,6268	0,25	0,0957	4,0217	0,17	0,0961	4,4477	0,24	0,0820	5,3266	0,26	0,0889	4,4761	0,27	0,1134	5,4277	0,27	0,0905

CIT06-0675

Table 3. Numerical statistics for Different Cooling Schedules (fat and  $t_1$ ) and Hypersphere Radius ( $dx_1$ ) (cont.)

**$dx_1=0.0108$**

fat1/t1	0,35			0,37			0,39			0,41			0,43			0,45		
	fmed	cv	pac															
0,890	3,8563	0,20	0,0574	4,7255	0,24	0,0702	3,8322	0,13	0,0612	4,3298	0,21	0,07	4,697	0,24	0,0825	4,1786	0,18	0,0728
0,894	4,0405	0,20	0,06	4,8005	0,21	0,0763	3,7605	0,14	0,0738	4,6306	0,29	0,0637	4,0574	0,21	0,0665	4,4701	0,23	0,0786
0,898	4,3944	0,23	0,0632	3,6065	0,11	0,0738	5,1434	0,26	0,0798	4,0973	0,13	0,0895	5,4481	0,27	0,0871	4,3637	0,22	0,0826
0,902	3,8994	0,11	0,0846	4,3782	0,28	0,0673	4,2801	0,18	0,0759	4,6001	0,25	0,0852	4,8334	0,21	0,076	4,1649	0,17	0,0941
0,906	4,7545	0,24	0,0921	4,8376	0,22	0,0873	3,8506	0,15	0,078	4,3896	0,18	0,0901	4,3235	0,24	0,0925	4,551	0,24	0,01
0,910	4,8189	0,27	9,7229	3,6806	0,15	0,0925	4,2434	0,17	0,0794	4,1607	0,23	0,0954	4,3153	0,2	0,0893	4,4925	0,2	0,01

Table 3. Numerical statistics for Different Cooling Schedules (fat and  $t_1$ ) and Hypersphere Radius ( $dx_1$ ) (cont.)

**$dx_1=0.0114$**

fat1/t1	0,35			0,37			0,39			0,41			0,43			0,45		
	fmed	Cv	pac															
0,890	4,2674	0,24	0,0708	4,1821	0,17	0,0712	4,2603	0,26	0,0668	4,2341	0,18	0,0733	5,0169	0,22	0,0632	4,2427	0,23	0,063
0,894	4,325	0,19	0,0734	4,6924	0,28	0,0582	3,9223	0,22	0,0608	5,0213	0,24	0,059	4,8369	0,25	0,075	5,1462	0,27	0,0788
0,898	4,8927	0,28	0,0666	4,4996	0,27	0,066	4,4487	0,22	0,0775	3,5198	0,12	0,0768	4,4805	0,23	0,0791	4,4652	0,22	0,0904
0,902	4,0178	0,23	0,0803	4,1179	0,15	0,0734	5,1263	0,26	0,0709	4,7889	0,28	0,0811	4,4735	0,22	0,086	4,7425	0,24	0,0767
0,906	4,6535	0,30	0,0811	4,6031	0,24	0,0731	4,1462	0,18	0,0966	4,3897	0,29	0,0723	4,488	0,19	0,1032	4,5883	0,27	0,0998
0,910	3,8285	0,13	0,0748	4,2079	0,18	0,0748	3,7662	0,15	0,08	4,6385	0,25	0,1022	3,9312	0,22	0,0842	4,4446	0,24	0,0961

Table 3. Numerical statistics for Different Cooling Schedules (fat and  $t_1$ ) and Hypersphere Radius ( $dx_1$ ) (cont.)

**$dx_1=0.0120$**

fat1/t1	0,35			0,37			0,39			0,41			0,43			0,45		
	fmed	Cv	pac	Fmed	cv	pac	fmed	cv	pac	fmed	cv	pac	fmed	cv	pac	fmed	cv	pac
0,890	3,7888	0,0993	0,0569	4,4334	0,26	0,0664	4,841	0,25	0,0604	4,6189	0,28	0,0585	4,6781	0,24	0,0673	5,1359	0,27	0,0609
0,894	4,0840	0,26	0,0575	5,1534	0,31	0,0584	3,8635	0,18	0,0631	5,0213	0,24	0,059	4,8369	0,25	0,075	4,2603	0,24	0,0732
0,898	4,736	0,30	0,0628	4,6709	0,25	0,0633	4,3236	0,24	0,0614	5,0302	0,25	0,0744	4,2543	0,14	0,0814	4,044	0,12	0,0893
0,902	4,2644	0,21	0,0815	4,3841	0,24	0,0691	4,1997	0,17	0,0925	3,8135	0,19	0,0694	4,0508	0,22	0,0685	4,6819	0,28	0,0851
0,906	4,7067	0,24	0,0943	3,6528	0,15	0,0747	3,7339	0,18	0,0853	4,2191	0,24	0,103	4,9973	0,28	0,0732	4,6427	0,25	0,0896
0,910	4,7729	0,21	0,096	3,8123	0,13	0,0886	4,7311	0,21	0,0845	4,4041	0,22	0,0944	4,3239	0,21	0,0937	3,791	0,12	0,0842

**APENDIX- Random Functions generation**

The joint distribution function of  $n$  normal, random and independent variables,  $N(0,1)$ , is defined by:

$$f_{\mathbf{Z}}(\mathbf{z}) = \frac{1}{(2\pi)^{n/2}} \exp\left[-\frac{1}{2}(z_1^2 + \dots + z_n^2)\right]. \quad (\text{A.1})$$

The function (A1) has the property of having a constant density over the surface of the hyperspheres, with the following form:

$$z_1^2 + \dots + z_n^2 = r^2. \quad (\text{A.2})$$

Using the distribution function defined in (A1), by means of a transformation of variables, one can derive a method for generating random vectors randomly distributed in the hypersphere surface, with a unit radius. (Alagar, 1976). Applying a polar transformation to (A1), results in (Kendall, 1961):

$$f_{R,\Theta}(r, \theta) = \frac{1}{(2\pi)^{n/2}} \exp\left(-\frac{1}{2}r^2\right) r^{n-1} \prod_{i=2}^{n-1} \text{sen}^{i-1}\theta_i. \quad (\text{A.3})$$

(A3) was found by applying the following spheric polar transformation to the variable  $\mathbf{Z}$ .

$$z_i = r \cos\theta_{i-1} \prod_{j=i}^n \text{sen}\theta_j, \quad i=1, \dots, n, \quad (\text{A.4})$$

with:

$$\cos\theta_0 = \text{sen}\theta_n = 1, \quad 0 \leq \theta_1 < 2\pi, \quad \text{and} \quad 0 \leq \theta_i \leq \pi \quad \text{for} \quad i=2, \dots, n-1.$$

Applying the transformation (A.4) to the function (A.3) and making  $r=1$ , one obtains:

$$f_{\Theta}(\theta) = \frac{\Gamma(n/2)}{2\pi^{n/2}} \prod_{i=2}^{n-1} \text{sen}^{i-1}\theta_i. \quad (\text{A.5})$$

Integrating the function A3, in relation to the variable  $r$ , from 0 to  $+\infty$ , it is verified that the result equals the expression (A5), that represents the distribution function of the random vectors over the hypersphere surface, with unit radius and  $n$  dimensions.

Generating  $n$  normal unitary  $\mathbf{Z}$  random variables, the vector:

$$\mathbf{X} = \mathbf{Z}/r, \quad (\text{A.6})$$

is uniformly distributed over the hypersphere surface with dimension  $n$  and unitary radius.

The method proposed by Box and Muller in 1958 (Hammersley and Handscomb, 1979), can be used for the generation of normal random variables:

$$x_1 = (-2 \ln u)^{1/2} \cos 2\pi v \quad \text{and} \quad x_2 = (-2 \ln u)^{1/2} \text{sen} 2\pi v, \quad (\text{A.7})$$

with  $u$  and  $v$  as uniform random numbers between 0 and 1.

Press and others (1992) present a version of this generator where it's not necessary to calculate the sine and cosine functions. Considering  $u'$  e  $v'$  as uniform random numbers in the interval  $[-1,1]$ , the following relation can be defined:

$$u = u'^2 + v'^2, \quad \text{with} \quad u < 1, \quad (\text{A.8})$$

$$u' = u^{1/2} \cos 2\pi v \quad \text{and} \quad v' = u^{1/2} \sin 2\pi v. \quad (\text{A.9})$$

It can be shown that:

$$f_{U,V}(u,v) = \pi f_{U',V'}(u',v') = \pi/4, \quad \text{and} \quad (\text{A.8})$$

$$f_{U,V}(u,v | u < 1) = f_{U,V}(u,v) / P[U < 1] = 1. \quad (\text{A.9})$$

arriving at the following expressions:

$$x_1 = \left(-\frac{2}{u} \ln u\right)^{1/2} u' \quad \text{and} \quad x_2 = \left(-\frac{2}{u} \ln u\right)^{1/2} v', \quad \text{with} \quad u = u'^2 + v'^2 < 1. \quad (\text{A.10})$$

## References

- Aarts, E. and Korst, J., 1989, "Simulated Annealing and Boltzmann Machines", Wiley, 272p.
- Alagar, V.S., 1976, "The Distribution of the Distance between Random Points". J. Appl. Prob. 13, 558.
- Burn, D.H., and Yulanti, J.S., 2001, "Waste-Load Allocation Using Genetic Algorithms", Journal of Water Resources Planning and Management ASCE, Vol. 127, No. 2, pp. 121-129.
- Chang, N.B, Chen, H.W. and Yang, C.H., 1997, "Water Pollution Control in River Basin by Interactive Fuzzy Interval Multiobjective Programming", Journal of the Environmental Engineering Division ASCE, Vol. 123, No. 12, pp. 1208-1216.
- Carmichael, J.J. and Strzepek, K.M., 2000, "A Multiple-Organic-Pollutant Simulation/Optimization Model of Industrial and Municipal Wastewater Loading to a Riverine Environment", Water Resources Research, Vol. 36, No. 5, pp. 1325-1332.
- Cerny, V. 1985, "A Thermodynamical Approach to the Traveling Salesman Problem", J. Optimization Theory and Applications, 45, pp. 41-51.
- Chang, S.Y., Brill Jr., E.D., and Hopkins, L.D. 1982, "Use of Mathematical Models to Generate Alternative Solutions to Water Resources Planning Problems", Water Resources Research, Vol. 18, No. 1, pp. 58-64.
- Cunha, M.C. and Souza, J., 1999, "Water Distribution Network Design Optimization: Simulated Annealing Approach", Journal of Water Resources Planning and management ASCE, Vol. 125, No. 4, pp. 215-221.
- Cunha, M.C. and Ribeiro, L. 2004, "Tabu Search Algorithms for Water Network Optimization", European Journal of Operational Research, Vol. 157, pp. 746-758.
- Cunha, M. C., Pinheiro, L., Afonso, P. and Souza, J., 2004, "Decision-aid Models for the Implementation of the Water Framework Directive", DMUCE, CD Edition, Porto, 10p.
- Deininger, R.A. 1965, "Water Quality Management: The Planning of Economically Optimum Pollution Control Systems", Proc. First Annual Water Resources Conf., Chicago, Ill., American Water Resources Association, pp. 254-282.
- Ecker, J. 1975, "A Geometric Programming Model for Optimal Allocation of Stream Dissolved Oxygen", Management Science, 21, pp. 658-668.
- Hammersley, J.M., Handscomb, D.C., 1979, "Monte Carlo Methods". Chapman and Hall, London.
- Kendall, M.G., 1979, "A Course in the Geometry of  $n$  Dimensions", Charles Griffin & Company Limited, London.
- Kerri, K.D. 1966, "A Dynamic Model for Water Quality Control", Journal of the Water Pollution Control Federation, Vol.39, No.5, pp. 772-786.
- Kirkpatrick, S., Gellat, C. and Vecchi, M., 1983, "Optimization by Simulated Annealing", Sci., Vol. 220, No. 4958, pp. 671-680.
- Koonin, S.E., Meredith, D.C., 1993, "Computational Physics", Fortran Version, Addison-Wesley Publishing Company, Inc., Reading.
- Liebman, J.C and Lynn, W.R., 1966, "The Optimal Allocation of Stream Dissolved Oxygen", Water Resources Research, Vol.2, No. 3, pp. 581-591. Converse, A.O., 1972, "Optimum Number and Location of Treatment Plants", Journal of the Water Pollution Control Federation, Vol.44, No.8, pp. 1629-1636.
- Metropolis, N., Rosenbluth, A.W., Rosenbluth, M.N., Teller, A.H., 1953, "Equation of state calculations by fast computing machines", J. Chem. Phys. 21 (6), 1087.
- McNamara, J.R. 1976, "An Optimization Model for Regional Water Quality Management", Water Resources Research, Vol. 12, No. 2, pp. 125-134.
- Mujumdar, P.P. and Vemula, V.R.S., 2004, "Fuzzy Waste Load Allocation Model: Simulation-Optimization Approach", Journal of Computing in Civil Engineering ASCE, Vol. 18, No. 2, pp. 120-131.
- Nakamura, M. and Brill, Jr. E.D., 1979, "Generation and Evaluation of Alternative Plans for Regional Wastewater Systems: An Imputed Value Method", Water Resources Research, Vol. 15, No. 4, pp. 750-756.

- Ong, S.L. 1983, "Capacity Expansion for Regional Wastewater Treatment Systems", Ph.D. Dissertation, University of Toronto.
- Press, W.H., Flannery, B.P., Teukolsky, S.A., Vetterling, W.T., 1992, Numerical Recipes in Pascal. Cambridge University Press, Cambridge.
- ReVelle, C., Loucks, D.P., and Lynn, W.R. 1967, "A Management Model for Water Quality Control", Journal of the Water Pollution Control Federation, Vol.39, No.7, pp. 1164-1183.
- Rossmann, L.A. 1978, "Planning Time-Phased Regional Treatment Systems", Journal of the Environmental Engineering Division ASCE, 104(EE4), pp. 685-700.
- Souza, J., Ribeiro A., Cunha, M.C., Antunes, A. 2002, "An Optimization Approach to Waste Water Systems Planning at the Regional Level", Journal of Hydroinformatics, Vol. 4, No. 2, pp-115-123.
- Zhu, Z. and ReVelle, C. 1988, "A Siting Model for Regional Wastewater Treatment Systems: The Chain Configuration Case", Water Resources Research, Vol. 24, No.1, pp. 137-144.

## ESTUDO EXPERIMENTAL DE ABSORÇÃO DE SO<sub>2</sub> EM TORRE DE NEBULIZAÇÃO

**Milene Costa Codolo**

Faculdade de Engenharia Mecânica – UNICAMP – Rua Mendeleev, 200 – Cidade Universitária Zeferino Vaz, Campinas, SP  
[milenec@fem.unicamp.br](mailto:milenec@fem.unicamp.br)

**Waldir Antonio Bizzo**

Faculdade de Engenharia Mecânica – UNICAMP – Rua Mendeleev, 200 – Cidade Universitária Zeferino Vaz, Campinas, SP  
[bizzo@fem.unicamp.br](mailto:bizzo@fem.unicamp.br)

**Abstract.** This work studied the SO<sub>2</sub> absorption in alkaline solution (NaOH) in a countercurrent spray tower. It was carried out an experimental study, in order to analyze the influence of the variables of the absorption process. The studied variables were: gas flow, liquid flow and SO<sub>2</sub> concentration in the gas inlet. The liquid/gas ratios (l/g) were calculated from the gas flow and the liquid flow, to find out the best operation parameters of the spray tower. The absorption solution was sprayed by five pressure nozzle placed on the top of the spray tower, therefore the whole area was covered by drops. The study was carried out at pH between 8 and 9, to assure that the whole SO<sub>2</sub> was absorbed by the alkaline solution. The data showed a great influence of the water flow in the absorption efficiency, it was noted too that in l/g ratios higher than 6 l/m<sup>3</sup>, the efficiency is nearly constant, around 95%, and below this value, a reduction in the l/g ratio causes a great influence in the absorption efficiency. The variables gas flow and SO<sub>2</sub> concentration in the gas inlet showed influence only in some operation parameters.

**Resumo.** Este trabalho estuda a absorção de SO<sub>2</sub> em solução alcalina de NaOH em uma torre de nebulização contra-corrente. Foi realizado um estudo experimental, a fim de analisar a influência das variáveis no processo de absorção. As variáveis estudadas foram: vazão de gás, vazão de líquido e concentração de SO<sub>2</sub> na entrada de gás. A partir das vazões de líquido e gás foram calculadas as relações líquido/gás (l/g), para determinar a melhor faixa de operação da torre de nebulização. A solução de absorção foi pulverizada através de cinco bicos pulverizadores de pressão, dispostos no topo da torre de maneira que toda a área fosse coberta pelas gotas. O estudo foi realizado em pH entre 8 e 9, para garantir a reação de todo SO<sub>2</sub> com a solução de absorção. Os dados mostraram a grande influência da vazão de água na eficiência de absorção, mostraram também que em relações l/g acima de 6 l/m<sup>3</sup> a eficiência permanece praticamente constante, na faixa de 95% e abaixo deste valor a redução da relação l/g gera grande influência na eficiência de absorção. No caso da vazão de gás e concentração de SO<sub>2</sub> na entrada de gás, houve influência na eficiência de absorção, mas a influência foi constatada somente em algumas condições de operação.

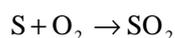
**Keywords:** spray tower, desulfurization, SO<sub>2</sub> absorption

### 1. Introdução

A maior proporção de poluentes atmosféricos gerados em diferentes áreas tem origem em processos de combustão. Quando combustíveis fósseis são queimados para gerar calor ou energia, uma ampla variedade de substâncias poluentes podem ser criadas. Os tipos e as quantidades de poluentes atmosféricos emitidos dependem do tipo de processo de combustão.

Óxidos de enxofre, SO<sub>2</sub> e SO<sub>3</sub> são formados a partir da queima de combustíveis que contenham enxofre. Estas substâncias são fortes irritantes respiratórios, podem causar prejuízos à saúde em altas concentrações e causam perda de clorofila em plantas verdes.

Os combustíveis usados atualmente (óleo, gás natural, madeira, turfa ou outro material orgânico) contém alguma quantidade de enxofre. Combustíveis como madeira tem muito pouco (0,1% ou menos), enquanto que a maioria dos carvões possuem de 0,5% a 3%. Óleos possuem normalmente mais enxofre que madeira e menos que carvão. Na queima do combustível, o enxofre em geral forma dióxido de enxofre de acordo com a reação (De Nevers, 1995):



O processo de dessulfurização de gases provenientes do processo combustão é basicamente dividido em três categorias: processo seco, semi-seco e úmido (Baumbach, 1996). A dessulfurização úmida é uma tecnologia madura amplamente usada na coleta de gases solúveis. Todos os lavadores úmidos contam com um contato íntimo, do fluxo de gás com a solução de absorção, para alcançar a coleta dos gases poluentes e material particulado. Este processo de contato é uma etapa limitante na eficiência (Golesworthy, 1999).

O fator comum para todos os processos de dessulfurização é o uso de um equipamento de contato gás-líquido. Esses equipamentos tem a característica de criar uma grande superfície de contato, com isso promove a transferência de massa de SO<sub>2</sub> para a fase líquida. O que basicamente diferencia um processo do outro é a escolha

do reagente utilizado na solução de absorção.

A remoção de poluentes como  $\text{SO}_2$  de fluxo de gases produzidos através queima de combustíveis em plantas de energia ou incineração, frequentemente ocorrem por meio de lavadores de gases. Na maioria dos lavadores, o líquido de absorção coletado no fundo é reciclado através do absorvedor. Como consequência deste processo de recirculação, as concentrações de íons, como sulfato, em solução são elevadas. As forças intermoleculares entre esses íons e o dióxido de enxofre dissolvido influenciam o processo de absorção (Krissmann et al., 1998).

O lavador mais comumente usado para dessulfurização é a torre de nebulização contracorrente, onde o gás entra no fundo da torre e o líquido é distribuído através de bicos pulverizadores, posicionados horizontalmente no topo do equipamento ou em sua lateral interna. A solução de limpeza quando deixa o equipamento, é coletada em um tanque de reação, que normalmente é integrada como a parte do fundo do lavador (Brogren e Karlsson, 1997).

Algumas das principais vantagens da torre de nebulização são: a alta capacidade de tratamento, baixa queda de pressão, baixo custo de investimento e a possibilidade de operar um sistema de três fases (Pinilla, et al, 1984).

Este trabalho tem o objetivo de estudar experimentalmente uma torre de nebulização para a absorção de  $\text{SO}_2$ . O estudo experimental se concentra na análise das variáveis do processo de absorção, como: velocidade do gás, vazão de água e concentração de  $\text{SO}_2$ , determinando as melhores condições de operação do equipamento.

## 2. Descrição da Bancada Experimental

A bancada experimental é composta por uma torre de nebulização, associada ao sistema de preparação e de análise de gases, bem como ao sistema de injeção e controle da solução de absorção. A torre de nebulização utilizada no experimento possui 210 mm de diâmetro e 430 mm de altura útil (entre a entrada e a saída de ar). A Figura 2.1 mostra o fluxograma da bancada experimental.

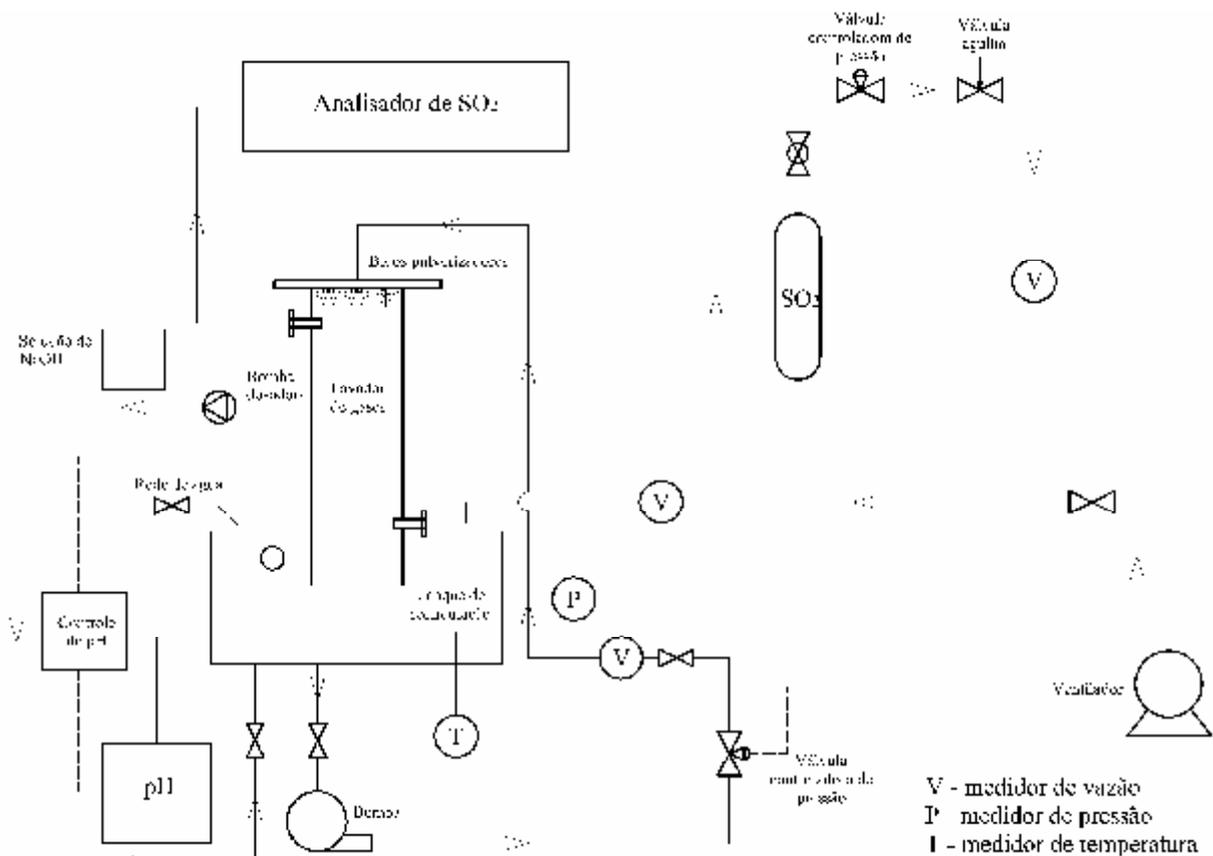


Figura 2.1. Bancada Experimental

Ar foi insuflado por meio de um ventilador e posteriormente contaminado com  $\text{SO}_2$  puro engarrafado. O sistema possui controle de vazão tanto para o ar quanto para o  $\text{SO}_2$ . A análise dos gases é feita na entrada da torre, para controle da concentração de entrada de  $\text{SO}_2$  e na saída para verificar a concentração de  $\text{SO}_2$  após a dessulfurização.

A entrada dos gases na torre de nebulização é feita pela parte inferior e a saída pela parte superior. No topo da torre estão dispostos os bicos pulverizadores de pressão, configurando funcionamento contra-corrente. Uma

combinação de bicos foi escolhida, para atender as necessidades de vazões de água. Para obter maior uniformidade de distribuição de gotas, foram usados cinco bicos de pressão de cone cheio, com ângulo de 15° para os bicos periféricos e 30° para o bico central, todos com diâmetro do orifício de 1,6 mm.

A solução de absorção utilizada é uma solução de NaOH, durante a realização do experimento a solução foi mantida em pH acima de 9, no tanque de recirculação, para garantir que todo SO<sub>2</sub> reagisse com NaOH. Para isto foi utilizada uma bomba dosadora, que automaticamente era acionada, assim que o pH indicado fosse inferior a 9. A solução concentrada de NaOH, proveniente de um reservatório acoplado a bomba, é succionada e injetada no tanque de recirculação. Segundo Pinilla et al (1994) a solução de absorção deve ser mantida em pH acima de 9. A reação entre SO<sub>2</sub> e NaOH em tais condições é considerada irreversível e instantânea, e portanto a resistência do lado líquido pode ser negligenciada.

### 3. Metodologia

A estudo experimental consiste na análise das variáveis do processo de absorção. Desse modo o processo de dessulfurização foi realizado em diferentes condições de operação. A primeira variável é a velocidade do gás na entrada da torre, variando de 5 a 10 m/s, que corresponde as vazões de 82,1 m<sup>3</sup>/h, 98,5 m<sup>3</sup>/h, 114,9 m<sup>3</sup>/h, 131,3 m<sup>3</sup>/h, 147,8 m<sup>3</sup>/h e 164,2 m<sup>3</sup>/h. Segundo Schmidt e Stichlmair (1991) a faixa comum de velocidade em processos industriais de absorção é de 5 m/s a 20 m/s. A segunda variável do processo é a concentração de entrada de SO<sub>2</sub>, que foi de 700 ppm, 1000 ppm e 1400 ppm. A terceira variável é a vazão de água, esta por sua vez determina a relação líquido/gás (l/m<sup>3</sup>). As vazões utilizadas foram: 300 l/h, 600 l/h e 900 l/h. Diante das variáveis descritas foram analisadas 54 diferentes condições para absorção de SO<sub>2</sub>.

### 4. Análise dos resultados

A análise dos resultados é feita através da eficiência em função das variáveis do processo. A velocidade do gás no interior da torre influencia no tempo de contato entre as duas fases, desse modo foi calculado o tempo de residência, que é o tempo de permanência do gás no interior da torre, para verificar sua influencia. As figuras 4.1, 4.2 e 4.3 mostram as curvas de eficiência de absorção em função do tempo de residência do gás. O tempo de residência é função da altura útil da torre e da velocidade do gás.

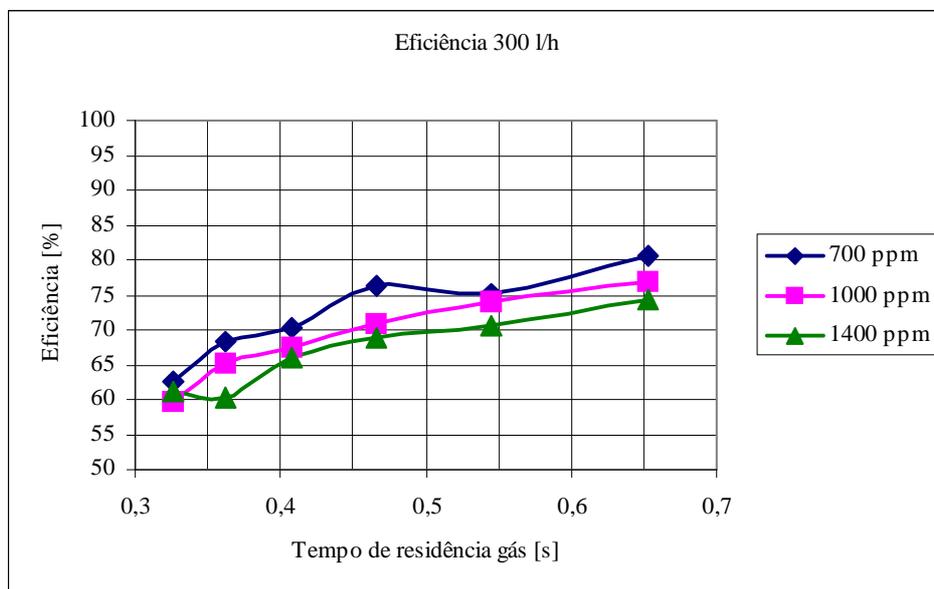


Figura 4.1: Eficiência em função do tempo de residência para vazão de 300 l/h.

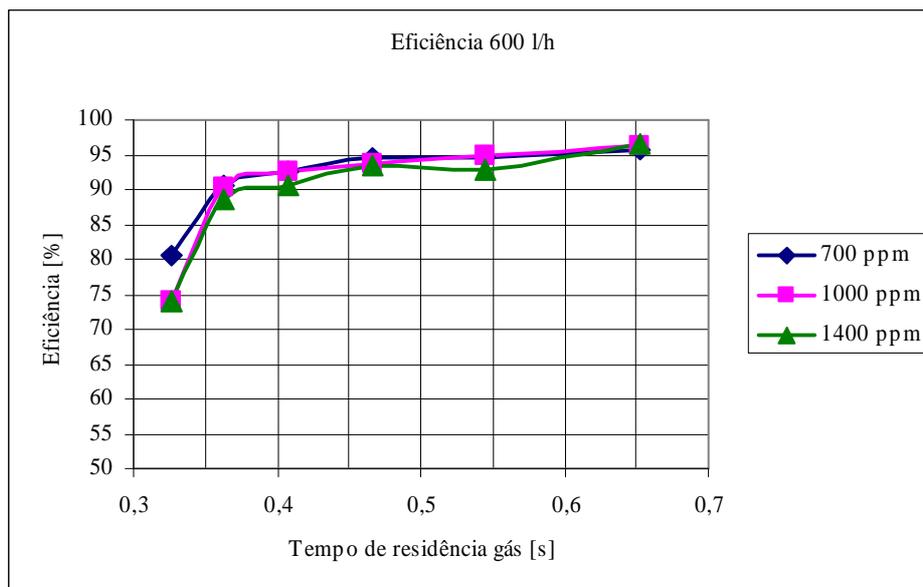


Figura 4.2: Eficiência em função do tempo de residência para vazão de 600 l/h.

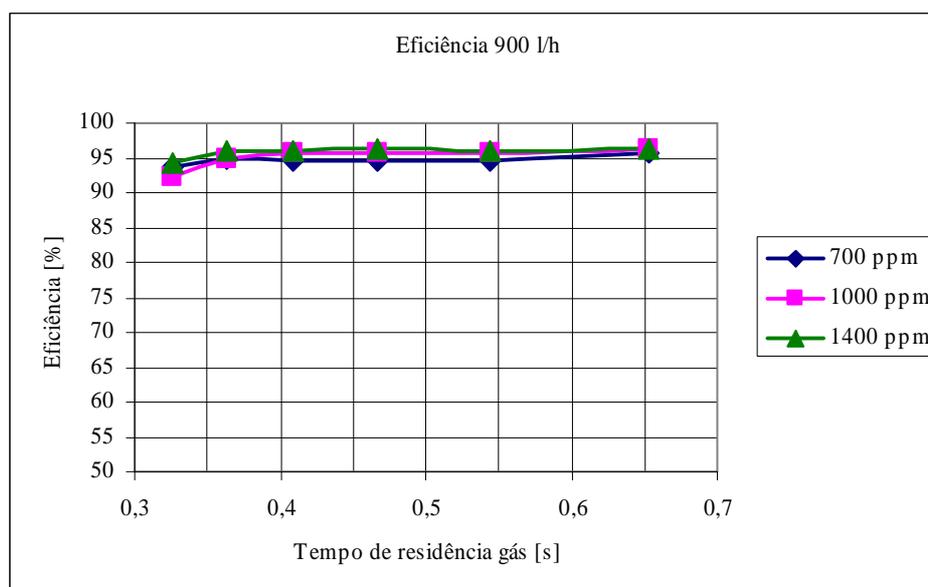


Figura 4.3: Eficiência em função do tempo de residência para vazão de 900 l/h.

O tempo de residência do gás apresentou maior influência na Figura 4.1, onde a vazão de água é menor (300 l/h), quanto maior o tempo de residência, maior foi a eficiência constatada. Na Figura 4.2 a influência é verificada apenas até o tempo de residência de 0,5 s, pois adiante a curva se mantém praticamente constante. Já na Figura 4.3, que apresenta a maior vazão (900 l/h), o tempo de residência apenas influenciou o primeiro trecho da curva, onde se encontra o menor tempo de residência (0,33s), o restante da curva praticamente permanece constante. Além disso, a concentração de  $\text{SO}_2$  mostrou influência significativa apenas na Figura 4.1, com menor vazão.

As relações l/g calculadas para as condições de operação estudadas são apresentadas na tabela 4.1.

Tabela 4.1: Relação L/G (l/m<sup>3</sup>) para as condições de operação.

	Vazão Água 300 l/h	Vazão Água 600l/h	Vazão Água 900l/h
Gás [m <sup>3</sup> /h]	L/G [l/m <sup>3</sup> ]	L/G [l/m <sup>3</sup> ]	L/G [l/m <sup>3</sup> ]
82,1	3,65	7,31	10,96
98,5	3,05	6,09	9,13
114,9	2,61	5,22	7,83
131,3	2,28	4,56	6,85
147,8	2,03	4,06	6,09
164,2	1,83	3,65	5,48

As figuras 4.4, 4.5 e 4.6 apresentam a eficiência em função da relação líquido/gás (l/g) para as vazões de 300 l/h, 600 l/h e 900 l/h.

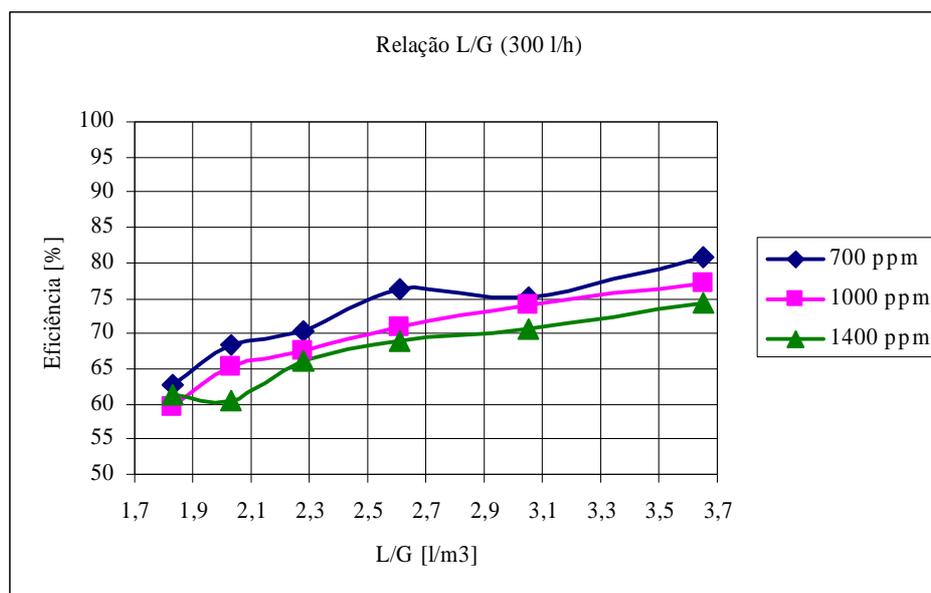


Figura 4.4: Eficiência em função da relação L/G, para vazão de água de 300 l/h.

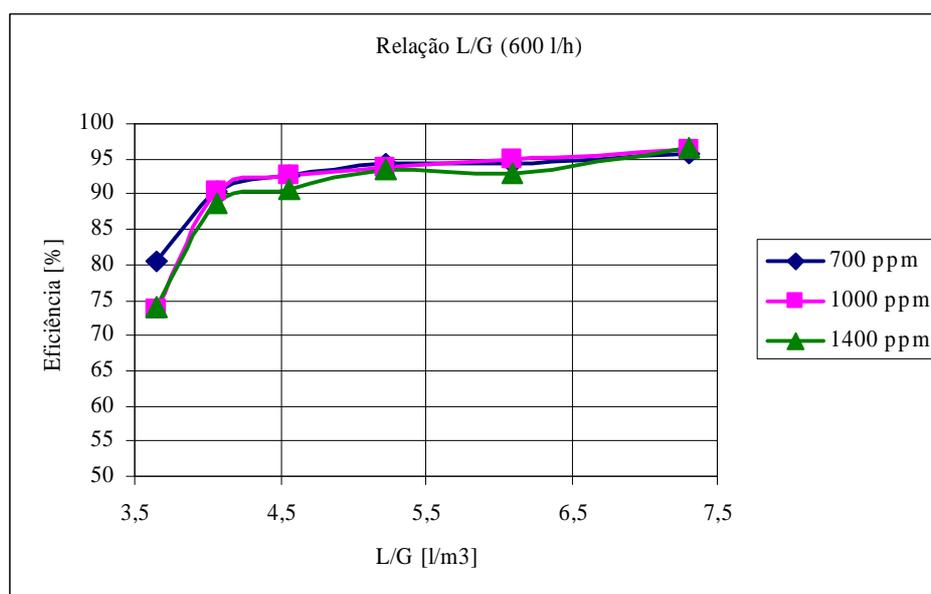


Figura 4.5: Eficiência em função da relação L/G, para vazão de água de 600 l/h.

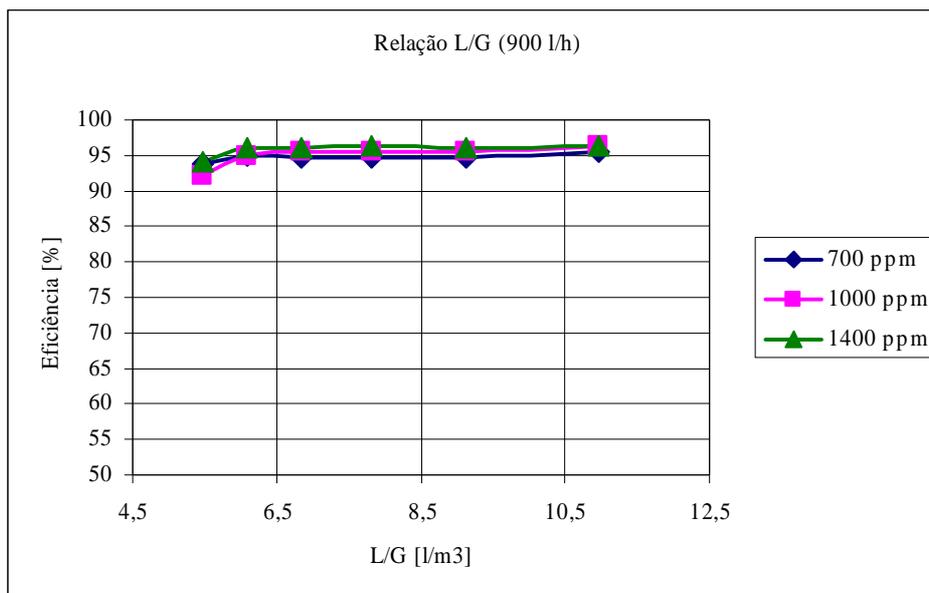


Figura 4.6: Eficiência em função da relação L/G, para vazão de água de 900 l/h.

As figuras 4.4, 4.5 e 4.6 mostram que a eficiência praticamente se mantém constante em relações L/G acima de  $6 \text{ l/m}^3$ , de 94% a 96%, abaixo deste valor a eficiência de absorção se apresentou entre 60% e 93%. Pode ser verificada a influência da concentração de  $\text{SO}_2$ , na eficiência de absorção até relação l/g de  $4 \text{ l/m}^3$ .

A figura 4.7 mostra a eficiência em função da relação l/g para todas as condições já descritas.

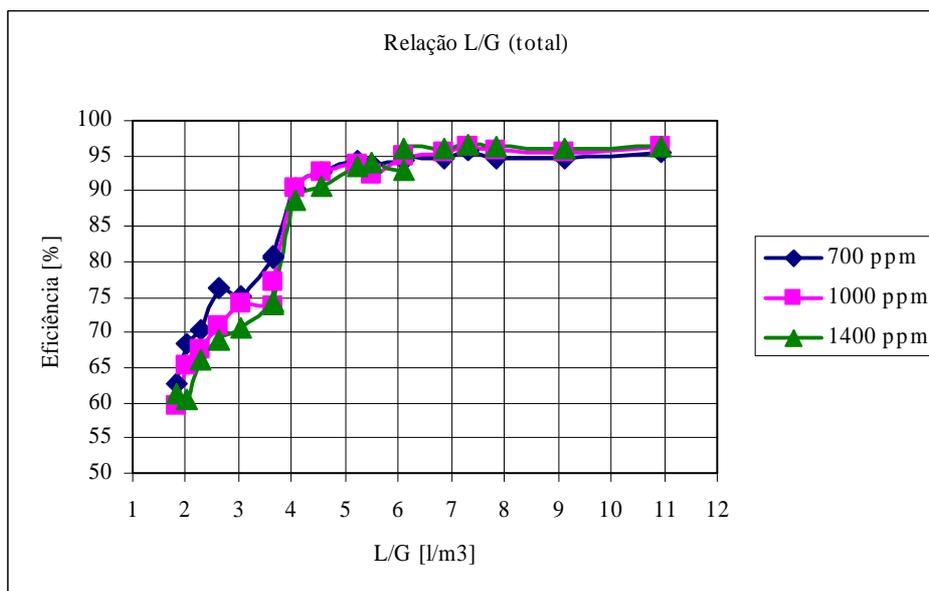


Figura 4.7: Eficiência em função da relação L/G, para todas as condições de operação.

Através da Figura 4.7 pode ser verificada a forte influência da relação L/G na eficiência de absorção, abaixo de  $5 \text{ l/m}^3$  a diminuição na eficiência ocorre de maneira acentuada.

## 5. Conclusões

O estudo experimental da absorção de  $\text{SO}_2$  na torre de nebulização mostrou a influência das variáveis: tempo de residência do gás, vazão de líquido, concentração de  $\text{SO}_2$  na entrada e relação l/g (vazão de líquido em relação à vazão de gás), na eficiência de absorção na torre de nebulização. A vazão de líquido demonstrou ter grande influência na eficiência de absorção, pois quanto maior vazão de líquido, maior será a área interfacial, portanto

maior absorção. No entanto a influência da vazão de líquido na eficiência de absorção demonstrou ter limite, pois os resultados mostraram, que a eficiência se mantém praticamente constante (da ordem de 95%) em relações l/g acima de 6 l/m<sup>3</sup>. Este fato pode ser explicado através da maior coalescência das gotas, pois sua intensidade deve aumentar quanto maior for a vazão de líquido, fazendo com que a área interfacial não aumente e consequentemente também não aumente a taxa de transferência de massa. A coalescência das gotas diminui a quantidade de gotas, assim reduz a área interfacial em relação ao volume de líquido, pois aumenta o diâmetro médio das gotas. Em relações l/g abaixo do correspondente ao limite máximo de eficiência, foi demonstrada experimentalmente a influência do tempo de residência e a concentração de SO<sub>2</sub> na entrada.

Através dos experimentos realizados foi notado que com a configuração atual da torre sua eficiência atingiu seu limite máximo, sendo assim para alcançarmos eficiências de absorção superiores seriam necessárias modificações do equipamento, como mudança na disposição dos bicos pulverizadores, bem como a troca dos mesmos.

## **6. Referências Bibliográficas**

- Baumbach, G. Air Quality Control. Berlim: Springer, 1996, 385 p.
- Brogren, C., Karlsson, H.T. Modeling the Absorption of SO<sub>2</sub> in a Spray Scrubber Using the Penetration Theory. Chemical Engineering Science, v.52, (18), pp.3085-3099, 1997.
- De Nevers, N. Air Pollution Control Engineering. New York: McGraw - Hill, 1995, 576 p.
- Golesworthy, T. Flue Gas Cleaning Review: Part 3. Filtration and Separation, v.14, pp.162-165, 1999.
- Krissmann, M., Siddiqir, M. A., Lucas, K. Thermodynamics of SO<sub>2</sub> Absorption in Aqueous Solution. Chem.Eng.Technol., v.21, (8), pp.641-644, 1998.
- Pinilla, E. A., Díaz, J. M., Coca, J. Mass transfer and axial dispersion in a spray tower for gas-liquid contacting. The Canadian Journal of Chemical Engineering, v.62, pp. 617-622, 1984.
- Schmidt, B., Stichlmair, J. Two-Phase Flow and Mass Transfer in Scrubbers. Chem.Eng.Technol., v.14, pp.162-165, 1991.

# MODELAGEM DO FENÔMENO DE TRANSFERÊNCIA DE MASSA DE ÍONS INORGÂNICOS DO CHORUME NO SOLO

## **Adriana de Souza Forster Araújo**

Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica-EEIMVR-UFF, Av. dos Trabalhadores 420 – Vila Sta. Cecília – 27255-125 – Volta Redonda – RJ

[adriana@metal.eeimvr.uff.br](mailto:adriana@metal.eeimvr.uff.br)

## **José Adilson de Castro**

Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica-EEIMVR-UFF, Av. dos Trabalhadores 420 – Vila Sta. Cecília – 27255-125 – Volta Redonda – RJ

[adilson@metal.eeimvr.uff.br](mailto:adilson@metal.eeimvr.uff.br)

## **Alexandre José da Silva**

Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica-EEIMVR-UFF, Av. dos Trabalhadores 420 – Vila Sta. Cecília – 27255-125 – Volta Redonda – RJ

[ajs@metal.eeimvr.uff.br](mailto:ajs@metal.eeimvr.uff.br)

## **Elizabeth Ritter**

Programa de Pós Graduação em Engenharia Ambiental, Departamento de Engenharia Sanitária e do Meio Ambiente, UERJ, Rua São Francisco Xavier, 524/5029-F Maracanã - 20550-900 - Rio de Janeiro - RJ

[ritter@uerj.br](mailto:ritter@uerj.br)

Resumo: O presente trabalho consiste no desenvolvimento e validação de um modelo de previsão da dinâmica dos íons inorgânicos, amônio e potássio, nos solos de aterros. O modelo baseia-se na solução simultânea das equações de movimento do líquido contaminante (chorume) no meio poroso (solo), com as respectivas equações de transporte do mesmo. O fenômeno de sorção é modelado através da determinação das taxas de transferência de massa acopladas às equações de transporte dos contaminantes. As equações resultantes da modelagem são resolvidas numericamente através da técnica de volumes finitos. O modelo é validado através dos resultados de ensaios de difusão, disponíveis na literatura. A modelagem proposta neste trabalho baseia-se em um mecanismo de resistência ao transporte devido a três processos distintos: 1) transporte do contaminante da fase líquida até a superfície da partícula; 2) sorção/desorção do contaminante na superfície da partícula e 3) difusão do contaminante no interior do líquido que penetra na partícula de solo. A formulação da taxa total de transferência de massa pode ser estabelecida através de uma equação que represente o transporte na camada limite hidrodinâmica, sorção na interface e difusão na camada limite de concentração na superfície da partícula. Os resultados obtidos para as condições de laboratório foram utilizados em simulações computacionais visando demonstrar a capacidade de previsão do modelo e ajustes dos parâmetros visando a determinação e aferição de modelos para aplicações em monitoramento do solo. Os resultados obtidos foram comparados com resultados simulados utilizando-se como condição de contorno apenas o fenômeno da sorção modelados a partir das isotermas de sorção.

*Palavras-Chave: Modelagem computacional, Cinética de sorção, chorume.*

## **1. Introdução**

A deposição final e o transporte de poluentes inorgânicos que atingem o solo e subsolos podem estar diretamente relacionados com os fenômenos da sorção/desorção, difusão e convecção. Estes processos ocorrem devido à interação entre as fases líquidas e sólidas do solo. No modelamento de sistemas envolvendo fases líquidas e sólidas, contaminantes / solo, é necessário que os fenômenos de transferência de massa sejam quantificados (Perry et al, 1995). Sendo possível assim, uma avaliação do risco ou da definição de alternativas de descontaminação.

A sorção pode ser considerada um termo genérico, utilizado para indicar os processos pelos quais os solutos (íons, moléculas e compostos) são repartidos entre a fase líquida / gasosa e a superfície das partículas sólidas do solo. Frequentemente, o termo sorção é considerado sinônimo do termo adsorção que se refere à adesão de íons ou moléculas do fluido na superfície das partículas do solo. A desorção refere-se ao processo contrário à sorção, isto é, a transferência de matéria (íons, moléculas, compostos) da fase sólida para a fase líquida do solo.

A difusão molecular dos solutos ocorre em função do gradiente de concentração das espécies químicas, gradiente este que será a sua força motriz, independentemente da existência ou não de um movimento do fluxo.

A identificação das leis que regem os mecanismos de transporte, seleção de um modelo teórico, determinação de parâmetros específicos para cada caso e resolução das equações que regem o problema, é de fundamental importância para um adequado modelamento do processo de transporte de contaminantes. As análises de campo não devem ser desprezadas, para a valiação do modelo e realização de previsões mais eficientes.

É comum que se considere que este fenômeno seja linear e não dependa da saturação da água no solo, Perry et al (1985). Porém, em muitos casos, esta consideração resulta em discrepâncias entre os modelos e resultados experimentais obtidos em campo e laboratório, Leite et al (2001).

A avaliação do fenômeno sorcivo em um aquífero, é em geral, realizada através das isotermas de sorção. Estas correspondem às funções que correlacionam valores de concentração no meio poroso com valores de concentração na solução que faz parte do transporte de contaminantes. Para o caso de baixas concentrações, o processo de adsorção pode ser modelado como sendo linear e reversível. Porém, para altas concentrações, a adsorção é não-linear e relações mais complexas entre as concentrações na fase sólida e no soluto têm sido idealizadas. Os modelos mais utilizados para descrever o comportamento de adsorção do solo são os de Freundlich e Langmuir, Leite (2001).

Através da simulação computacional a previsão do transporte dos contaminantes foi determinada para as condições de saturação do ensaio de difusão. Os resultados de concentração dos contaminantes ao longo do tempo utilizando-se de equações de taxas de transferência de massa foram comparados com resultados experimentais apresentados na literatura. As previsões do modelo mostraram-se em melhor concordância com os resultados experimentais quando comparados com modelos teóricos baseados em isotermas de sorção.

Os parâmetros experimentais utilizados neste trabalho foram baseados nos resultados obtidos experimentalmente por Ritter & Gatto (2003). Foram realizados ensaios de difusão molecular com o solo e o choroço do Aterro Metropolitano de Gramacho, localizado na cidade de Duque de Caxias – RJ.

## 2. Modelagem

### 2.1. Transporte de *Momentum*

O movimento do líquido no interior do recipiente utilizado no ensaio de difusão, pode ser modelado segundo as equações de transporte de momentum em um leito poroso (Poirier et al, 1994) conforme mostrado na Eq. (1).

$$\frac{\partial(\rho_1 \varepsilon_1 u_k)}{\partial t} + \text{div}(\rho_1 \varepsilon_1 \bar{U}_1 u_k) = \text{div}(\mu_1 \text{grad } u_k) + \rho_1 \varepsilon_1 \bar{g} + F_s^1 \quad (1)$$

Simultaneamente, visando determinar a fração volumétrica de líquido,  $\varepsilon_1$ , a equação da continuidade é resolvida (Bird et al, 2002; Sillatery, 1999).

$$\frac{\partial(\rho_1 \varepsilon_1)}{\partial t} + \text{div}(\rho_1 \varepsilon_1 \bar{U}_1) = 0 \quad (2)$$

A interação solo- líquido é modelada pela equação de Kozeny-Karmam modificada que representa de forma satisfatória a condição de escoamento em leito poroso não saturado, Castro(2000), Gaskel (1992) e Poirier et al (1994).

$$\bar{F}_s^1 = \frac{\rho_1}{r_h} |\bar{U}_1 - \bar{U}_s| \left( 5\beta + 0.4\beta^{0.1} \right) (\bar{U}_1 - \bar{U}_s) \quad (3)$$

Onde  $\rho_1$  representa a densidade da fase líquida,  $\bar{U}_1$  a velocidade da fase líquida,  $\bar{U}_s$  a velocidade da fase sólida,  $r_h$  o raio hidráulico,  $\beta$  o coeficiente de arraste, ambos definidos a seguir:

$$\beta = \frac{\mu_L}{\rho_L |\bar{U}_L - \bar{U}_S| r_h} \quad (4)$$

$$r_h = \frac{\phi_L \phi_S d_S}{6 \varepsilon_S} \quad (5)$$

## 2.2. Equações de transporte de contaminantes

O transporte dos contaminantes amônio e potássio, que são compostos contidos no chorume de aterros pode ser transportado por sorção, advecção e difusão no interior dos solos. A eq. 6 representa o transporte do contaminante no líquido e sua absorção pelo solo. Na Eq. 6, o índice  $i$  representa o solo ou o líquido do chorume. As variáveis  $\phi_k$  representam os contaminantes nas fases sólida e líquida, respectivamente. Para o caso dos contaminantes é necessário a solução simultânea das espécies químicas tanto na fase sólida quanto na fase líquida, Bird et al (2002) e Castro (2000).

$$\frac{\partial(\rho_i \varepsilon_i \phi_k)}{\partial t} + \text{div}(\rho_i \varepsilon_i \bar{U}_i \phi_k) = \text{div}(\Gamma_\phi \text{grad} \phi_k) + S_\phi \quad (6)$$

Os chamados termos fontes da eq. 6 englobam a transferência de massa da fase sólida para a fase líquida e vice-versa. A modelagem dos termos fontes para este trabalho foram modelados segundo um mecanismo de resistência ao transporte devido a 3 processos distintos: 1) transporte do contaminante da fase líquida até a superfície da partícula; 2) sorção/desorção do contaminante na superfície da partícula e 3) difusão do contaminante no interior do líquido que penetra no interior da partícula de solo. Estes 3 processos são esquematicamente visualizados na figura 1.

A Figura 1 representa os fenômenos que ocorrem dentro e fora da partícula sólida. No interior da partícula acontece o fenômeno difusivo estacionário, ou seja, a difusão ocorre devido ao gradiente de concentração existente no líquido intersticial.

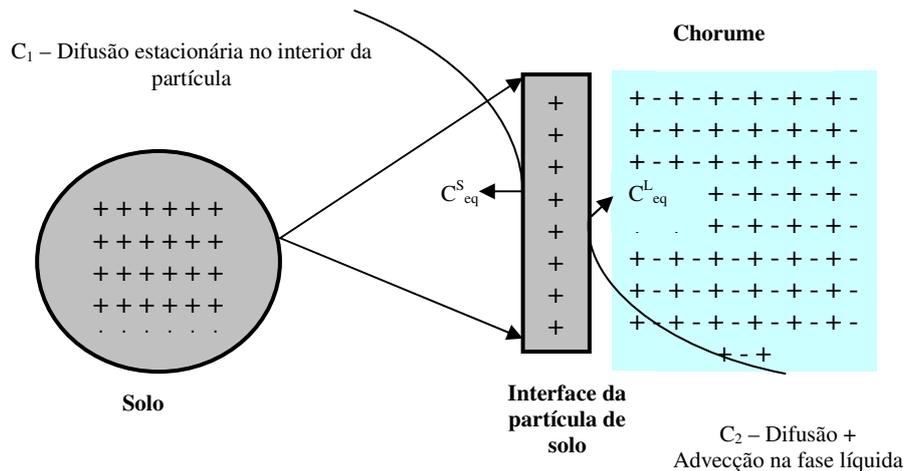


Figura 1: Mecanismo para a formulação da cinética de sorção de contaminantes inorgânicos.

Na parte externa, que está em contato com o contaminante, a difusão e a convecção ocorrem simultaneamente, formando uma camada limite hidrodinâmica e de concentração. Na interface ocorre fenômenos de sorção nos sítios ativos. A concentração de equilíbrio no líquido intersticial da partícula é diferente da concentração de equilíbrio na fase líquida do contaminante. Isto se deve à ação física e química da fina parede da partícula, que permite a ocorrência de um equilíbrio químico no líquido intersticial e um equilíbrio diferente no contaminante. A geometria da partícula sólida naturalmente influencia os valores da concentração de equilíbrio dentro e fora da mesma, balanceando as forças para permitir que o equilíbrio ocorra mesmo havendo gradiente de concentração da fase líquida no interior da partícula e a fase líquida no líquido contaminante.

A taxa de transferência de massa no sistema dependerá dos mecanismos de renovação do contaminante na camada limite, a sorção propriamente dita na superfície e posterior difusão para o interior da partícula. A formulação da taxa total de transferência de massa poderá ser estabelecida através de uma analogia de circuitos elétricos com uma resistência em série do transporte na camada limite hidrodinâmica, sorção na interface e difusão na camada limite de concentração no exterior da partícula.

A taxa de transferência de massa foi então formulada como segue:

$$\frac{dC}{dt} = k A_{1-s} \beta_e [\rho_{\text{líquido}} \epsilon_{\text{líquido}}] [C_i^{L,S} - C_{eq_i}^{L,S}]^n \quad (7)$$

Onde:

$k$  = constante cinética;

$C_i^{L,S}$  = concentração da espécie química na fase líquida (chorume) em função do tempo;

$C_{eq_i}^{L,S}$  = concentração de equilíbrio da espécie química na fase líquida contida nos interstícios do solo;

$n$  = expoente que indica a ordem da equação.

O termo  $A_{1-s}$  representa a área de contato entre as fases sólida e líquida é calculada a partir da equação 8 (Yagi, 1993).

$$A_{1-s} = \frac{6 \epsilon_s}{\phi_s d_s} \quad (8)$$

Onde:

$\epsilon_s$  = fração volumétrica da fase sólida;

$d_s$  = diâmetro médio das partículas de solo ( $\mu\text{m}$ );

$\phi_s$  = fator de forma da partícula de solo.

O coeficiente de transferência de massa  $\beta_e$  (m/s) no interior do fluido contaminante pode ser modelado como segue, segundo Oeters et al (1994);

$$\beta_e = \frac{Sh D_i^l}{\phi_s d_s} \quad (9)$$

$D_i^l$  = coeficiente de difusão da espécie química  $i$ , na fase líquida ( $\text{m}^2/\text{ano}$ );

$Sh$  = número de Sherwood.

$$Sh = 1,17(\text{Re}_{1-s})^{0,585} (\text{Sc}_i)^{1/3} \quad (10)$$

$\text{Re}$  = número de Reynolds modificado entre as fases líquidas e sólidas definido na equação 11;

$\text{Sc}_i$  = número de Schmidt.

$$\text{Re}_{1-s} = \frac{\rho_l \epsilon_l |U_l - U_s|}{\mu_l} \phi_s d_s \quad (11)$$

$$\text{Sc}_i = \frac{\mu_l}{\rho_l D_i^l} \quad (12)$$

O termo  $\mu_l$  representa a viscosidade da fase líquida,  $\rho_l$  a densidade da fase líquida e  $D_i^l$  coeficiente de difusão da espécie química (íon), na fase líquida.

As equações que representam a taxa de transferência de massa para os íons envolvidos neste estudo, foram formuladas, para fins da simulação, da seguinte forma:

$$\frac{dc}{dt} = - k \beta_e A_{s-1} [\rho_{\text{líquido}} \epsilon_{\text{líquido}}] [C_i^l - C_{eq_i}^l]^n * C_i^l \quad (13)$$

O sinal negativo indica o sentido da transferência de massa, que neste caso é do líquido para o sólido (do chorume para o solo).

O termo  $i$  representa os íons ( $\text{K}^+$  e  $\text{NH}_4^+$ ) que são sorvidos pelo solo.

### 2.3. Simulação numérica

A solução das equações de momentum acopladas ao transporte de contaminantes nas fases líquida e sólida foram resolvidada através da técnica de volumes finitos, Patankar (1985). As equações discretizadas foram resolvidas através do algoritmo tridiagonal com método de varredura linha por linha, Patankar (1985).

Utilizando-se o código computacional desenvolvido em Linguagem Fortran 90/95, Castro(2000) e de posse dos resultados experimentais obtidos por Ritter & Gatto (2003), foram realizadas simulações para reproduzir os ensaios de difusão visando a determinação das constantes do modelo. Em seguida, as equações de taxas de transferência de massa foram aplicadas ao ensaio de difusão molecular para reprodução do fenômeno de percolação de contaminantes inorgânicos em aterros.

### 3. Resultados e Discussões

Foram realizadas simulações em duas fases distintas: 1) Validação do modelo e 2) ajuste de constantes – nesta fase foi simulado o ensaio de difusão.

Pinto (2004) também utilizou os mesmos dados experimentais para simular a difusão molecular. Os resultados obtidos foram comparados com as simulações realizadas por Ritter e Gatto em 2003, utilizando o POLLUTE.

Os valores dos coeficientes de difusão molecular dos íons utilizados foram aproximados dos valores encontrados para os mesmos íons em solução aquosa a 25°C extraídos da literatura (Lerman, 1979). A Tabela 1 apresenta estes valores de coeficiente de difusão livre ( $D_0$ ).

Tabela 1 – Valores de  $D_0$  para os cátions  $K^+$  e  $NH_4^+$  em solução aquosa a 25°C.

ÍON	$D_0$ (m <sup>2</sup> /ano)
$K^+$	0,062
$NH_4^+$	0,062

Fonte: LERMAN (1979)

A Tabela 2 apresenta uma comparação entre os valores de coeficiente de difusão efetivo ( $D_e$ ). São comparados os valores utilizados nas simulações realizadas nesta pesquisa, considerando um modelo da cinética de transferência de massa e os coeficientes utilizados por Pinto (2004) e Ritter e Gatto (2003) (através do POLLUTE), considerando um modelo baseado na sorção da espécie química, modelado a partir das isotermas de sorção.

Tabela 2 – Valores de  $D_e$  para os cátions  $K^+$  e  $NH_4^+$  utilizados nas simulações realizadas em 2005, 2004, e 2003.

ÍON	$D_e$ (m <sup>2</sup> /ano) <sup>(a)</sup>	$D_e$ (m <sup>2</sup> /ano) <sup>(b)</sup>	$D_e$ (m <sup>2</sup> /ano) <sup>(c)</sup>
$K^+$	0,010	0,020	0,020
$NH_4^+$	0,020	0,010	0,070

<sup>a</sup> Valores de  $D_e$  utilizados nas simulações realizadas neste trabalho (2006); <sup>b</sup> Valores de  $D_e$  utilizados por Pinto (2004); <sup>c</sup> Valores de  $D_e$  utilizados por Ritter e Gatto (2003), para simulação através do POLLUTE.

Na Tabela 3, estão apresentados os valores da constante cinética  $k$ , da concentração de equilíbrio  $C_{eq}$  e do coeficiente  $n$  de ordem de equação para cada espécie química simulada. Os valores para  $k$  e  $n$  foram definidos de acordo com os ajustes obtidos entre as curvas da simulação e os pontos experimentais. E os valores para  $C_{eq}$  foram determinados em função das concentrações dos íons contidas nos interstícios da amostra de solo.

TABELA 3 – Valores de  $k$ ,  $C_{eq}$  e  $n$  considerados na simulação computacional.

ÍON	$k$	$C_{eq}$ (mg/l)	$n$
$K^+$	1,05*10 <sup>-5</sup>	434,4	1,32
$NH_4^+$	2,5*10 <sup>-2</sup>	754,4	1,75

Foram realizados ajustes finos nos coeficientes  $k$ ,  $C_{eq}$  e  $n$ , da equação modelada para que esta convergisse de modo a refletir os dados obtidos experimentalmente.

Os ensaios de difusão molecular foram realizados por Ritter e Gatto (2003), e os resultados obtidos foram utilizados como dados para a simulação computacional. O ensaio de difusão molecular foi realizado na célula modelo Barone et al. (1989) com 10 cm de diâmetro. A célula foi montada com 5 cm de solo e acima deste chorume até atingir um nível de 5 cm, denominado reservatório (Figura 2). O ensaio de difusão durou 3 dias; este tempo foi definido após ensaios prévios (Ritter et al, 2001), variando o período em 3, 5 e 7 dias. Ao final do ensaio a amostra foi fatiada, e o líquido intersticial de cada fatia extraído através do equipamento na prensa pneumática para análise química.



Figura 2: Célula conforme o modelo de Barone, contendo as amostras de solo e de chorume.

Nas figuras 3 e 4 estão apresentados os gráficos dos perfis de difusão molecular para os íons  $K^+$  e  $NH_4^+$  presentes no chorume, através do reservatório e da amostra de solo, ambos contidos na célula experimental por um período de ensaio de 72 horas (Ritter e Gatto, 2003).

Na parte superior da célula, reservatório de chorume, a difusão dos íons ocorre em solução livre. Já na amostra de solo ocorre a difusão efetiva dos íons através dos interstícios das partículas sólidas devido aos efeitos da tortuosidade e da porosidade.

Os gráficos mostram os valores das concentrações presentes inicialmente no reservatório de chorume e na amostra de solo.

Os valores das concentrações obtidas durante os ensaios experimentais estão representados pelos quadrados, presentes nos gráficos. A linha tracejada e pontilhada representa os dados numéricos obtidos através da simulação utilizando-se o POLLUTE; a linha tracejada, os dados numéricos obtidos através da simulação realizada por PINTO (2004) utilizando o mesmo programa em linguagem fortran utilizado neste trabalho. A linha contínua representa os dados numéricos obtidos, porém com o cálculo do termo fonte baseado na equação da cinética de transferência de massa.

As linhas (1), (2) e (3) representam respectivamente, a concentração inicial do íon no reservatório, a concentração inicial do íon na amostra de solo e a interface entre o reservatório e a amostra de solo.

A simulação realizada através do programa MPHMTM permite que a interface entre a amostra de solo e o reservatório de chorume sobre ela seja parte integrante do domínio de cálculo, onde a solução numérica reproduz as camadas limites de difusão na região de interface. Na modelagem com o programa POLLUTE, a interface entre o reservatório de chorume e a amostra de solo demanda a especificação de uma condição de contorno, geralmente fixa, que pode não reproduzir perfeitamente a dinâmica da troca de massa entre as duas regiões. A transferência de massa calculada pelo modelo do programa utilizado pode ser observada através da variação de concentração no reservatório de chorume acima da amostra de solo, o que não é calculado pelo modelo POLLUTE (Ritter & Campos, 2006).

Na parte superior da célula experimental, onde está contido apenas chorume, ocorrem os processos de difusão e advecção. Na parte inferior, a transferência de massa entre os íons do chorume e as partículas de solo acontece devido à ação simultânea dos fenômenos de difusão molecular, sorção e advecção.

A partir do gráfico da Figura 3, é possível observar o bom ajuste da curva obtida pelo neste estudo através do modelo cinético com os dados experimentais para o íon  $K^+$ , quando comparados com o programa POLLUTE e com o modelo sorçivo apresentado por Pinto (2004). A linha inteira, a qual rrpresenta o modelo simulado, intercepta os três pontos obtidos experimentalmente, o que não é possível de ser observado tanto na simulação com o Pollute, quando na simulação realizada por Pinto (2004), ambas modeladas em isotermas de sorção. Então é possível verificar que o modelo baseado no fenômeno de transferência de massa, representa com melhor fidelidade os resultados de tranporte de contaminantes obtidos nos ensaios de laboratório.

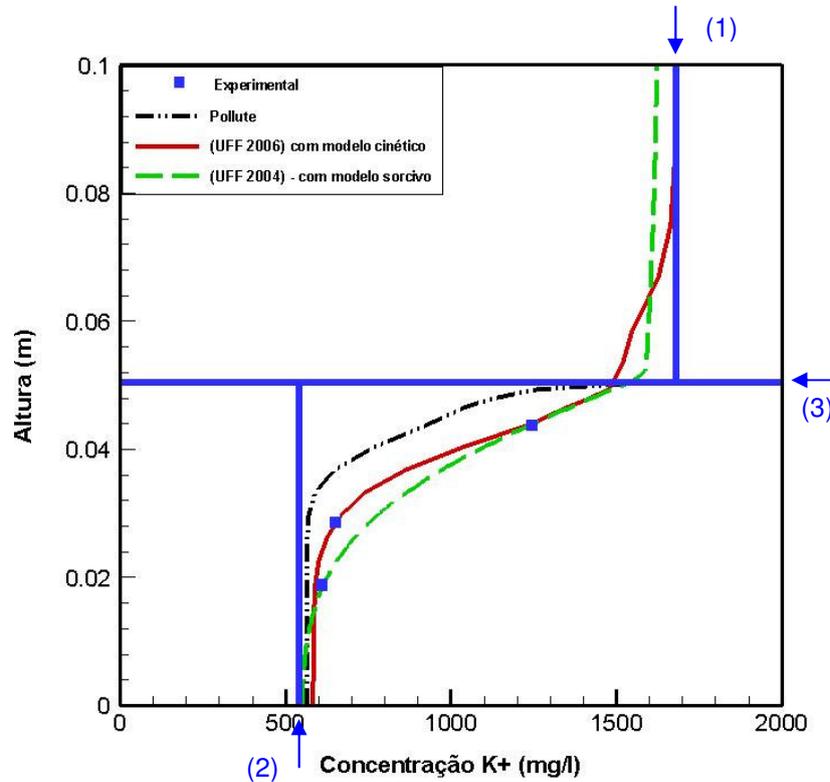


Figura 3 – Perfil da difusão molecular do  $K^+$ , utilizando os resultados experimentais de 2003 (72 horas de ensaio).

A simulação para o íon  $NH_4^+$  também apresentou um melhor ajuste com os dados experimentais quando considerado o modelo da cinética de transferência de massa, como pode ser verificado na Figura 4. A curva modelada intercepta três dos quatro pontos obtidos experimentalmente, e passa bem mais próximo do terceiro ponto quando comparado com as simulações modeladas nas isotermas de sorção. Novamente é possível verificar a melhor eficiência da simulação modelada a partir do fenômeno de transferência de massa.

Os valores dos coeficientes de difusão efetiva considerados para a simulação dos íons  $K^+$  e  $NH_4^+$  foram 16,13% e 32,25%, respectivamente, menores do que os valores do coeficiente de difusão em solução livre destes íons, em solução aquosa a 25°C, extraídos da literatura.

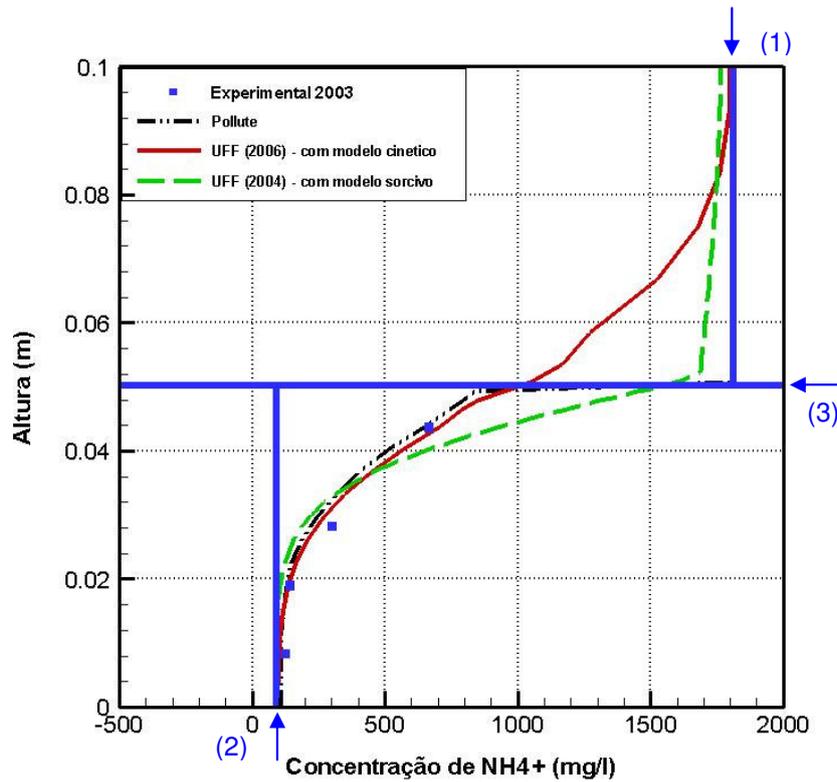


Figura 4 - Perfil da difusão molecular do  $\text{NH}_4^+$ , utilizando os resultados experimentais de 2003 (72 horas de ensaio).

As figuras 5 e 6 abaixo, descrevem o comportamento da concentração dos íons  $\text{K}^+$  e  $\text{NH}_4^+$  no solo em função do tempo.

De acordo com a caracterização do solo do aterro em estudo (Ritter e Gatto, 2003), o valor da concentração inicial do íon  $\text{K}^+$  no líquido intersticial do solo é 543 mg/L. O gráfico da Figura 5 mostra que esta concentração aumenta à medida que o tempo de contato entre o solo e o chorume se torna maior.

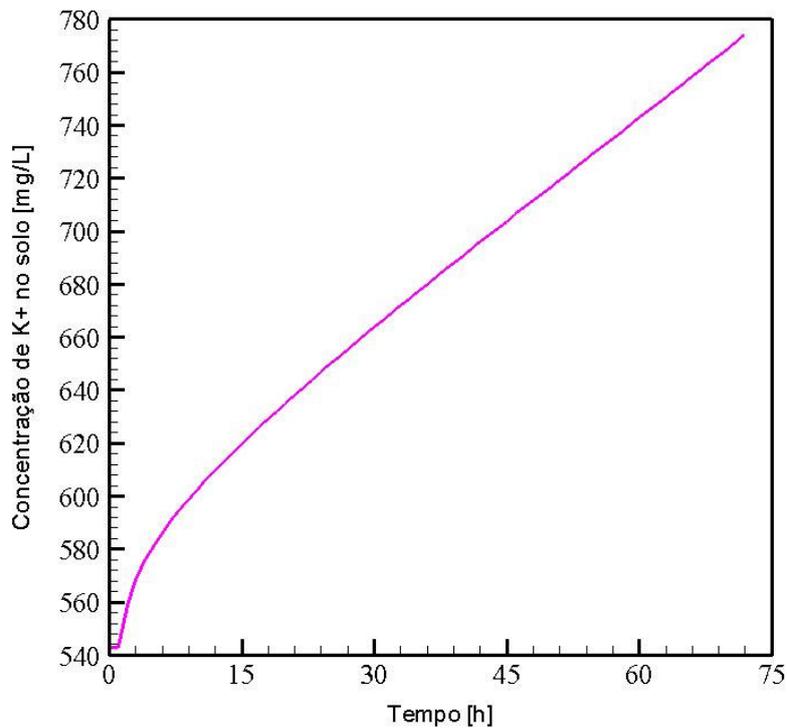


FIGURA - Gráfico da concentração x tempo do íon  $\text{K}^+$ .

Do mesmo modo que o íon  $K^+$ , a concentração do íon  $NH_4^+$  (Figura 6) também aumenta no solo. Logo é possível observar, claramente, que estes dois íons, são transferidos do chorume para o solo, pois a concentração dos mesmos é maior no líquido do que nos interstícios do solo.

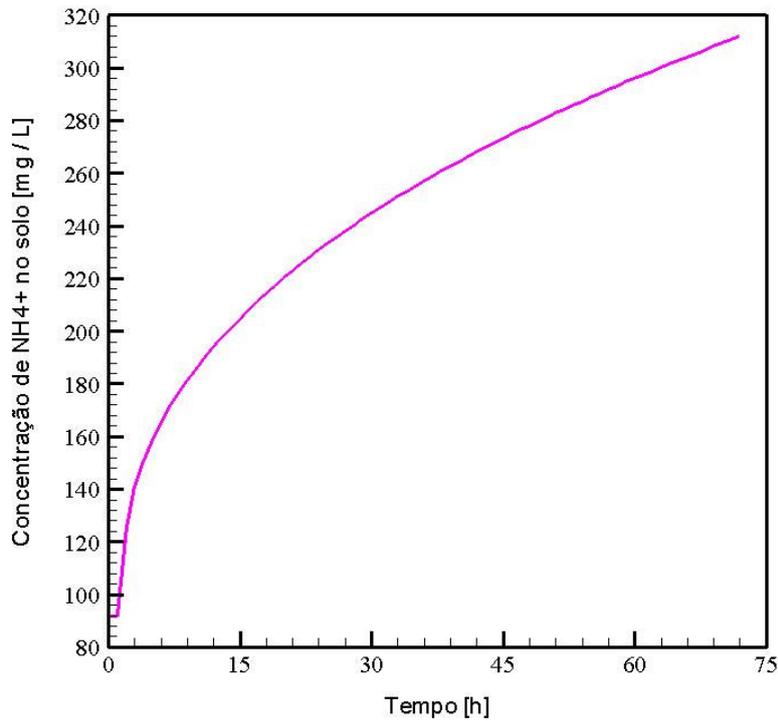


FIGURA 6 - Gráfico da concentração x tempo do íon  $NH_4^+$ .

As Figuras 7 e 8 apresentam o comportamento da taxa de transferência de massa das espécies químicas  $K^+$  e  $NH_4^+$  em toda a célula de difusão (a) e em um ponto próximo à interface (b). Observa-se que no início do ensaio a taxa de transferência é alta, pois a área de contato solo/chorume é grande. Porém, à medida esta área diminui a taxa de transferência conseqüentemente diminui.

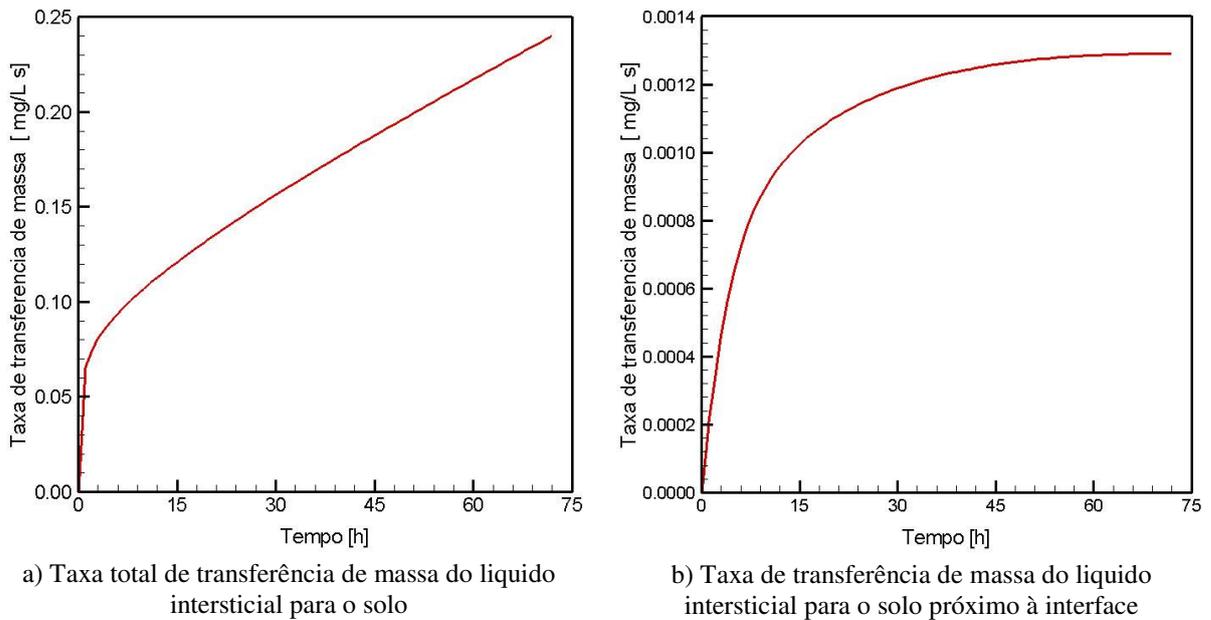


FIGURA 7 – Cinética de transferência de massa solo-chorume para o íon  $K^+$ .

A figura 8 (a) representa taxa de transferência de massa do íon  $\text{NH}_4^+$  em toda a célula de difusão. É possível verificar que ocorre uma rápida transferência deste íon no início do ensaio, ou seja, a fase sólida, solo, é rapidamente saturada em  $\text{NH}_4^+$ . Na figura 8 (b) a taxa de transferência de massa é apresentada em um ponto da célula de difusão próximo à interface solo/chorume.

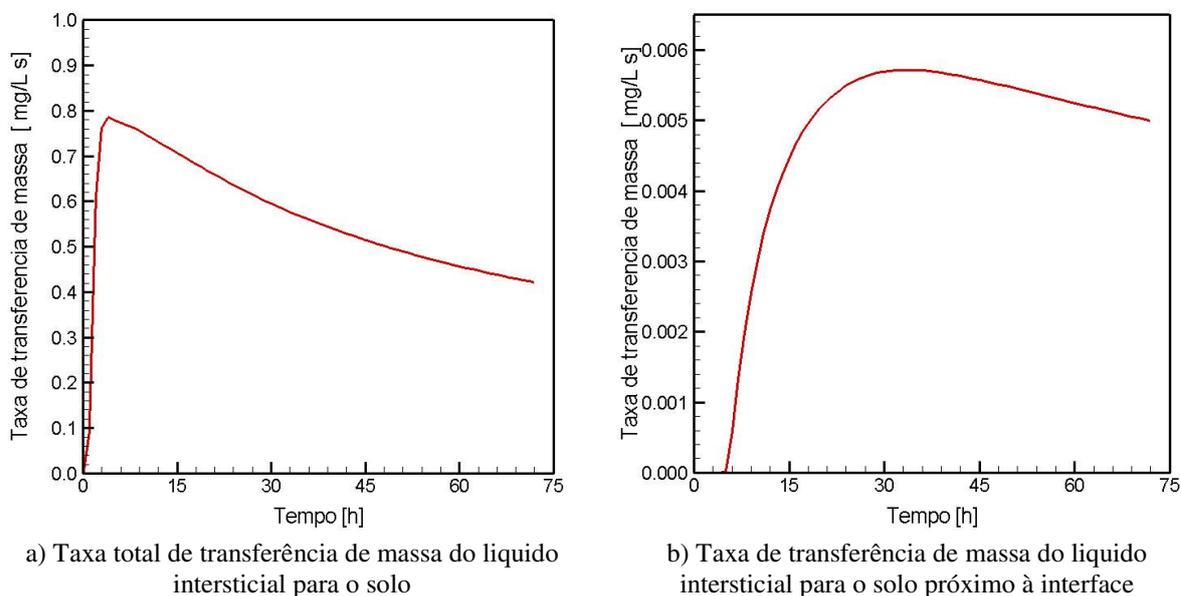


FIGURA 8 – Cinética de transferência de massa solo-chorume para o íon  $\text{NH}_4^+$ .

#### 4. Conclusões

Um código computacional capaz de prever o comportamento do fenômeno de transferência de massa de contaminantes inorgânicos encontrados nos chorumes de aterros foi desenvolvido e validado. Como base de estudo foram selecionados os contaminantes potássio e amônio que possui características de média a forte taxa de sorção em solos arenosos. Os resultados demonstraram a forte não linearidade do comportamento das taxas de sorção, o que inviabiliza o uso de isotérmicas de sorção linear para a previsão do comportamento dos mesmos. Para ambos os contaminantes selecionados o modelo proposto mostrou-se eficiente para a previsão do comportamento do transporte de transferência de massa para os testes de difusão molecular. Resultados experimentais mostram que mudanças bruscas na tangente  $dc/dt$  devem ser explicadas através das mudanças de mecanismos de transferência.

Para os íons estudados, foi observada uma melhor aproximação entre os valores experimentais e os simulados, quando considerado o modelo de transferência de massa. Este fato é atribuído ao grau de liberdade existente na equação modelada, pois existem vários parâmetros a serem trabalhados, ao contrário do modelo baseado nas isotérmicas de sorção da espécie química, onde só se trabalha com o coeficiente de distribuição ( $k_d$ ) e o coeficiente de difusão ( $D_0$ ).

Os resultados da simulação realizada neste trabalho mostraram que o processo de migração dos íons inorgânicos do chorume no solo ocorre por três mecanismos fundamentais: advecção e difusão na fase líquida (chorume), sorção na interface solo/chorume e difusão no líquido contido no interior da partícula do solo. Somente a difusão molecular e a sorção não representam com fidelidade os valores experimentais obtidos, sendo então possível comprovar que ocorre também o fenômeno de transferência de massa dos íons do contaminante e do líquido intersticial do solo para a própria partícula do solo, e vice-versa.

#### 5. Agradecimentos

Os autores agradecem ao **CNPq** e **CAPES** por incentivar e fomentar o desenvolvimento científico e tecnológico nacional.

## 6. Referências

- Barone, F.S.; Yanful, E.K.; Quigley R.M. & Rowe, R.K. Effect of multiple contaminant migration on diffusion and adsorption of some domestic waste contaminants in a natural clayey soil. *Canadian Geotechnical Journal*, v. 26, p. 189-198, 1989.
- Bird, R. B., Stewart, W. E. and Lightfoot, E. N. 2002. *Transport Phenomena*, 2nd ed., John Wiley and Sons, New York, NY, USA, p. 114-140.
- Castro, J. A. 2000. A multi-dimensional transient mathematical model of blast furnace based on multi-fluid model. Institute for Advanced Materials Processing. Tohoku University, Japan, 150 p.
- Gaskell, D.R. 1992. An Introduction to transport phenomena in Materials Engineering, Macmillan Publishing Company, New York, NY, USA, p. 522-598.
- Leite, A.L. 2001 Migração de Ions Inorgânicos em Alguns Solos Tropicais, com Ênfase nos Processos de Sorção e Difusão Molecular, Tese de Doutorado, Escola de Engenharia de São Carlos, Universidade de São Paulo.
- Oeters, F. 1994. *Metallurgy of Steelmaking*, Stahleisen, Berlin, Germany, p. 155-157.
- Patankar, S.V. 1985. *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*, Hemisphere Publishing Company, Washington, USA, 197 p.
- Perry, R. H. e Green, D. 1985. *Perry's Chemical Engineers' Handbook*, Sixth edition. McGraw-Hill Publish Company. New York, NY, USA, p. 16-21 – 16-32.
- Pinto, I.C.R. Modelamento e simulação computacional da migração dos íons do chorume em meio poroso. 2004. 81 f. Dissertação de Mestrado - Programa de Pós Graduação em Engenharia Metalúrgica. Universidade Federal Fluminense. Volta Redonda, 2004.
- Poirier, D.R. and Geiger, G.H. 1994. *Transport Phenomena in Materials Processing*, TMS, 509 p.
- Ritter, E.; Leite, A E.B. & Machado, V.F. Avaliação da capacidade de mitigação da argila orgânica presente na fundação e nas valas de contenção lateral para o chorume gerado no Aterro Metropolitano de Gramacho – Rio de Janeiro. In: CONGRESSO BRASILEIRO DE ENGENHARIA SANITÁRIA E AMBIENTAL, 2001, João Pessoa, Brasil. Anais do XXVII Congresso Brasileiro de Engenharia Sanitária e Ambiental. João Pessoa, 2001, 9 p., Cd-Rom.
- Ritter, E. & Gatto, R. Relatório Interno (PIBIC/UERJ). 2003.
- Ritter, E. & Campos, J.C. Avaliação da Sorção e Difusão Molecular de Íons Inorgânicos do Chorume e da Argila Orgânica do Aterro Metropolitano de Gramacho (RJ). *Solos e Rochas*, v.29, I.1, p. 77-88, 2006.
- Slattery, J. C. 1999 *Advanced Transport Phenomena*, Cambridge University Press, USA, capítulos 8 e 12.
- Yagi, J.I. Mathematical Modeling of the Flow of Four Fluids in a Packed Bed. *ISIJ International*, v. 33, n. 6, p. 619-639, 1993.
- Lerman, A. *Geochemical process. Water and sediment environments*. New York: John Wiley & Sons, 1979. 481 p.

## MODELING THE MASS TRANSFER OF INORGANIC IONS OF THE LEACHATE IN THE LANDFILL

### **Adriana de Souza Forster Araújo**

Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica-EEIMVR-UFF, Av. dos Trabalhadores 420 – Vila Sta. Cecília – 27255-125 – Volta Redonda – RJ  
[adriana@metal.eeimvr.uff.br](mailto:adriana@metal.eeimvr.uff.br)

### **José Adilson de Castro**

Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica-EEIMVR-UFF, Av. dos Trabalhadores 420 – Vila Sta. Cecília – 27255-125 – Volta Redonda – RJ  
[adilson@metal.eeimvr.uff.br](mailto:adilson@metal.eeimvr.uff.br)

### **Alexandre José da Silva**

Pós-Graduação em Engenharia Metalúrgica-EEIMVR-UFF, Av. dos Trabalhadores 420 – Vila Sta. Cecília – 27255-125 – Volta Redonda – RJ  
[ajs@metal.eeimvr.uff.br](mailto:ajs@metal.eeimvr.uff.br)

### **Elizabeth Ritter**

Programa de Pós Graduação em Engenharia Ambiental, Departamento de Engenharia Sanitária e do Meio Ambiente, UERJ, Rua São Francisco Xavier, 524/5029-F Maracanã - 20550-900 - Rio de Janeiro - RJ  
[ritter@uerj.br](mailto:ritter@uerj.br)

## Abstract

The present work consists of the development and validation of a model to predict the dynamics of inorganic ions, ammonium and potassium, in landfill ground. The model is based on the simultaneous solution of motion and ions transport of the leachate in the porous media. The mass transfer phenomenon is modeled by using rate equations of mass transfer coupled to the transport equations of the contaminants. The set of partial differential equations describing the coupled phenomena are discretized based on the finite volume method. Experimental results of diffusion tests are used to validate the numerical procedure. The rate equations for the mass transfer of the inorganic ions were formulated taking into account the following mechanism: 1) transport of the ions in the leachate from the bulk to the surface of the particle; 2) sorption/desorption of the ions in the particle surface and 3) diffusion of the ions within the liquid in the interior of the soil particle. By using the analogy of series resistance the rate equation of the ions transfer were determined. The results obtained by adjusting the model parameters for the rate transfer showed excellent agreement with the experimental measurements in the laboratory scale, which enables the model to be applied to predict the landfill contamination.

Keywords: *Computational modeling, Sorption kinetic, Leachate.*

## COMPARAÇÃO DE EMISSÕES DE GASES DE EFEITO ESTUFA E GASES ACIDIFICANTES NO USO DE DIFERENTES FONTES ENERGÉTICAS PARA SECAGEM DE GRÃOS

**Breno de Almeida Marques**

PPGERHA/UFPR – Centro politécnico, CP 19011 - Jd. das Américas - Curitiba/PR, 81531-990  
[engbrenomarques@yahoo.com.br](mailto:engbrenomarques@yahoo.com.br)

**Marcelo Riso Errera**

Departamento de Transporte/UFPR – Centro politécnico, CP 19011 - Jd. das Américas - Curitiba/PR, 81531-990  
[errera@ufpr.br](mailto:errera@ufpr.br)

**Resumo.** Com a atual escala de produção de grãos no Brasil (em torno de 115 milhões de toneladas na safra 05/06), surgem algumas preocupações em relação à alta demanda térmica necessária para secagem destes grãos. Por exemplo, a demanda para secagem de soja e milho nas condições normalizadas no Brasil é da ordem de 30.000 TJ. Tal demanda é atendida, em grande parte, por lenha (85 a 90%), gerando impactos ambientais decorrentes da extração, transporte e das emissões atmosféricas da sua queima. No processo de avaliação potencial de redução de impactos ambientais entre diversas soluções energéticas para suprir tal demanda térmica, consideram-se várias tecnologias de conversão de energia e de combustíveis. Para a tecnologia atual de secagem de grãos, combustíveis e tecnologias de queima estão fortemente associadas. Em busca de um visão nacional da questão inciou-se estudando a pós-colheita de soja e milho no Estado do Paraná por ser um dos maiores produtores do Brasil. Assim este trabalho teve como objetivo: comparar quantitativamente, as emissões de gases de efeito estufa e gases acidificantes para secagem de grãos, utilizando gás natural (GN), lenha, biodiesel, óleo diesel e gás liquefeito de petróleo (GLP) em toda a cadeia de fornecimento de cada energético. Para isto, utilizou-se uma metodologia mundialmente reconhecida, Avaliação de Ciclo de Vida (ACV), associando as emissões de CO<sub>2</sub><sup>eq</sup> e SO<sub>2</sub><sup>eq</sup> na produção, transporte e uso final destes energéticos. Visitas técnicas foram realizadas para levantamento de dados do uso destes combustíveis em unidades de secagem. Os principais resultados alcançados neste trabalho, apresentados em tabelas e gráficos comparativos, demonstram que as emissões de CO<sub>2</sub><sup>eq</sup> foram menores para os combustíveis renováveis (considerando o seqüestro de CO<sub>2</sub> na fase de produção), já as emissões de SO<sub>2</sub><sup>eq</sup> foram menores para o GN. Estes resultados confirmam a necessidade de uma análise criteriosa na escolha de combustíveis para geração de energia térmica para o processo de secagem de grãos.

*Palavras chave:* secagem; avaliação de ciclo de vida; impactos ambientais; pós-colheita de grãos; sustentabilidade

### 1. Introdução

Atualmente o Brasil desponta como segundo maior produtor mundial de grãos, ficando atrás apenas dos Estados Unidos. A produção consolidada da safra 04/05 foi de 113 milhões de toneladas e de aproximadamente 115 milhões para a safra 05/06. O Estado do Paraná (escolhido para esta análise) desponta como segundo maior produtor de soja (9,5 milhões de toneladas) e maior produtor de milho do Brasil (8,3 milhões de toneladas) na safra 04/05.

Toda a produção de grãos deve passar por um pré-processamento, para que adquiram a qualidade necessária para exportação, comercialização, extração de óleo, entre outros processos de transformação. As principais etapas desta fase do processamento são: pré-limpeza, secagem, limpeza e armazenamento para realização daqueles processos ao longo do ano.

A questão primordial do pré-processamento é a alta demanda por energia térmica para secagem dos grãos - esta etapa é fundamental para redução da umidade dos grãos oriundos do campo. Somente após a secagem, os grãos podem ser armazenados sem perda de qualidade.

Segundo a EMBRAPA (2004) os grãos devem ser colhidos com umidade de 18 e 24% para soja e milho, respectivamente, e devem ser secos até uma faixa de 13 a 14% de umidade para que possam ser armazenados por longos períodos. Futuramente, quando os grãos são direcionados diretamente para a extração de óleo, a umidade residual deve ser em torno de 10%.

A demanda térmica para secagem de grãos no Brasil é de aproximadamente 30.000 TJ, o que seria suficiente para ferver cerca de 10 trilhões de m<sup>3</sup> de água. O fato agravante é que esta demanda é atendida em quase sua totalidade por queima direta de lenha (90%). O restante é suprido por outros combustíveis como gás natural (GN), gás liquefeito de petróleo (GLP), resíduos de madeiras e outras formas de biomassa residuais complementares (Errera *et al.*, 2002).

No processo de avaliação potencial de redução de impactos ambientais entre diversas soluções energéticas para suprir tal demanda térmica, consideram-se várias tecnologias de conversão de energia e de combustíveis. Para a tecnologia atual de secagem de grãos, combustíveis e as respectivas tecnologias de queima estão fortemente associadas.

Diversos impactos ambientais são observados na etapa de pós-colheita de grãos no Brasil. O total conhecimento dos impactos serão melhores identificados e avaliados através de metodologias como a ACV (Curran, 1996). Numa avaliação preliminar, observou-se que as emissões atmosféricas totais são os principais fatores.

Este artigo tem como principal objetivo: realizar uma comparação entre o uso de diversos combustíveis (GN, GLP, lenha, biodiesel B100, óleo diesel) para secagem de grãos na escala de produção de soja do Estado do Paraná. Avaliando a contribuição de cada um para o aquecimento global e precipitações ácidas. Para se atingir esses resultados seguiram-se os critérios da metodologia de avaliação de ciclo de vida (ACV), considerando a produção, transporte e uso final dos combustíveis supracitados.

Os resultados estão apresentados em gráficos e foram obtidos para um estudo de caso do Estado do Paraná, considerando sua atual escala de produção e mostraram que, se por um lado, as fontes renováveis de energia emitem menos gases de efeito estufa, por outro lado emitem mais gases acidificantes.

Ao estender os resultados para o resto do território brasileiro, deve-se considerar a disponibilidade e prática de exploração de lenha, a logística de distribuição dos combustíveis derivados de petróleo e o biodiesel, e as práticas operacionais e o estado de funcionamento dos secadores.

## 2. Secagem de grãos

O processo de secagem é interessante do ponto de vista operacional e de logística. Enquanto os grãos não devem permanecer por longos períodos com a umidade oriunda do campo, pois são passíveis de fermentação, respiração ou germinação, eles não podem ser manuseados e secos num processo muito rápido, porque podem sofrer injúrias mecânicas e térmicas.

A etapa de secagem deve ser bem planejada, para que as perdas de grãos seja a menor possível. Alguns estudos confirmam que as propriedades nutricionais dos grãos podem ser afetadas entre outros fatores por processos inadequados de secagem (Doretti et al., 2003; Heuert, 2004; Jayas e White, 2003).

Para que a atual produção de grãos seja seca de forma adequada e em tempo hábil, se faz necessário o uso de equipamentos, como por exemplo, secadores.

O secador mais utilizado no Brasil é o chamado tipo cascata (Figura 1). Eles são manufacturados com capacidades de secagem de 10 a 300 ton/h. Estes secadores possuem uma torre central montada pela superposição vertical de caixa de dutos. Uma caixa de duto é formada por dutos em uma fileira horizontal. O nome cascata é definido devido à característica do movimento da massa de grãos por entre os dutos. Cerca de 1/3 da altura da torre é destinado à câmara de resfriamento, cujo objetivo é retirar calor da massa de grãos, deixando-a com temperatura adequada para armazenagem. Muitos secadores aproveitam o ar que sai da seção de resfriamento, misturando-o ao ar de secagem (e.g., Silva, 2005).

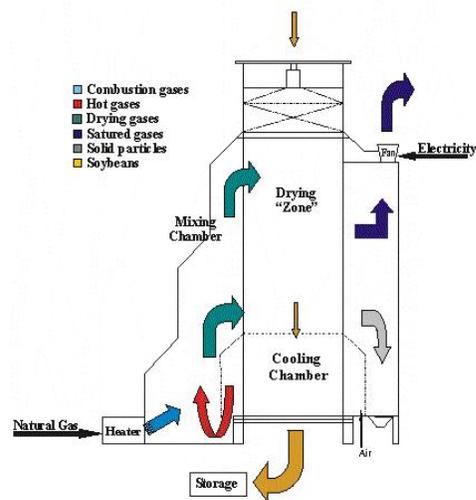


Figura 1. Secador de grãos do tipo Cascata (vista externa e esquemática)

O secador apresentado na Fig. 1 possui o fluxo de soja contínuo, ou seja, o grão entra úmido na parte superior e é descarregado seco e frio na parte inferior. Um dispositivo regula o fluxo de ar de acordo com a quantidade de umidade a ser retirada. A faixa de umidade retirada em cada passagem é da ordem de 5%, portanto, pode haver mais de uma passagem pela coluna do secador.

### 3. Avaliação de Ciclo de Vida

Em meados da década de 60 surgiu uma metodologia chamada Avaliação de ciclo de Vida (ACV), que em virtude da crise energética de 70 e da grande falta de banco de dados para pesquisa, foi pouco utilizada. Só na década de 90 esta metodologia ganhou força, devido entre outros fatores ao aumento das preocupações ambientais, melhoria do desempenho de computadores e aumento da disponibilidade de dados (Curran, 1996).

A ACV é uma metodologia que estuda todas as etapas do ciclo de vida de um produto ou processo, ou seja, permite associar todos os impactos ambientais desde a extração da matéria-prima para manufatura de um produto até o seu descarte para a natureza.

Os principais passos para realização de uma ACV são: definição do objetivo e escopo, análise de inventário (AI), avaliação dos impactos e análise de melhorias.

Segundo Koroneos *et al.* (2005), estes passos significam:

*Definição do Objetivo e Escopo* – definição e descrição do produto, processo ou atividade. Esclarecimento dos objetivos da análise e os aspectos que serão considerados e avaliados, bem como, os que não serão considerados por conta da falta ou dificuldade na obtenção de dados.

*Análise do Inventário* – Identificação e quantificação de todas as entradas e saídas das etapas do ciclo de vida do produto, ou seja, consumo de água e energia, geração e descarte de resíduos, entre outros.

*Avaliação dos Impactos* – nesta fase são considerados todos os efeitos sobre o meio ambiente e o homem, provocados pelos materiais usados e resíduos liberados, previamente identificados na análise de inventário.

*Interpretação* – após a análise dos impactos é selecionado o produto, processo ou serviço mais adequado do ponto de vista ambiental.

As etapas da ACV realizada neste trabalho foram simplificadas para que pudesse ser atingido o objetivo proposto neste trabalho.

### 4. Materias e métodos

Este artigo faz parte de um estudo da sustentabilidade energo-ambiental da agroindústria brasileira. O objetivo deste artigo não foi apresentar uma ampla e completa ACV, e sim o uso desta metodologia para obtenção dos indicadores quantitativos na principal fase do processo de pós-colheita de grãos, que é a secagem.

Algumas simplificações foram realizadas, entre elas, a desconsideração de alguns insumos da etapa de secagem. Assim, a Avaliação de Ciclo de Vida (ACV) deste trabalho enfocou apenas o ciclo de vida dos combustíveis estudados até sua queima nos secadores. Nas avaliações dos impactos ambientais das emissões, observa-se que o efeito estufa da atmosfera e o potencial de chuva ácida são efeitos continentais a globais e que seus efeitos no meio ambiente são generalizados. Na pós-colheita de soja e milho observa-se pouca ou quase nenhuma emissão de particulados, pois na pré-limpeza há o aproveitamento das partículas sólidas para futura revenda e no secador de grãos, a própria massa de grãos realizar o abatimento do material particulado.

#### 4.1. Definição do objetivo e escopo

Esta ACV teve como objetivo quantificar as emissões de gases de efeito estufa (GEE) e gases acidificantes associados à produção, transporte e uso final dos principais combustíveis (GN, GLP, lenha, biodiesel e óleo diesel) utilizados para geração de energia térmica na etapa de secagem de soja e milho no Estado do Paraná.

#### 4.2. Definição da unidade funcional

A unidade funcional utilizada neste trabalho foi uma tonelada de grão (soja ou milho) seca, dentro das condições recomendadas pela EMBRAPA de limpeza, de taxa de resfriamento e de umidade final.

Segundo EMBRAPA (2004) a soja após ser colhida do campo com 18% de umidade deve ser seca até atingir os 13% de umidade, já o milho depois de ser colhido com 22 a 24%, também deve ser seco até a faixa dos 13%.

#### 4.3. Identificação do sistema

A fase de pós-colheita de grãos é composta por várias etapas, dentre elas, pré-limpeza, secagem, limpeza e armazenamento. Este trabalho estuda detalhadamente a secagem de grãos (soja e milho) no Estado do Paraná.

A etapa de secagem demanda vários insumos conforme ilustra a Fig. 2. Os secadores para realizar a secagem artificial dos grãos nesta atual escala de produção brasileira, eletricidade para movimentação dos equipamentos (correias transportadoras, elevadores de caneca e ventiladores). Além disto, o outro importante insumo desta fase é o combustível utilizado para geração de energia térmica.

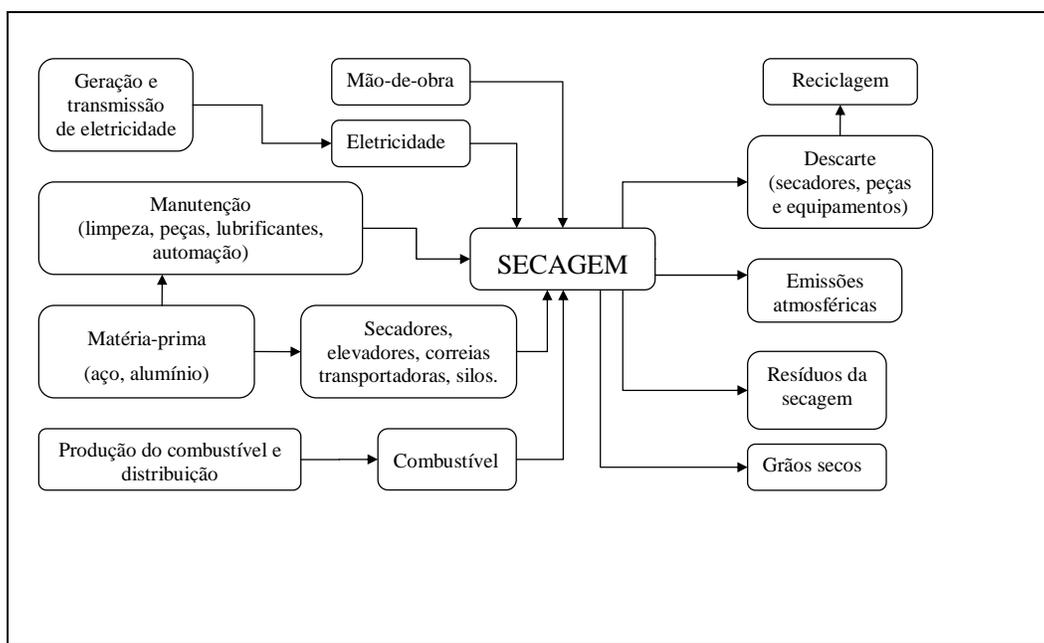


Figura 2. Principais entradas e saídas da etapa de secagem de grãos.

Como mostrado na Fig. 2 são diversas entradas e saídas da etapa de secagem, porém este artigo enfoca o uso de diferentes fontes energéticas e as emissões atmosféricas de GEE e gases acidificantes geradas pela combustão dessas fontes.

#### 4.4. Definição da fronteira e do período

Este trabalho fez uma análise considerando a produção brasileira de soja e milho e considerou um período de análise de 21 anos.

Pelo fato da lenha ser o combustível mais utilizado para secagem de grãos, o período adotado corresponde a 3 ciclos de reflorestamento para se ter uma resposta mais realista em relação à sustentabilidade energo-ambiental. Prazos mais longos levariam a mais incertezas na previsão dos cenários de produção de grãos, logística e tecnologia de conversão de energia.

#### 5. Descarte

O descarte dos equipamentos não foi relevante, uma vez que os secadores e equipamentos utilizados para secagem de grãos têm uma vida útil de cerca de 30 anos e são quase todos constituídos de aço.

No caso de chapas de aço que eventualmente possam ser trocadas, quando da ocasião de manutenção dos secadores, foram direcionadas para reciclagem em 100%.

#### 6. Análise de inventário

Em função da delimitação do escopo desta análise em torno do ciclo de vida dos combustíveis utilizados para suprimento da demanda térmica na etapa de secagem, alguns insumos mostrados na Fig. 2 não foram considerados nesta análise de inventário.

Os dados utilizados neste trabalho foram pesquisados através de artigos científicos, catálogos de fabricantes de secadores de grãos, instituições e órgãos de pesquisa nacionais (e.g., EMBRAPA, CONAB, ANP) e internacionais (e.g., IPCC, UNFCCC), e informações das pesquisas de campo realizadas nos Estados do Mato Grosso do Sul e Paraná. Apesar do Estado do Mato Grosso do Sul (MS) não ter sido avaliado nesta análise os dados coletados neste Estado serviram para compor a base de dados deste artigo, uma vez que, as agroindústrias visitadas no MS têm características e porte semelhantes as do Paraná.

As pesquisas de campo foram realizadas em agroindústrias de diferentes capacidades de pré-processamento de grãos. Nestas visitas foram coletados dados referentes ao perfil energético de cada empresa, com ajuda de uma planilha de coleta de dados (Errera, 2005 e Marques, 2006). As principais informações colhidas foram: atividade principal, matéria-prima utilizada, umidade média de chegada e saída do produto, fonte e consumo de energia térmica para

secagem dos grãos, existência de áreas de reflorestamento, demanda contratada e consumo de energia elétrica, capacidade instalada de secagem e armazenamento.

Foram coletados na literatura brasileira dados de fatores de emissões das fontes energéticas estudadas neste artigo, entretanto em função da falta de dados na literatura nacional, principalmente a respeito de fatores de emissões de GEE e gases acidificantes dessas fontes, se fez necessário o uso de dados internacionais. Uma discussão detalhada é apresentada em Marques, 2006. Para efeito de adequação destes dados internacionais a realidade brasileira, foi realizada uma análise de sensibilidade, considerando variações nos dados em  $\pm 10\%$ .

A Tab. 1 mostra os valores dos fatores de emissões do ciclo de vida de cada combustível estudado neste trabalho.

Tabela 1. Fatores de emissões atmosféricas no ciclo de vida de cada combustível.

Produção do combustível								
GN	0,03 kg CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /m <sup>3</sup>	$0,727 \times 10^{-4}$ kg SO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /m <sup>3</sup>						
Óleo Diesel*	120,0 kg CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /m <sup>3</sup>	$6,490 \times 10^{-1}$ kg SO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /m <sup>3</sup>						
Lenha	1,230 kg CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /kg	nd						
GLP **	0,31 kg CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /m <sup>3</sup>	$0,544 \times 10^{-3}$ kg SO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /m <sup>3</sup>						
Biodiesel B100	1,400 kg CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /kg	$3,297 \times 10^{-2}$ kg SO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /kg						
Transporte do combustível (CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> e SO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> )								
Biodiesel B100	Para o transporte destes combustíveis foram utilizados caminhões tanques e carretas, abastecidos com óleo diesel, então o fator de emissão para							
Óleo Diesel	CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> e SO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> considerado foi o mesmo do uso final do diesel.							
Lenha								
GLP								
GN	0,164 kg CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /m <sup>3</sup>	$0,570 \times 10^{-5}$ kg SO <sub>2</sub> <sup>eq</sup> /m <sup>3</sup>						
Uso final do combustível na secagem (kg/GJ)								
	CO <sub>2</sub>	N <sub>2</sub> O	CH <sub>4</sub>	CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup>	NO <sub>x</sub>	SO <sub>x</sub>	SO <sub>2</sub> <sup>eq</sup>	MP
Biodiesel	50,53	0,01200	0,00400	<b>54,33</b>	0,074	nd	<b>0,052</b>	0,05140
GN	57,87	0,00092	0,00010	<b>56,39</b>	0,040	0,00024	<b>0,028</b>	0,00320
GLP	65,00	0,00094	0,00094	<b>65,31</b>	0,093	Traços	<b>0,066</b>	0,00284
Óleo Diesel	73,50	0,01100	0,00400	<b>76,99</b>	0,068	0,03400	<b>0,082</b>	0,09700
Lenha	83,72	0,00013	0,01800	<b>84,14</b>	0,058	0,00200	<b>0,043</b>	0,26000

nd – não disponível

\* Diesel metropolitano

\*\* 60% propano e 40% butano

B100, 100% biodiesel renovável de soja

FONTE: Marques (2006)

De acordo com a Tab.1, o fator de emissão de CO<sub>2</sub><sup>eq</sup> para a lenha é maior, o que resultaria nas maiores emissões de GEE em comparação aos combustíveis fósseis, porém, ao se considerar o sequestro de carbono na fase de crescimento, as emissões líquidas de CO<sub>2</sub> são menores do que as dos combustíveis fósseis.

Os valores de CO<sub>2</sub><sup>eq</sup> foram calculados a partir Potencial de Aquecimento Global, mundialmente conhecido como: GWP (Global Warming Potential), qual seja: CO<sub>2</sub><sup>eq</sup> = 1CO<sub>2</sub> + 21CH<sub>4</sub> + 310N<sub>2</sub>O (IPCC, 1997).

A Tab. 2 apresenta as quantidades das principais entradas e saídas expressas em unidade funcional da etapa de secagem.

Os valores referentes à lenha e biodiesel na Tab. 2 são as emissões líquidas de CO<sub>2</sub><sup>eq</sup>, considerando o sequestro de carbono na fase de crescimento desses combustíveis.

Tabela 2. Quantificação das principais entradas e saídas da etapa de secagem em unidade funcional.

Etapa	Entradas	Quantidade	Saídas	Quantidade	
				kg CO <sub>2</sub> <sup>eq</sup>	kg SO <sub>2</sub> <sup>eq</sup>
			Resíduos da secagem	nc	nc
	Secadores	01	Descarte (manutenção)	nc	nc
	<b>Combustível</b>	<b>m<sup>3</sup></b>	<b>Emissões atmosféricas</b>		
Secagem	<b>GN</b>	5,586	Emissões atmosféricas	14,1	0,00820
	<b>Lenha<sup>(1)</sup></b>	0,033	Emissões atmosféricas	9,60	0,01492
	<b>Biodiesel<sup>(2)</sup></b>	0,008	Emissões atmosféricas	4,50	0,01515
	<b>GLP</b>	2,390	Emissões atmosféricas	18,2	0,02046
	<b>Óleo diesel</b>	0,006	Emissões atmosféricas	18,9	0,02499
	Eletricidade	0,44 kWh	Emissões atmosféricas	2,06	0,00050

nc – não considerado

(1) – eucalipto

(2) B100,100% biodiesel renovável de soja

FONTE: Marques (2006)

As emissões líquidas das fontes renováveis mostradas na Tab.2 foram obtidas a partir do balanço de carbono com base nas informações da literatura, de acordo com a metodologia adotada em Marques (2006).

### 7. Análise de impactos

Os principais impactos ambientais associados ao uso de combustíveis para secagem de grãos apontados por esta análise são as emissões atmosféricas de gases de efeito estufa (GEE) e gases acidificantes.

As emissões de GEE podem causar danos ao meio ambiente de caráter global através do aumento do efeito estufa - que contribui para o aumento da temperatura média do planeta. Entre os principais impactos do aquecimento global, está o potencial de derretimento das calotas polares, mudanças em ciclos hidrológicos e acentuação de eventos meteorológicos, que ao final pode interferir no equilíbrio dos ecossistemas naturais e antrópicos (e.g., IPCC, 2006).

Já em relação aos gases acidificantes, quando em presença de vapor d'água, reagem dando origem aos ácidos nítrico, nítrico, sulfúrico e sulfuroso, os quais são responsáveis pelas precipitações ácidas. Os principais impactos dessas precipitações são: a acidificação de lagos e a corrosão de prédios e monumentos dos ambientes antrópicos.

### 8. Resultados e discussões

Este artigo apresenta os resultados de uma pesquisa sobre os impactos associados às emissões de GEE e gases acidificantes na fase de pós-colheita da agroindústria brasileira visando avaliar sua sustentabilidade energético-ambiental. Nesta fase são apresentados os resultados obtidos para um estudo de caso aplicado no Estado do Paraná, considerando a atual produção de soja e milho do Estado.

O Estado do Paraná foi escolhido para aplicação deste estudo de caso, por ser o segundo maior produtor de soja e primeiro produtor de milho do Brasil e por ter o maior parque de processamento do Brasil (ABIOVE, 2005).

Os resultados foram submetidos a uma análise de sensibilidade, através da variação de alguns parâmetros coletados em  $\pm 10\%$ . Esta análise serviu para equalizar uma possível diferença entre os dados nacionais e internacionais. Os parâmetros variados foram os fatores de emissões da produção, transporte e uso final e a eficiência do gerador de calor para cada combustível avaliado.

O estudo de caso realizado neste trabalho considerou a safra consolidada 04/05, de acordo com os levantamentos da CONAB.

O Estado do Paraná teve uma produção de 9.541.300 e 8.344.200 milhões de toneladas para soja e milho, respectivamente.

Neste cenário considerou-se que toda a produção de grãos do Estado fosse seca por um dos seguintes combustíveis: GN, GLP, biodiesel, lenha, óleo diesel.

A Fig. 3 apresenta os cálculos das emissões de GEE, considerando o ciclo de vida de cada combustível e o resultado da análise de sensibilidade dos resultados.

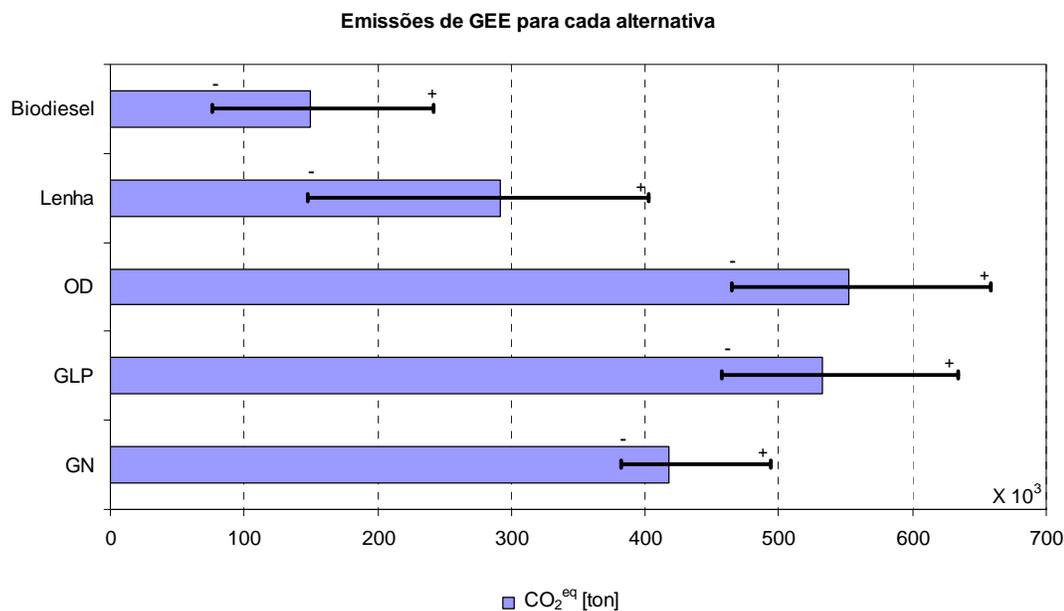


Figura 3. Emissões de GEE das alternativas propostas para o estudo de caso do Estado do Paraná.

O extremo negativo representado pelo “-” na Fig.3 mostra as menores emissões atmosféricas, ou seja, se existisse uma diferença nos dados dos fatores de emissões em -10% e uma diferença nas eficiências dos geradores de calor em +10%. Já o extremo representado pelo “+”, ilustra as maiores emissões atmosféricas, considerando uma diferença de +10% nos fatores de emissões e de -10% nas eficiências dos geradores de calor.

Nota-se na Fig. 3 que as emissões de GEE das fontes renováveis (lenha e biodiesel B100) são menores em comparação aos combustíveis de origem fóssil. Isto se deve ao potencial de seqüestro de carbono da lenha e biodiesel durante a fase de crescimento das culturas.

O potencial de impacto ambiental das emissões atmosféricas pelo seu potencial acidificante é ilustrado na Fig. 4. Os resultados das emissões são computados em SO<sub>2</sub><sup>eq</sup>.

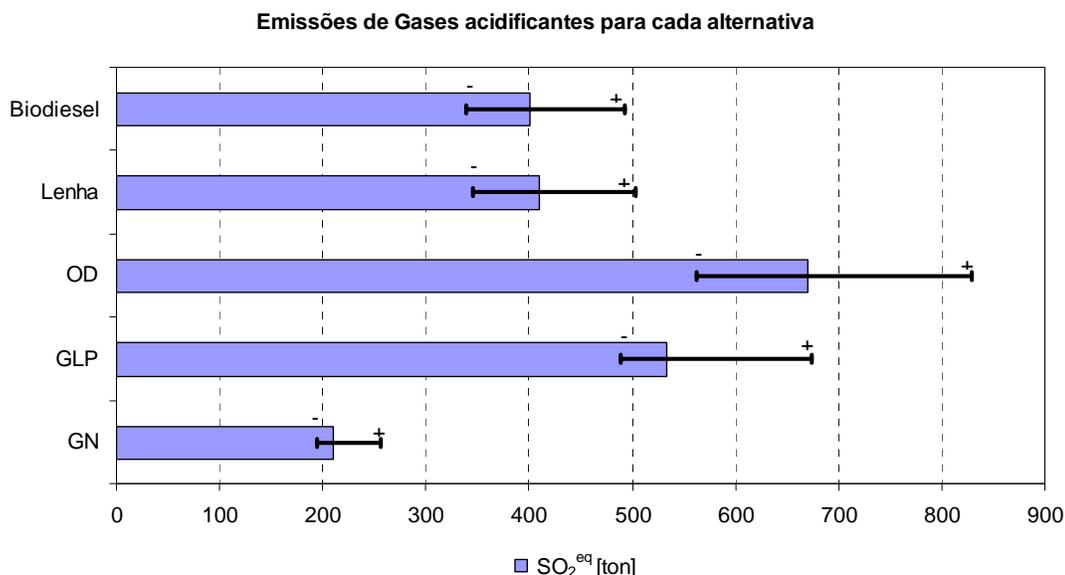


Figura 4. Emissões de gases acidificantes das alternativas propostas para o estudo de caso do Estado do Paraná.

Observa-se na Fig. 4 que as emissões dos gases acidificantes foram menores para o gás natural em comparação as emissões das fontes renováveis de energia.

Ao comparar as Figuras 4 e 5 abre-se a questão da necessidade de uma melhor ponderação sobre o potencial de impacto ambiental dos diversos combustíveis e respectivas tecnologias. Os combustíveis de origem fóssil, indubitavelmente teriam maior efeito de aquecimento global, porém um deles, gás natural apresenta o melhor desempenho quanto a emissões de potencial acidificante. A ponderação dos impactos ainda deve considerar a renovabilidade da lenha e do biodiesel B100.

## 6. Conclusões

Com este trabalho pode-se notar que qualquer combustível utilizado para suprimento da demanda térmica na secagem de grãos na atual escala de produção, apresenta um grande potencial de impactos ambientais associados às emissões atmosféricas (Gases de efeito estufa e acidificantes), originadas na queima destes combustíveis.

Neste sentido, é importante que se realizem ações e estudos com intuito de diminuir a atual demanda térmica, não através da redução da produção de grãos ou pela secagem inadequada, mas sim por medidas que visem o uso racional dos combustíveis, aumentando a eficiência e a racionalidade dos secadores e a redução dos impactos ambientais associados à secagem de grãos.

Assim, espera-se que em um futuro próximo a matriz energética brasileira possa ser mais bem estruturada, de maneira a atender sustentavelmente os diversos ramos da economia, como no caso da agroindústria.

## 7. Agradecimentos

Aos colegas do grupo GEANEX da UFPR pela ajuda na aquisição de dados para este trabalho e discussões pertinentes e a CAPES pelo fomento de bolsa de mestrado ao primeiro autor.

Este estudo também contou com apoio parcial da FINEP-CTPETRO e Petrobras através do projeto Agrogás II (convênio: 01.04.0703.00).

## 8. Referências

- ABIOVE. Capacidade instalada de processamento de oleaginosas, 2005. Disponível em: <<http://www.abiove.com.br>> Acesso em: 05 mar. 2005.
- Curran, M. A. Environmental life cycle assessment. New York: MacGraw Hill. 1996.
- Doretto, L.; Ferrara, D.; Parvoli G.; Rella R.; Sturarro A. Chemical evidence and risks associated with soybean and rapeseed meal fermentation. Chemosphere 52, p. 1259-1262. 2003.
- EMBRAPA. Sistemas de produção5: tecnologia de produção de soja – Paraná 2005. Londrina : Embrapa Soja. 1ª Ed. 2004.
- Errera, M. R.; Stanesco G.; Filipini, F. A. Relatório parcial em tecnologia de processamento de soja e o potencial de integração de cogeração para o gás natural. Curitiba: UFPR, fev/2002. 83 p. (Finep/CTPETRO. Projeto 0660/01). Projeto concluído.
- Errera, M. R. Relatório Técnico sobre o projeto da planta de refino de óleo de soja (LaReGas) e da planta de cogeração Rankine e da Situação da tecnologia e da gestão energética atual do Paraná e do Mato Grosso do Sul, Relatório Parcial do Projeto Agrogás II, ref. 01.04.0703.00, FINEP-CTPETRO. 2005, 82 pp.
- Heuert, K. Grãos da semente ao consumo. Ano III, nº15, jun., 2004. p. 29-31.
- IPCC. Revised 1996 IPCC guidelines for national greenhouse gas inventories: Reference Manual (Vol 3). IPCC National Greenhouse Gas Inventory Programme, 1997. Disponível em: <<http://www.ipccnggip.iges.or.jp/public/gl/invs5.htm>> Acesso em: 13 maio 2006.
- IPCC, Intergovernmental Panel on Climate Change, Full report on Impacts, Adaptation and Vulnerability, ([http://www.grida.no/climate/ipcc\\_tar/wg2/index.htm](http://www.grida.no/climate/ipcc_tar/wg2/index.htm)), 2001 Acesso em: 14 maio 2006.
- Jayas, D. S.; White, N. D. G. Storage and drying of grain in Canada: low cost approaches. Food Control 14, p. 255-261. 2003.
- koroneos, C.; Moussiopoulos, N.; Theodosiou, G. Alternative scenarios analysis concerning different types of fuels used for coverage of the energy requirements of a typical apartment building in Thessaloniki, Greece. Part II: life cycle analysis. Building and Environment 40, p. 1602-1610. 2005.
- Marques, B. de A. Considerações ambientais e exergéticas na fase de pós-colheita de grãos: estudo de caso do estado do Paraná. 2006. Dissertação (Mestrado em Engenharia de Recursos Hídricos e Ambiental) – Departamento de Hidráulica e Saneamento, Universidade Federal do Paraná.
- Silva, L. C. da. Secagem de grãos. Boletim Técnico: AG: 04/05. Departamento de Engenharia Rural, UFES. 2005.

## 9. Direitos autorais

The authors are the only responsible for the printed material included in this paper.

# A COMPARISON OF THE GLOBAL WARMING POTENTIAL AND THE ACIDIFICANT POTENTIAL OF EMISSIONS OF DIFFERENT FUELS FOR GRAIN DRYING

Breno de Almeida Marques  
PPGERHA/UFPR – Centro politécnico, CP 19011 - Jd. das Américas - Curitiba/PR, 81531-990  
engbrenomarques@yahoo.com.br

Marcelo Risso Errera  
UFPR - Centro politécnico, CP 19011 - Jd. das Américas. Curitiba/PR, 81531-990  
errera@ufpr.br

## Abstract

Today's large scale of grains yield in Brazil (near 115 millions of metric tones) raises concerns of the consequent large demand for thermal energy for grain drying in the post-harvest phase. For instance, to dry the crops of corn and soybeans in standardized conditions takes as much as 30,000 TJ. Mostly (90%) of the energy supply are met by wood burning of native wood and by silvicultural projects. There are, consequently, environmental impacts worth accounting for. Previous studies have shown that the atmospheric emissions are the most important due to large volumes of flue gas at the dryers (e.g., Marques, 2006). Thus, we focused the problem of emissions of greenhouse gases and gases associated with acidification of the environment. The different energy solutions for energy conversion and fuel were compared regarding its global warming potential and acidification potential along the entire energy supply chain up to burning of the fuels in the furnaces of the dryers. Wood (eucalyptus), biodiesel B100, natural gas, LPG and diesel oil were the fuels considered and their respective burning technologies. The method chosen to study the environmental

implications of the each one of the fuel was based on Life Cycle Assessment, widely known as LCA. Results were presented in tables and charts. They show lower GWP of the renewable fuels (when carbon sequestration and diesel for transportation were included) than the fossil fuels. On the other hand natural gas presented the lowest acidification potential (AP). These results support the necessity for balanced choosing of energy solutions for the generation of thermal energy in the post-harvest phase of corn and soybeans.

Keywords: grain drying, life cycle assessment, environmental impact, post-harvest of grains, sustainability

# ANÁLISE NUMÉRICA DO ESCOAMENTO E DA TRAJETÓRIA DE PARTÍCULAS ATRAVÉS DE UM IMPACTADOR INERCIAL

**Claudia Marcia Ferreira Costa**

Departamento de Engenharia Mecânica, PUC-Rio, CEP 22453-900, Rio de Janeiro, RJ, Brasil  
[cmarcia@mec.puc-rio.br](mailto:cmarcia@mec.puc-rio.br)

**Aline Guidry**

Departamento de Engenharia Mecânica, PUC-Rio, CEP 22453-900, Rio de Janeiro, RJ, Brasil  
[aline\\_guidry@yahoo.com](mailto:aline_guidry@yahoo.com)

**Marcos Sebastião de Paula Gomes**

Departamento de Engenharia Mecânica, PUC-Rio, CEP 22453-900, Rio de Janeiro, RJ, Brasil  
[mospgomes@mec.puc-rio.br](mailto:mospgomes@mec.puc-rio.br)

*Resumo.* Este trabalho tem como objetivo apresentar os resultados obtidos através de análises numéricas tri-dimensionais de um impactador inercial em cascata projetado para coletar partículas de 10  $\mu\text{m}$  quando operando a uma vazão de 30 lpm. As análises incluem a solução do escoamento e da trajetória de partículas e fornecem resultados valiosos sobre a deposição indesejável de partículas sobre as paredes internas do instrumento, além das curvas de eficiência de coleta.

*Palavras chave:* aerosol, impactador inercial, análise numérica, deposição indesejável, curva de eficiência de coleta

## 1. Introdução

Os estudos relacionados aos instrumentos utilizados para amostrar e classificar as partículas em suspensão no ar estão cada vez mais avançados. Hoje, procura-se não somente desenvolver novas tecnologias, mas também maximizar a eficiência dos instrumentos já disponíveis no mercado.

No caso específico dos impactadores inerciais, o grande desafio é diminuir as perdas por deposição indesejáveis nas paredes, uma vez que a eficiência deste instrumento é diretamente influenciada pela inércia das partículas, que faz com que estas consigam ou não acompanhar a trajetória do fluido no qual estão inseridas.

Neste contexto de aprimoramento do desempenho dos impactadores, as simulações numéricas CFD têm contribuído muito, porque permitem modificações rápidas na geometria do instrumento e viabilizam análises que, se fossem realizadas experimentalmente, seriam muito mais dispendiosas.

O presente trabalho apresenta os resultados obtidos através de simulações numéricas para um estágio de um impactador inercial com  $d_{p50}$  (diâmetro aerodinâmico com eficiência de coleta de 50%) de 10  $\mu\text{m}$ , operando com uma vazão de 30 lpm e pressão atmosférica. Em nosso trabalho buscamos resolver o escoamento e a trajetória de partículas para levantar a curva de eficiência de coleta do instrumento e enfatizamos o estudo das perdas por deposição indesejável nas paredes internas do instrumento.

Avaliamos cada componente da geometria de um coletor de partículas em potencial e, ao final, apresentamos sugestões para modificações na geometria que diminuam as perdas de partículas nas paredes.

## 2. O impactador

O impactador inercial em cascata do presente estudo possui um único estágio, cujo  $d_{p50}$  é 10  $\mu\text{m}$ , quando operando a uma vazão de 30 lpm e pressão atmosférica. O projeto deste instrumento foi realizado de acordo com Costa (2005).

O instrumento é composto por 3 partes: entrada, estágio e saída. O estágio é composto por um bloco externo, uma placa de orifícios e uma placa de impactação posicionada abaixo da outra placa. A figura mostra o projeto do instrumento.

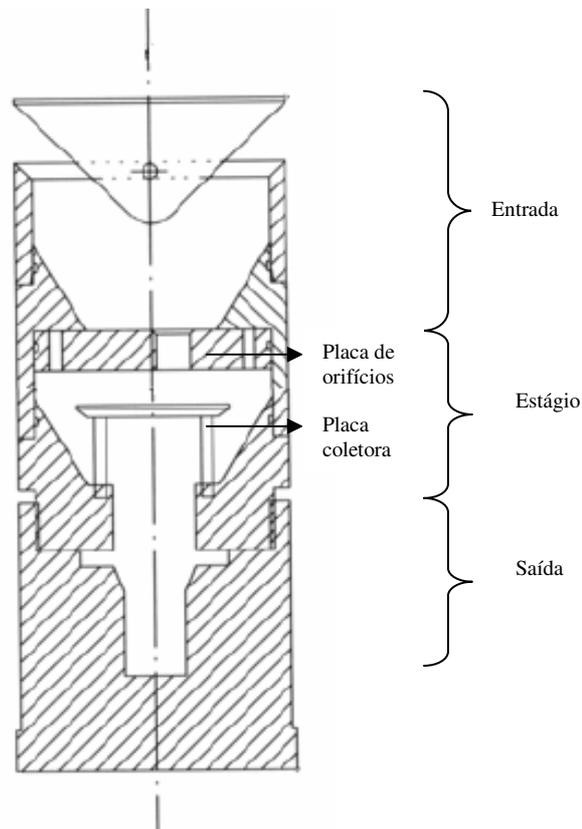


Figura 1 Desenho esquemático do impactador

### 3. As equações

Conforme apresentado em Costa (2005), a solução do escoamento num impactador inercial envolve a solução das seguintes equações:

- I – Continuidade (ou conservação de massa)
- II – Conservação da quantidade de movimento linear (3 equações, uma para cada direção principal)
- III – Conservação de energia (não utilizada no desenvolvimento deste trabalho, pois foi considerado um sistema isotérmico).

Deste sistema derivam as equações de Navier-Stokes, que representam a conservação de quantidade de movimento linear considerando hipóteses simplificadoras, tais como fluido contínuo, tensor das tensões simétrico; fluido isotrópico e newtoniano, não deslizamento na parede (velocidade nula). Considerando tratar-se de um escoamento turbulento escolhemos o modelo k- $\epsilon$ , para completar o sistema e tornar possível sua solução.

Para a solução da trajetória de partículas, por outro lado, realizamos a integração do balanço de forças na partícula para descrever sua trajetória.

### 4. A simulação numérica

Para simplificar a simulação numérica foram implementadas algumas modificações no desenho do projeto original: na geometria computacional os blocos de entrada e saída foram substituídas por cilindros de comprimento longo, para que os efeitos de entrada e saída pudessem ser desprezados, e as hastes que sustentam a placa foram desconsideradas.

A solução CFD foi obtida através do FLUENT (versão 6.0.12) que utiliza técnica de volumes de controle para integração das equações de conservação e a malha foi desenhada no pré-gerador Gambit. A malha é composta de elementos hexagonais e contém cerca de 350.000 volumes de controle. A figura a seguir mostra a distribuição de volumes de controle na superfície externa da geometria (Fig. 2).

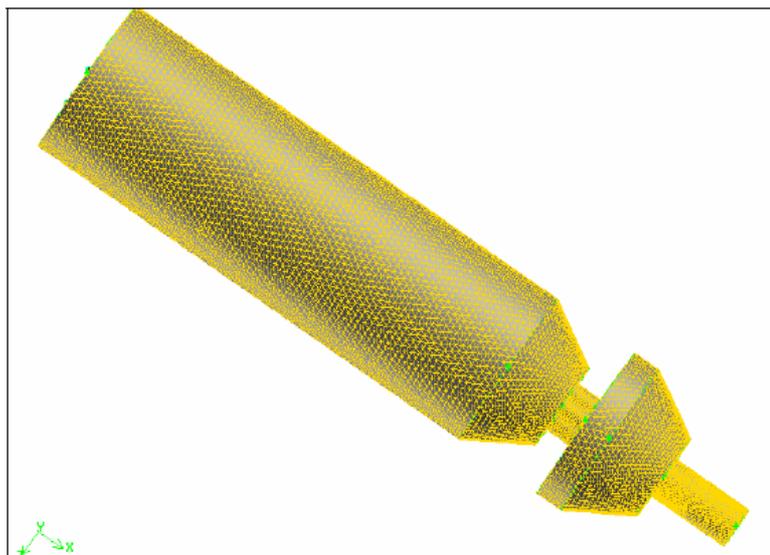


Figura 2. Distribuição da malha na superfície externa do instrumento.

A solução do escoamento e da trajetória de partículas de impactadores envolve a solução das equações de Navier-Stokes e a integração dos balanços de forças nas partículas. O modelo de turbulência escolhido para a solução do sistema foi o modelo k-ε e foi utilizada a técnica de solução desacoplada, ou seja, primeiramente resolvemos o escoamento e depois aproveitamos seus resultados para resolver a trajetória de partículas, uma vez que estas são muito pequenas e aparecem em concentração extremamente reduzida, não afetando portanto o escoamento.

#### 4.1 Resultados para o escoamento

Na solução do escoamento utilizamos como condições de entrada para o problema a pressão atmosférica e a velocidade na entrada, calculada a partir da vazão previamente definida (30 lpm). O sistema de equações foi resolvido iterativamente em todos os volumes de controle do domínio.

Foi aplicado um critério de convergência de  $10^{-6}$  para o resíduo relativo das equações de conservação (em relação ao valor do resíduo na primeira iteração da solução) e foram necessárias 5.000 iterações para obter a solução.

Os resultados obtidos para o escoamento serão apresentados através das figuras a seguir (Fig. 3 até Fig. 6), que representam os vetores velocidade e contornos de velocidade e de pressão no interior do instrumento.

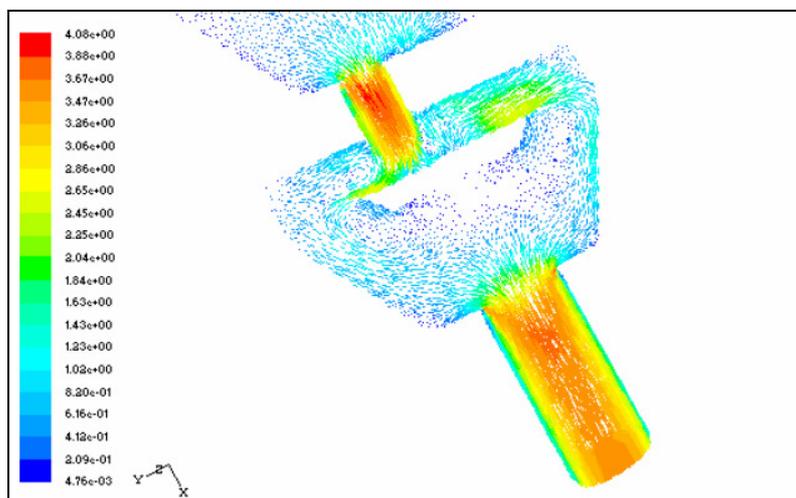


Figura 3. Vetores velocidade(m/s) – plano z

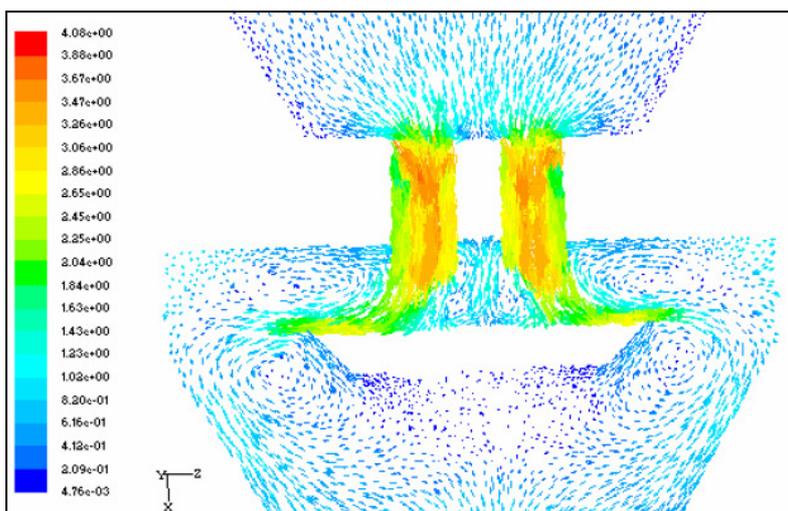


Figura 4. Vetores velocidade (m/s)– plano y

A análise das imagens acima mostra que a trajetória executada pelo escoamento na tentativa de contornar a placa é afetada por intensas zonas de recirculação. Estas zonas também ocorrem entre os orifícios e podem afetar o desempenho do instrumento, pois modificam a trajetória das partículas, que podem ficar presas nelas ou serem lançadas contra outras paredes.

Analisando o contorno de velocidade apresentado a seguir, verificamos, o desenvolvimento do escoamento bem antes deste encontrar a primeira placa de orifícios, o que significa que nossa solução não foi afetada pela condição de entrada adotada.

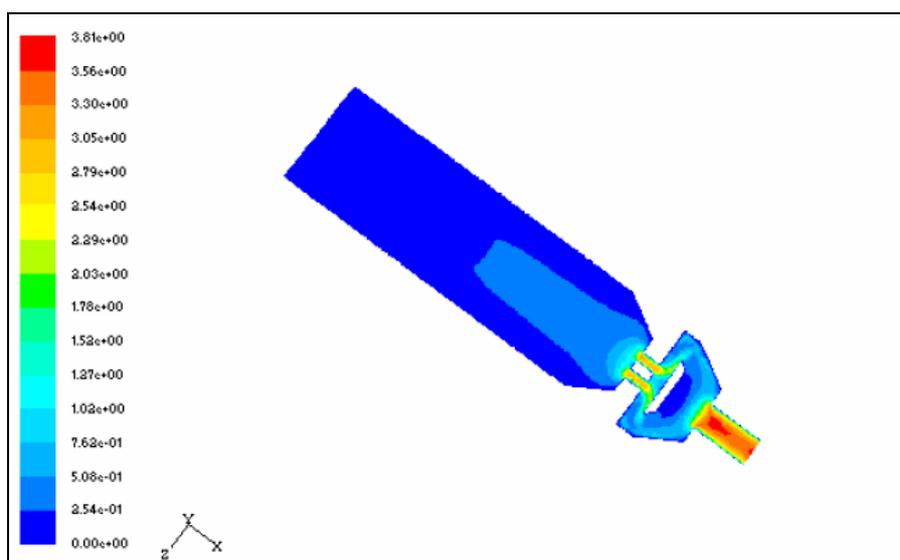


Figura 5. Contorno de velocidade. (m/s)

Finalizando a análise de resultados do escoamento do impactador, temos o contorno de pressão que indica uma mínima queda ao longo do instrumento, conforme já era esperado, no valor médio de 24 Pa entre entrada e saída para este estágio. Além disso, observamos que a queda de pressão nos orifícios é não uniforme, em função das características de convergência do escoamento.

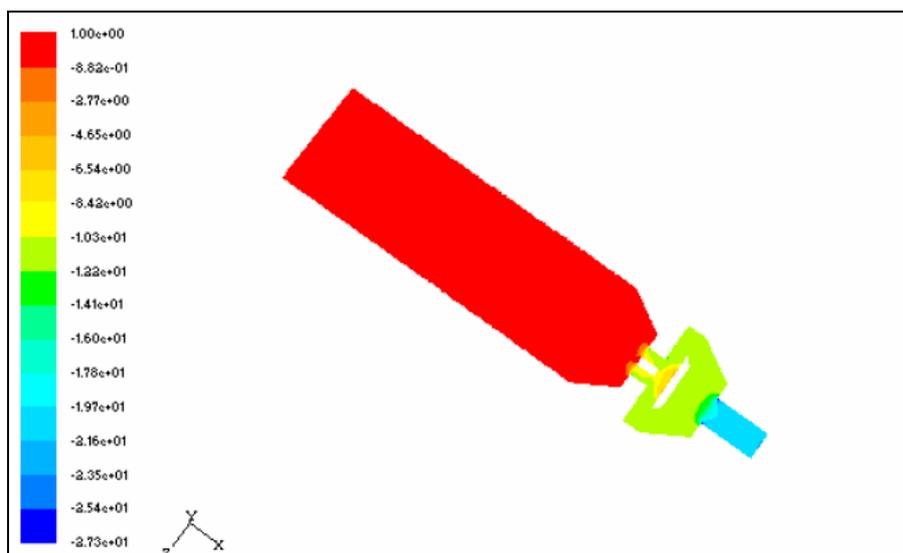


Figura 6. Contorno de pressão (Pa)

#### 4.2 Resultados para a trajetória de partículas

Conforme já foi dito, a trajetória de partículas foi calculada a partir dos resultados para o escoamento (pós-processamento). Para isso criamos 21 injeções de partículas a serem lançadas a partir da entrada do instrumento. Estas injeções levam em conta o diâmetro da partícula, sua densidade ( $1000 \text{ kg/m}^3$ ), as 100 posições de lançamento e o coeficiente de Cunningham.

Conforme mostra a tabela a seguir Tab. (1), o coeficiente de Cunningham é mais importante para partículas de menor diâmetro. Conforme McMurry (1999), este coeficiente é importante quando o diâmetro da partícula é da mesma ordem de grandeza do caminho livre médio entre as moléculas e corrige a força de arraste agindo sobre as partículas.

É importante destacar que nas simulação da trajetória de partículas os efeitos da gravidade, efeitos de salto e outros efeitos que afetam negativamente o desempenho do instrumento foram desprezados. Além disso, todas as superfícies foram tratadas com uma situação ideal: sempre que a partícula tocar uma superfície, ela adere a esta (coeficiente de restituição zero).

Tabela 1. Características das injeções.

Injeção	Diâmetro ( $\mu\text{m}$ )	Cunningham
A	0,10	2,91
E	0,50	1,33
J	1,00	1,16
O	2,00	1,08
P	2,50	1,07
Q	3,00	1,05
R	4,00	1,04
S	5,00	1,03
T	6,00	1,03
U	7,00	1,02
V	8,00	1,02
W	9,00	1,02
Y	10,00	1,02
X	11,00	1,02
Z	12,00	1,01
AA	13,00	1,01
AB	14,00	1,01
AC	15,00	1,01
AD	16,00	1,01
AE	18,00	1,01
AF	20,00	1,01

A análise da trajetória das partículas comprovou a preocupação com a existência das zonas de recirculação. A figura 7 a seguir mostra um exemplo de trajetória de uma partícula presa numa dessas zonas. Observe que a partícula executa um movimento circular e pode vir a se alojar na parede da placa de orifícios.

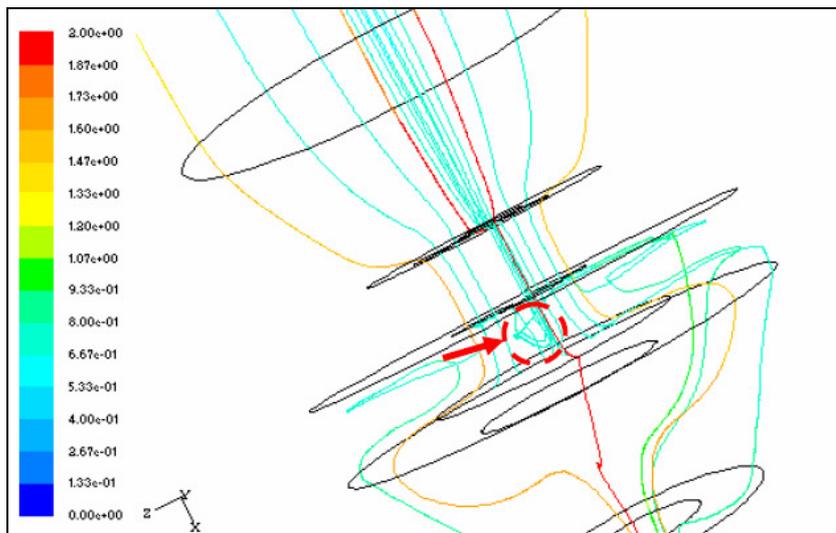


Figura 7. Exemplo da partícula presa numa zona de recirculação. Cada linha representa uma linha de trajetória em função do tempo de residência (s).

Dessa forma, para melhor avaliar a trajetória das partículas, isolamos separadamente cada superfície interna do instrumento e avaliamos o seu poder de reter partículas quando as diferentes condições de injeção eram ativadas. Para facilitar a visualização dessas diferentes superfícies, indicamo-las na figura a seguir (Fig. 8) através de um código de cores.

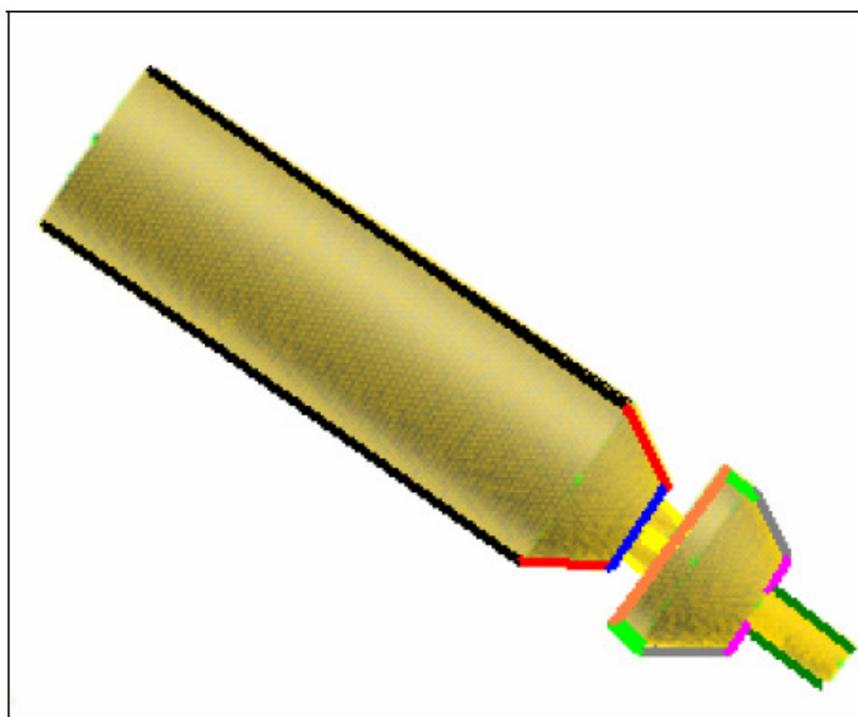


Figura 8. Indicação das paredes do instrumento. Cada cor representa uma parede, por exemplo, amarelo representa as paredes dos orifícios.

Onde, a parede vertical de entrada está em cor negra, o vermelho indica a parede inclinada acima dos orifícios, as cores azul e laranja indicam as paredes horizontais acima e abaixo dos orifícios respectivamente, o amarelo refere-se às paredes dos orifícios propriamente ditos, verde claro indica a parede vertical abaixo dos orifícios, as cores cinza e rosa referem-se às paredes inclinada e horizontal após os orifícios respectivamente e a cor verde escuro representa a parede vertical de saída.

Analisando as superfícies individualmente, observamos que há maior deposição indesejável de partículas nas mais próximas às zonas de recirculação, conforme já era esperado, ou seja, nas paredes superfícies vertical e horizontal logo abaixo dos orifícios e no trecho inclinado em torno da placa de impactação.

É importante destacar que os percentuais de partículas retidas nessas superfícies foi considerado razoável e não chega a afetar o desempenho do instrumento, conforme comprova a curva de eficiência de coleta sobre a placa mostrada na figura a seguir (Fig. 9). A curva de eficiência de coleta do instrumento atendeu às expectativas apresentando um formato S e um diâmetro  $d_{p50}$  equivalente a 9,4  $\mu\text{m}$ .

Fora a questão da deposição indesejável, as zonas de recirculação também causam outro problema, pois funcionam como “prisões” de partículas e, com isso, há partículas que nunca abandonam o domínio durante o cálculo computacional. Estas partículas são indicadas no gráfico da Fig. 9 como tendo trajetórias incompletas, pois não saem e nem se depositam durante o tempo total estabelecido para a integração da equação de trajetória.

No entanto, é importante destacar que é preciso tomar medidas para eliminar, ou pelo menos diminuir estas zonas de recirculação, uma vez que é razoável imaginar que para diâmetros menores haverá menor área para escoamento de fluido dentro do instrumento e, com isso, a probabilidade de deposição indesejável sobre as paredes indicadas seria ainda maior.

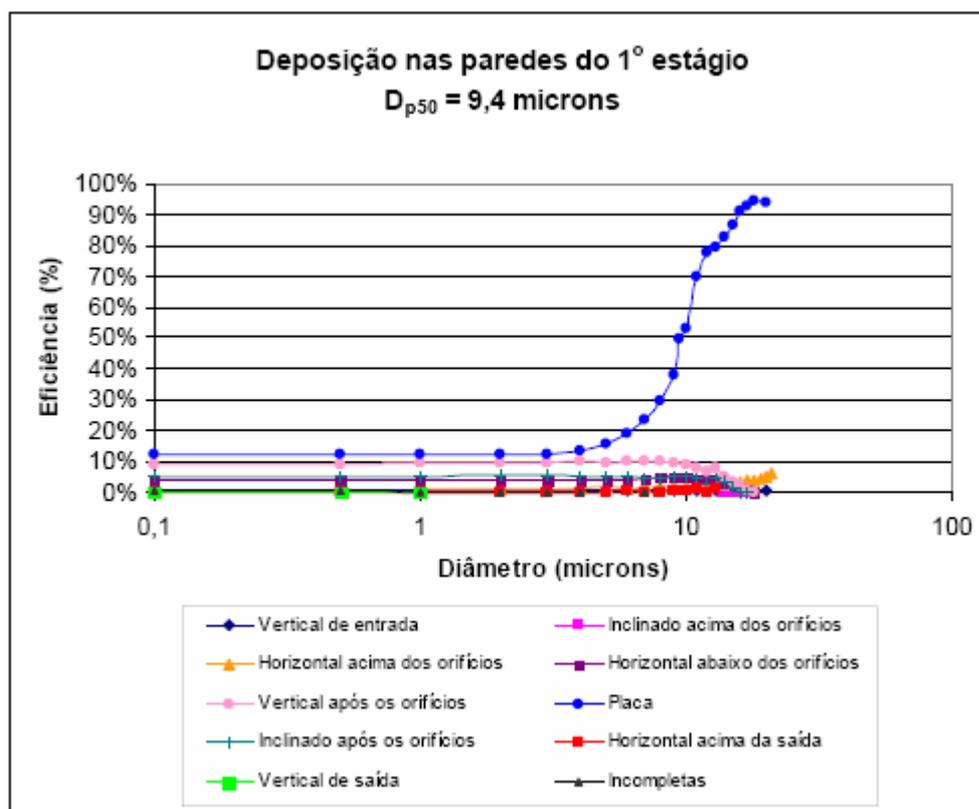


Figura 9. Curva de deposição de partículas nas superfícies

Algumas possíveis soluções foram propostas para resolver o problema da deposição. Uma delas consiste em aumentar a região para a circulação de fluido aumentando o diâmetro externo do instrumento, o que reduziria a velocidade do escoamento. Outra opção que está sendo investigada é fazer pequenos furos na placa coletora, fornecendo uma rota de fuga para o escoamento, evitando desta forma as recirculações sobre a placa de coleta. Esta solução, entretanto, por não se ter ainda um resultado definitivo sobre seus efeitos em relação à eficiência de coleta e quanto à deposição indesejável, será apresentada em um trabalho futuro.

Enquanto as simulações fornecem resultados numéricos para o desempenho do instrumento, antes de levá-lo a um campo de amostragem para iniciar a coleta, é preciso levá-lo a um laboratório para calibração. Conforme Costa (2005), no laboratório, utiliza-se um gerador de partículas conhecidas e um amostrador capaz de determinar a concentração de partículas dentro de uma câmara limpa antes e após o instrumento ser utilizado. Com isso, pode-se levantar a curva de eficiência real do impactador que determina o  $d_{p50}$  do instrumento sob as condições controladas impostas e, também, comprovar os resultados obtidos numericamente.

## 5. Conclusão

Neste trabalho avaliamos numericamente a coleta de partículas em um estágio de um impactador inercial em cascata. Verificamos que o instrumento apresenta bons resultados e a diferença entre o valor esperado e o valor encontrado não ultrapassa 10%.

Os resultados numéricos foram considerados muito bons. Além disso, a simulação nos forneceu importantes informações acerca das características do escoamento e da trajetória de partícula, especialmente sobre a formação de zonas de recirculação que poderiam afetar os resultados.

Embora os resultados tenham sido bastante satisfatórios, uma vez que encontramos um diâmetro de coleta  $d_{p50}$  de 9,4  $\mu\text{m}$ , é recomendável propor e implementar modificações no projeto do instrumento a fim de reduzir tais problemas, pois desta forma esperamos encontrar resultados cada vez mais refinados.

## 6. Referências

- Costa C.M.F., 2005, "Projeto, simulação numérica e teste experimental de um impactador inercial em cascata para amostragem de aerossóis atmosféricos". Rio de Janeiro: Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro.
- Costa C.M.F., Ledo T.G., Barbosa R.F., Gomes, M.S.P., 2004, "Desenvolvimento de um impactador em cascata de oito estágios para amostragem de aerossóis", ENCIT.
- Costa C.M.F., Gomes M.S.P., 2006, "Projeto, simulação numérica e teste experimental de um impactador inercial em cascata para amostragem de aerossóis atmosféricos. CONEM.
- Costa C.M.F., Gomes M.S.P., 2006, "Design, numerical simulation and experimental evaluation of an inertial impactor used to collect atmospheric aerosols", IAC, Minnesota, USA.
- Gomes, M.S.P., Cardoso, R., 2001. "Flow and particle trajectories simulation within an inertial impactor sampler. COBEM, Rio de Janeiro.
- Fang C.P., Marple V.A. e Rubow K.L., 1991, "Influence of cross-flow on particle collection characteristics of multi-nozzle impactors", Journal of Aerosol Science, Vol. 22, pp. 403-415.
- Hinds W.C., 1995, "Aerosol Technology – Properties, Behavior and Measurement of Airborne Particles", John Wiley and Sons, New York.
- Huang C.H., Tsai, C.J., 2001, "Influence of impaction plate diameter and particle density on the collection efficiency of round nozzle inertial impactor." Aerosol Science and Technology. Vol. 36, pages 714-720.
- Kwon S.B., Lim K.S., Lee K.W., 2002, "Effect of the jet configuration on the performance of multi-nozzle impactors. Journal of Aerosol Science. Vol. 33, pages 859-869.
- McMurry P.H., 1999, "A review of atmospheric aerosol measurements". Atmospheric Environment. Vol. 34, pages 1959-1999.

## NUMERICAL ANALYSIS OF FLOW AND PARTICLE TRAJECTORIES WITHIN AN INERTIAL IMPACTOR

Claudia Marcia Ferreira Costa

Departamento de Engenharia Mecânica, PUC-Rio, CEP 22453-900, Rio de Janeiro, RJ, Brasil  
cmarcia@mec.puc-rio.br

Aline Mendonça Guidry

Departamento de Engenharia Mecânica, PUC-Rio, CEP 22453-900, Rio de Janeiro, RJ, Brasil  
aline\_guidry@yahoo.com

Marcos Sebastião de Paula Gomes

Departamento de Engenharia Mecânica, PUC-Rio, CEP 22453-900, Rio de Janeiro, RJ, Brasil  
mspgomes@mec.puc-rio.br

### Abstract

Inertial impactors have been widely used in atmospheric studies. Nowadays, the big challenge is to improve the instrument performance by reducing wall losses, creating trapping surfaces with special characteristics and so on.

The main objective of this paper is to present the numerical results describing the flow of air and the particle trajectories obtained for an inertial impactor designed to collect  $\text{PM}_{10}$  particles when operating with 30 lpm and atmospheric pressure.

Our analysis includes velocity and pressure data and a study of wall losses within the instrument. Besides the collection efficiency curve, we identified recirculation regions and their impact on the instrument performance and presented a comparative plot indicating the efficiency for collecting particles in each internal surface of the instrument.

At the end, some modifications on the impactor design were proposed in order to reduce those problems.

Keywords: aerosol, inertial impactor, wall losses, efficiency curve, numerical analysis

## PROJETO E FABRICAÇÃO DE UM SECADOR DE DEJETOS SUÍNOS POR ATOMIZAÇÃO REVERSA

**João Carlos Linhares**

Universidade do Oeste de Santa Catarina, Área de Ciências Exatas e da Terra – Rua José Firmo Bernardi, 1591 – Flor da Serra – CEP: 89600-000 – Joaçaba – SC – Brasil

[joao.linhares@unoesc.edu.br](mailto:joao.linhares@unoesc.edu.br)

**Antonio Carlos Ferreira**

Universidade do Oeste de Santa Catarina, Área de Ciências Exatas e da Terra – Rua José Firmo Bernardi, 1591 – Flor da Serra – CEP: 89600-000 – Joaçaba – SC – Brasil

[antonio.ferreira@unoesc.edu.br](mailto:antonio.ferreira@unoesc.edu.br)

**Resumo.** O dejetos suíno é um problema potencial em Santa Catarina. Alguns processos para busca de soluções estão em curso. Por iniciativa da Empresa Brasileira de Pesquisa Agropecuária e da Universidade do Oeste de Santa Catarina, foi proposto o projeto e a construção de um protótipo para secagem de dejetos suínos para uso pequenas e médias produtoras de suínos. A idéia é separar as partes líquida e sólida dos dejetos usando fontes renováveis de energia e tecnologias de baixo risco ambiental. O protótipo possui três principais sistemas: sistema de insuflamento de ar, sistema de atomização dos dejetos sob alta pressão e sistema de exaustão para a atmosfera. No funcionamento, uma névoa obtida pela atomização em alta pressão dos dejetos suínos é colocada em contato com uma corrente de ar, que absorve a parte líquida dos dejetos permitindo sua secagem. As vazões de ar de insuflamento e exaustão são balanceadas e permitem a retirada da parte sólida dos dejetos na região inferior da câmara, podendo ser utilizado diretamente na composição de adubos e alimentos animal, dada sua natureza fertilizante e protéica. O secador por atomização reversa encontra-se em fase de otimização dos parâmetros de entrada do processo pneumático e de fluxo de massa, devendo ser testado nas propriedades agrícolas ainda em 2006.

*Palavras chave:* Secagem de dejetos suínos, projeto de máquinas, balanço energético de massa.

### 1. Introdução

O Brasil, por ser um país que se destaca por sua potência agrícola, tem inúmeros problemas, que até a pouco tempo não eram discutidos, como o acúmulo de dejetos de animais criados em granjas para o abate. Nas regiões oeste e meio oeste de Santa Catarina este cenário é ainda mais marcante. A economia da região depende diretamente da criação, principalmente, de frangos e suínos para “alimentar” as agroindústrias. No entanto, os reflexos negativos que este tipo de atividade traz para o meio ambiente começam a vir à tona.

O Estado de Santa Catarina é o maior produtor de alimentos derivados de suínos do país. A produção de suínos vem crescendo a cada ano de maneira espantosa e acentuada e os produtores não têm uma alternativa otimizada para o reaproveitamento dos dejetos. Visto a importância na qual os dejetos de suínos estão inseridos, tanto em um contexto ambiental como social, faz-se necessária a adoção de medidas para evitar o agravamento da situação. O que se espera é que alternativas surjam mediante o estudo e aplicação de conceitos tecnológicos relacionando-os com a busca por soluções. Os dejetos suínos são compostos que contêm uma grande diversidade de componentes químicos, muitos deles bastante prejudiciais à saúde humana. Por isso, o adequado direcionamento após a produção dos dejetos é assunto que merece muita atenção, principalmente dos órgãos governamentais, na busca de soluções que dêem um encaminhamento correto aos mesmos sem poluir os mananciais disponíveis à agropecuária, nem os rios que servem e abastecem as propriedades diversas que se alojam ao longo do Estado.

Esta pesquisa tem por metas: (a) estudar o processo de secagem de dejetos suínos, (b) desenvolver um primeiro conceito de secagem que atenda às restrições previamente levantadas e, com base nas necessidades dos usuários, (c) construir o protótipo de um equipamento destinado à secagem dos dejetos suínos.

O princípio de funcionamento é baseado na atomização dos dejetos suínos numa corrente de ar que absorve a umidade dos dejetos, com a parte orgânica sendo separada por gravidade para posterior aproveitamento. O projeto e desenvolvimento do secador de dejetos suínos está sendo realizado em base sistemática com o uso de uma metodologia que prescreve 4 (quatro) fases distintas. Assim que efetuada a construção do protótipo, o secador será testado ostensivamente e avaliado nas propriedades de pequenos e médios produtores propiciando, dessa forma, a evolução para uma versão definitiva.

### 2. Revisão Teórica

A secagem é um processo termodinâmico por meio do qual ocorre a redução do teor de umidade de uma dada substância ou matéria. O teor de umidade correspondente é a relação percentual entre o peso da massa de água e o peso

da massa total de uma dada quantidade de substâncias. Assim, numa carga com 1000 kg de matéria, com teor de umidade igual a 13 %, corresponde afirmar que se tem 130 kg de água e 870 kg de matéria seca.

Em processos de secagem de substâncias sob condições atmosféricas, o ar seco e quente é utilizado como meio de transporte de calor e massa. O ar quente em contato com as substâncias promove uma troca de calor e a absorção da água contida nestas fazendo com que este ar se torne úmido e as substâncias se tornem desidratadas. Ressalta-se que os transportes de calor e massa ocorrem simultaneamente.

Portanto, o ar de secagem deve possuir uma quantidade de calor a ceder para as substâncias e possuir condições de reter e transladar uma quantidade de massa de água na forma de vapor. Estas características definem o potencial de secagem do ar, que, teoricamente, terá o seu valor acrescido quanto maior for a temperatura e menor for a umidade relativa. No Brasil, a fonte de energia mais utilizada na secagem de produtos em unidades armazenadoras tem sido a lenha e atualmente, dado os tipos de secadores utilizados, tem-se apresentado economicamente como a melhor alternativa. Porém, recentemente, dado a política ambiental e a melhoria da performance termodinâmica dos secadores, o gás GLP tem sido utilizado em algumas regiões e também pode ser utilizado o biogás gerado em biogestores.

## 2.1 Modalidades de secagem

A secagem de produtos agrícolas pode ser realizada de duas formas: natural e artificial. Define-se por secagem natural os métodos em que pela incidência da radiação solar tem-se a redução do teor de umidade dos produtos. No Brasil esta modalidade tem sido utilizada na secagem de: (a) milho e feijão por pequenos agricultores, (b) café em terreiros e (c) cacau em barcaças.

A grande desvantagem dessa modalidade está na dependência das condições climáticas, fato que demanda, por ocasião do período de secagem, a ocorrência de: (a) baixos índices de precipitação pluviométrica, (b) baixa umidade relativa e (c) baixos índices de nebulosidade. No entanto, caso as condições climáticas sejam favoráveis, essa modalidade é preferida por propiciar menores danos mecânicos às substâncias e utilizar como fonte de calor a energia solar. A secagem artificial, esta consiste no emprego de artifícios para aumentar a velocidade do processo de secagem, sendo estes disponibilizados em equipamentos denominados secadores. No nível comercial, os secadores podem apresentar sob diferentes configurações, contendo por acessórios: (a) sistema de aquecimento do ar - fornalhas a gás ou a lenha, (b) sistema de movimentação do ar - ventiladores e (c) sistema de movimentação das substâncias - elevadores de caçambas, transportadores helicoidais e fitas transportadoras. Nesta modalidade, a secagem pode ser executada em baixa temperatura e, ou, em altas temperaturas.

No processo de secagem para o secador proposto, a secagem dos dejetos é feita artificialmente. Porém, ao invés do ar passar sobre os dejetos a serem secados, os dejetos serão atomizados contra um fluxo de ar ambiente insuflado no interior de uma câmara. Isso implica na absorção de água dos dejetos por esta corrente de ar, ocasionando sua secagem.

## 2.2 A psicrometria no processo de secagem

Para calcular a quantidade de água que o ar pode absorver até saturar, utiliza-se os fundamentos da psicrometria. A psicrometria é o estudo das misturas de ar e vapor d'água. Ela se encontra sempre presente na elaboração de projetos e na execução e manutenção de instalações de conforto ambiental e de ar condicionado, principalmente aquele ar condicionado envolvendo umidificação ou desumidificação. Em ar condicionado, o ar não é seco, mas sim uma mistura de ar seco e vapor d'água, resultando daí a importância da psicrometria.

Nos processos de umidificação, o estudo e cálculo da máxima quantidade de água que o ar pode absorver sem que haja a precipitação do vapor d'água presente na mistura de ar e vapor d'água é de particular interesse. A quantidade máxima de água que o ar pode conter sob uma determinada temperatura equivale à quantidade de vapor d'água com pressão parcial igual à pressão de saturação da água nesta temperatura. Nessas condições, o ar é dito saturado. Se a quantidade é menor, o ar é dito não saturado e o vapor d'água está no estado superaquecido.

Várias propriedades são consideradas para a mistura ar-vapor d'água: Pressão total da mistura,  $P$ : é a pressão que se encontra a mistura e é normalmente igual a pressão atmosférica. Pressão de saturação da água,  $P_{vs}$ : é a pressão de vaporização da água para uma determinada temperatura de bulbo seco. Pressão parcial de vapor,  $P_v$ : é a pressão parcial exercida pelo vapor d'água presente na mistura. Temperatura de bulbo seco,  $T_{bs}$ : é a temperatura indicada por um termômetro comum. Temperatura de bulbo úmido,  $T_{bu}$ : é a temperatura indicada por um termômetro cujo bulbo se encontra envolto por um pavio molhado. Umidade absoluta,  $U_a$ : é a massa de vapor d'água, em kg, contida no ar por cada kg de ar seco. Umidade relativa,  $UR$ : é a razão entre  $P_v$  e  $P_{vs}$ .

Uma umidade relativa de 100 % indica que o ar está saturado. Assim, qualquer quantidade adicional de água injetada nele condensará, uma vez que não é possível uma quantidade de vapor maior do que a quantidade das condições de saturação. Existem fórmulas teóricas e empíricas relacionando tais parâmetros e, neste trabalho, utiliza-se as fórmulas já consagradas de Wilhelm (1976) e empregadas por Jesus e Silva (2002) na elaboração de um programa para estimativa de propriedades psicrométricas.

A pressão de saturação da água,  $P_{vs}$ , para temperaturas de bulbo seco entre 273,16 K e 393,16 K, é calculada por:

$$\ln(P_{vs}) = -7511,52/T_{bs} + 89,63121 + 0,02399897 \cdot T_{bs} - 1,1654551 \cdot 10^{-5} \cdot T_{bs}^2 - 1,2810336 \cdot 10^{-8} \cdot T_{bs}^3 + 2,0998405 \cdot 10^{-11} \cdot T_{bs}^4 - 12,150799 \cdot \ln(T_{bs}) \quad (1)$$

Nessa equação, se  $T_{bs}$  é substituída por  $T_{bu}$ , obtém-se a pressão de saturação na temperatura de bulbo úmido  $P_{vu}$ . A umidade absoluta da mistura ar vapor d'água é obtida pelas equações:

$$U_a = 0,62198[P_v/(P - P_v)] \quad (2)$$

ou

$$U_a = (2501 - 2,411.T_{bu})U_{au} - 1,006(T_{bs} - T_{bu})/(2501 + 1,775.T_{bs} - 4,186.T_{bu}) \quad (3)$$

com  $T_{bs}$  e  $T_{bu}$  em °C e

$$U_{au} = 0,62198[P_{vu}/(P - P_{vu})] \quad (4)$$

A umidade absoluta do ar saturado é calculada como:

$$U_{as} = 0,62198[P_{vs}/(P - P_{vs})] \quad (5)$$

O ar ao entrar no secador tem uma umidade absoluta  $U_a$ . Após absorver a água dos dejetos atomizados, o ar sai do secador saturado com umidade  $U_{as}$ . Sendo  $m_{ar}$  a vazão mássica de ar adentrando o secador, a quantidade máxima de água em kg/s, que o ar pode absorver,  $m_{água}$ , é dada por :

$$m_{água} = m_{ar} (U_{as} - U_a) \quad (6)$$

### 3. Desenvolvimento do projeto

Esta pesquisa está sendo desenvolvida sobre uma plataforma sistemática de desenvolvimento de processo de projeto de sistemas técnicos. Utilizando a metodologia de Pahl & Beitz, o desenvolvimento deste projeto está sendo conduzido sob a ótica de quatro fases de projeto: projeto informacional (PI), projeto conceitual (PC), projeto preliminar (PP) e projeto detalhado (PD). Ainda, após a realização do projeto, a etapa de manufatura também é realizada tendo como objetivo a fabricação e montagem do protótipo do secador. A continuidade deste trabalho, já num próximo projeto, tratará da otimização dos parâmetros que neste estão sendo definidos como básicos para o projeto físico final.

Conduzida por esta metodologia e os procedimentos que ela prescreve, esta proposta de trabalho visou o desenvolvimento de um secador de alta temperatura do tipo fluxo cruzado para secagem de uma mistura de dejetos suínos. Nele, a queima do Biogás proveniente de biodigestores coletados in natura em campo, propicia o fluxo de ar quente necessário ao secador. A mistura água + matéria sólida dos dejetos adentrará o secador utilizando um sistema de atomização. A atomização permite que se obtenha uma névoa de dejetos no interior do secador propiciando uma maior área de contato da mistura com o ar quente.

#### 3.1 – Dados gerais sobre o processo de secagem dos dejetos

Na secagem por atomização, os fluxos de dejetos e de ar quente são reversos, ou seja, um contra o outro. Esse fluxo pode apresentar duas variantes básicas: ar de cima para baixo e dejetos de baixo para cima ou vice-versa. A Figura 1 ilustra o conceito do processo de secagem por atomização num fluxo reverso com insuflados de cima para baixo.

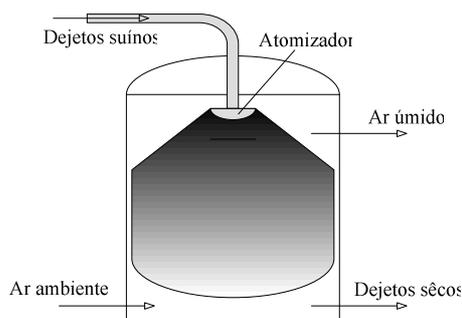


Figura 1 - Secador tipo fluxo cruzado proposto.

#### 3.2 – O problema de âmbito estadual

A criação de suínos, com elevada concentração demográfica, tem como principal desvantagem, a falta de espaço para armazenagem e de processos para uma segura distribuição. Por conta disso, as agroindústrias, os órgãos competentes por esta questão, os próprios agricultores e, globalmente, a sociedade, buscam soluções que amenizem ou eliminem os efeitos que este tipo de atividade traz. Surge a iniciativa de se desenvolver uma nova tecnologia que permita não apenas eliminar o problema da questão ambiental, mas que se reverta em benefícios econômicos ao produtor, agregando mais valor a atividade por ele desenvolvida. Esta tecnologia deverá ser acessível e viável economicamente aos produtores de grande, médio e pequeno porte. Este trabalho destina-se ao desenvolvimento de um produto “atraente” aos anseios da comunidade produtora de suínos com vantagens tanto ambientais como econômicas.



Tabela 1 – Especificação de projeto do secador de dejetos suínos.

Nº	Especificação	Meta	Sensor	Saídas Indesejáveis	Observações / Restrições
01	Volume de manipulação	2000 kg	Operador	Não atender produção da propriedade	Acúmulo de dejetos.
02	Tempo em funcionamento	2 a 4 h/dia	Relógio	Tempo elevado	Queda do Rendimento relacionado à sobrecarga do sistema.
03	Rendimento	80 a 90%	Cálculo de projeto	Presença de sólidos nos gases; Saída de sólidos com umidade	Baixa qualidade final do produto (adubo).
04	Versatilidade	- x - x -	Cliente	Não adequação à estrutura	Investimento elevado Não atender as necessidades.
05	Praticidade	- x - x -	Operador	Complexidade na operação	Difícil manuseio com queda da qualidade do processo.

As conclusões tiradas pela equipe de projeto, com base nas entrevistas realizadas com os produtores escolhidos, da região do meio oeste catarinense, foram sumarizadas e relacionadas a seguir:

- (01) Há falta de espaço para armazenagem e de processos para uma segura distribuição;
- (02) Os sistemas atualmente utilizados na secagem de dejetos suínos são desconhecidos pela maioria dos produtores;
- (03) A utilização desse tipo de sistema ainda não havia sido pensada pela maioria dos produtores;
- (04) O financiamento é a alternativa mais viável para a obtenção de um equipamento deste gênero, devido aos problemas financeiros enfrentados pela maioria dos produtores;
- (05) A segurança aliada à facilidade de operação são as necessidades mais requisitadas;
- (06) A preferência por métodos automáticos para o manuseio de dejetos e a utilização das atuais esterqueiras para armazenagem dos resíduos sólidos foi preferencial a todos;
- (07) Os insumos resultantes da separação segundo os produtores teriam utilização tanto para alimentação animal como para a adubação;
- (08) As melhores fontes de energias complementares para o processo de secagem de dejetos suínos, segundo os produtores visitados, são: a energia elétrica, o gás e o combustível vegetal (lenha, serragem, etc.);
- (09) Há grande interesse em se utilizar o vapor da água gerado no processo de secagem dos dejetos principalmente para o aquecimento de ambientes devido à necessidade de alguns casos como dos criadores de leitões manterem as temperaturas estáveis;
- (10) O local de instalação preferencial para o secador é próximo às esterqueiras, pois é possível utilizar os dejetos diretamente das calhas dos chiqueiros direcionando-o ao secador via bomba de injeção e posteriormente às esterqueiras para colocação dos resíduos sólidos;
- (11) Quanto ao tamanho do equipamento e seus componente não há maiores problemas;
- (12) A aceitação dos odores provenientes do processo produtivo foi divergente;
- (13) Há necessidade de criação de diferentes capacidades para o equipamento condizentes com o número de animais da propriedade (kg de dejetos/dia);
- (14) O principal fator levado em consideração pelos criadores é o maior tempo de vida possível para a máquina, aliado aos valores acessíveis visto que a grande maioria prefere processar os dejetos particularmente em suas propriedades;
- (15) O projeto agradou aos produtores que apóiam a iniciativa e esperam contar com a colaboração do mesmo a fim de amenizar os problemas e possibilitar até mesmo a expansão de suas criações num futuro próximo;
- (16) Como se trata de um problema do Estado, foi sugerido que se obtenha apoio do governo estadual para tornar a proposta mais dinâmica e que as soluções possam surgir mais rapidamente em parceria com outras instituições.

### 3.5 – Projeto Conceitual

Uma das tarefas mais importantes do projeto sistemático ocorre nesta fase. A descrição e definição da estrutura funcional do produto que caracteriza o uso do produto, ou seja, as funções que o equipamento como um todo deve desempenhar para cumprir com os requisitos especificados na EPP, é um tipo de representação descritiva do uso e comportamento do produto.

É usual expressar as funções do produto em termos hierárquicos. Dessa forma, pode-se descrever a função global do produto por meio de desdobramentos, subdividir as funções do produto até o nível mais elementar de interesse. A definição da estrutura funcional do secador de dejetos suínos é feita com base na especificação de projeto de produto. A equipe de projeto descreveu uma estrutura funcional no nível macro de produto para o secador de dejetos suínos, sem chegar-se, no detalhamento inerente às peças. As funções que o secador deve realizar são mostradas descritivamente a seguir e ainda na Figura 3, onde estão representadas graficamente, na forma de árvore hierárquica.

FG 1 – Função Global 1: Secar dejetos suínos a partir da sua fase biodigerida:

FP 1.1 – Função Parcial 1.1: Insuflar ar de secagem de dejetos:

FE 1.1.1 – Função Elementar 1.1.1: Gerar ar atmosférico;

- FE 1.1.2 – Função Elementar 1.1.2: Conduzir ar de insuflamento;
- FE 1.1.3 – Função Elementar 1.1.3: Secar ar de insuflamento;
- FE 1.1.4 – Função Elementar 1.1.4: Conduzir ar seco de insuflamento;
- FP 1.2 – Função Parcial 1.2: Secar dejetos:
  - FE 1.2.1 – Função Elementar 1.2.1: Distribuir ar seco de insuflamento;
  - FE 1.2.2 – Função Elementar 1.2.2: Atomizar dejetos para secagem;
  - FE 1.2.3 – Função Elementar 1.2.3: Bombear dejetos para atomização;
  - FE 1.2.4 – Função Elementar 1.2.4: Acondicionar parte sólida dos dejetos;
  - FE 1.2.5 – Função Elementar 1.2.5: Acondicionar parte líquida remanescente;
  - FE 1.2.6 – Função Elementar 1.2.6: Acessar processo de secagem;
- FP 1.3 – Função Parcial 1.3: Expulsar parte úmida
  - FE 1.3.1 – Função Elementar 1.3.1: Conduzir ar à exaustão;
  - FE 1.3.2 – Função Elementar 1.3.2: Exaurir parte úmida dos dejetos;
  - FE 1.3.3 – Função Elementar 1.3.3: Regular fluxo de ar de exaustão;
  - FE 1.3.4 – Função Elementar 1.3.6: Conduzir parte não tóxica à atmosfera;
- FP 1.4 – Função Parcial 1.4: Controlar parâmetros de uso
  - FE 1.3.1 – Função Elementar 1.4.1: Acionar insuflamento de ar atmosférico;
  - FE 1.3.2 – Função Elementar 1.4.2: Acionar exaustão de gases;
  - FE 1.3.3 – Função Elementar 1.4.3: Acionar bombeamento de dejetos;

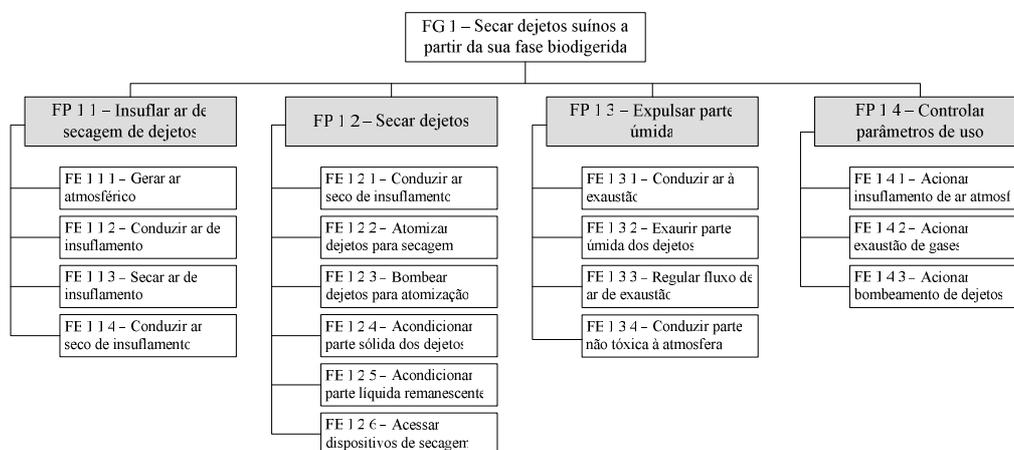


Figura 3 – Estrutura funcional alternativa para o secador de dejetos suínos.

A matriz morfológica criada para este projeto, foi criada apenas com as descrições dos princípios de solução, uma vez que após os testes é que se teve uma visualização mais real dos dispositivos escolhidos/especificados para a realização das funções prescritas na estrutura funcional do produto. Assim procedeu-se às alternativas para cada função descrita, conforme mostrado na Tabela 2.

Tabela 2 – Matriz morfológica do secador de dejetos suínos.

FG	FP	FE	Soluções possíveis		
FG 1: Secar dejetos suínos a partir da sua fase biodigerida	FP 1.1 Insuflar ar de secagem de dejetos	FE 1.1.1: Gerar ar atmosférico	Ventilador centrífugo radial	Ventilador axial	Turbina radial
		FE 1.1.2: Conduzir ar de insuflamento	Dutos de chapa fina com flanges soldadas	Dutos de chapa fina com flanges encaixadas	Dutos de fibra com flange encaixadas
		FE 1.1.3: Secar ar de insuflamento	Caldeira flamotubular	Câmara de aquecimento comb. sólido	Câmara de aquecimento comb. gasoso
		FE 1.1.4: Conduzir ar seco de insuflamento	Dutos prism., chapa fina com flanges soldadas	Dutos prism., chapa fina e flanges encaix.	Dutos prism., de fibra com flange encaixadas
	FP 1.2 Secar dejetos	FE 1.2.1: Distribuir ar seco de insuflamento	Entrada tangencial	Entrada superior	Entrada tangencial inclinada
		FE 1.2.2: Atomizar dejetos para secagem	4 Bicos atomizadores hidráulicos leque ôco	4 Bicos atomizadores hidráulicos leque maciço	2 Bicos atomizadores hidráulicos leque ôco
		FE 1.2.3: Bombear dejetos para atomização	motobomba de alta pressão	motobomba de média pressão	Bomba d'água de alta pressão

		FE 1.2.4: Acondicionar parte sólida dos dejetos	Saída em forma de cône	Saída tubular cônica	Saídas laterais espaçadas
		FE 1.2.5: Acondicionar parte líquida remanescente	Sucção direta	Sucção reversa contra fluxo	
		FE 1.2.6: Acessar dispositivos de secagem	Escotilha com dobradiça (lado)	Escotilha com parafusos	Escotilha com dobradiças (cima)
	FP 1.3 Expulsar parte úmida	FE 1.3.1: Conduzir ar à exaustão	Dutos cilíndricos, chapa fina com flanges soldadas	Dutos cilíndricos, chapa fina e flanges encaix.	Dutos cilíndr., de fibra com flange encaixadas
		FE 1.3.2: Exaurir parte úmida dos dejetos	Ventilador centrífugo radial	Ventilador axial	
		FE 1.3.3: Regular fluxo de ar de exaustão	Válvula gaveta simples	Válvula gaveta pneumática	válvula rotativa pneumático
		FE 1.3.4: Lavar gases de secagem dos dejetos	Lavador de gases com filtro ativo	Lavador de gases com chuveiro	Lavador de gases sem chuveiro
		FE 1.3.5: Reter parte tóxica	No próprio lavador	Dispositivo adicional	Disp. adicional sob pressão
		FE 1.3.6: Conduzir parte não tóxica à atmosfera	Ciclone com duto vertical	Com dutos para atmosfera	Duplo ciclone com duto vertical
	FP 1.4 Controlar parâmetros de uso	FE 1.4.1: Acionar insuflamento de ar atmosférico	Painel com todos os controles	Individual com variador de freq.	Individual sem variador de freq.
		FE 1.4.2: Acionar exaustão de gases	Painel com todos os controles	Individual com variador de freq.	Individual sem variador de freq.
		FE 1.4.3: Acionar bombeamento de dejetos	Painel com todos os controles	Individual com variador de freq.	Individual sem variador de freq.

A partir das possíveis soluções para cada função elementar, é possível fazer-se uma análise global da buscando a definição de soluções conceituais alternativas para o secador. A equipe de projeto se reúne e discute todas aquelas soluções conceituais que melhor se encaixam nos requisitos dos produtores. Existem montagens que, apesar de serem possíveis não atendem às especificações dadas na especificação de projeto do produto. A equipe deve estar atenta a este importante documento de aprovação de projeto que serve como guia nas tomadas de decisões de projeto.

Na matriz de decisão são mostradas soluções em termos das montagens realizadas com base nas opções definidas na matriz morfológica. Para este projeto foram definidas 3 (três) possíveis opções. Com base nelas é feita uma avaliação à luz dos requisitos especificados. A Tabela 3 mostra a matriz de decisão do secador de dejetos suínos.

Tabela 3 – Matriz de decisão da solução conceitual do secador de dejetos suínos.

FG	FP	FE	Opção 1	Opção 2	Opção 3
FG 1: Secar dejetos suínos a partir da sua fase biodigerida	FP 1.1 Insuflar ar de secagem de dejetos	FE 1.1.1: Gerar ar atmosférico	Ventilador centrífugo radial	Ventilador axial	Ventilador centrífugo radial
		FE 1.1.2: Conduzir ar de insuflamento	Dutos de chapa fina com flanges soldadas	Dutos de chapa fina com flanges encaixadas	Dutos de fibra com flange encaixadas
		FE 1.1.3: Secar ar de insuflamento	Câmara de aquecimento comb. gasoso	Câmara de aquecimento comb. sólido	Caldeira flamotubular
		FE 1.1.4: Conduzir ar seco de insuflamento	Dutos prism., chapa fina com flanges soldadas	Dutos prism., chapa fina e flanges encaix.	Dutos prism., de fibra com flange encaixadas
	FP 1.2 Secar dejetos	FE 1.2.1: Distribuir ar seco de insuflamento	Entrada tangencial	Entrada superior	Entrada tangencial
		FE 1.2.2: Atomizar dejetos para secagem	2 Bicos atomizadores hidráulicos leque ôco	4 Bicos atomizadores hidráulicos leque maciço	4 Bicos atomizadores hidráulicos leque ôco
		FE 1.2.3: Bombear dejetos para atomização	motobomba de alta pressão	motobomba de média pressão	motobomba de alta pressão

		FE 1.2.4: Acondicionar parte sólida dos dejetos	Saída em foma de cône	Saída tubular cônica	Saídas laterais espaçadas
		FE 1.2.5: Acondicionar parte líquida remanescente	Sucção direta	Sucção reversa contra fluxo	Sucção direta
		FE 1.2.6: Acessar dispositivos de secagem	Escotilha com parafusos	Escotilha com dobradiça (lado)	Escotilha com dobradiças (cima)
	FP 1.3 Expulsar parte úmida	FE 1.3.1: Conduzir ar à exaustão	Dutos cilíndr., chapa fina com flanges soldadas	Dutos cilíndr., chapa fina e flanges encaix.	Dutos cilíndr., de fibra com flange encaixadas
		FE 1.3.2: Exaurir parte úmida dos dejetos	Ventilador centrífugo radial	Ventilador axial	Ventilador centrífugo radial
		FE 1.3.3: Regular fluxo de ar de exaustão	Válvula gaveta simples	Válvula gaveta pneumática	válvula rotativa pneumático
		FE 1.3.4: Lavar gases de secagem dos dejetos	Lavador de gases com chuveiro	Lavador de gases com filtro ativo	Lavador de gases sem chuveiro
		FE 1.3.5: Reter parte tóxica	No próprio lavador	Dispositivo adicional	Disp. adicional sob pressão
		FE 1.3.6: Conduzir parte não tóxica à atmosfera	Ciclone com duto vertical	Com dutos para atmosfera	Duplo ciclone com duto vertical
	FP 1.4 Controlar parâmetros de uso	FE 1.4.1: Acionar insuflamento de ar atmosférico	Individual com variador de freq.	Painel com todos os controles	Individual sem variador de freq.
		FE 1.4.2: Acionar exaustão de gases	Individual com variador de freq.	Painel com todos os controles	Individual sem variador de freq.
		FE 1.4.3: Acionar bombeamento de dejetos	Individual com variador de freq.	Painel com todos os controles	Individual sem variador de freq.

Para avaliar quais das três opções é mais adequada às necessidades descritas pelos produtores, é necessário fazer uma análise numérica que contemple os pesos atribuídos por eles. Um método é o chamado passa-não-passa (pñp) por meio do qual é possível encontrar a opção mais adequada ao produto. A Tabela 4 mostra a matriz “passa-não-passa” de análise das opções definidas na matriz de decisão anterior. Nela, as necessidades previamente estipuladas pelos produtores são avaliadas agora à luz da sua realização ou não realização pela opção escolhida pela equipe de projeto para realizar aquela necessidade. O símbolo “P” é usado quando a opção realiza a necessidade o símbolo “NP” é usado, quando não realiza. Após a análise, a opção I atingiu um maior número de “P’s” e é, provavelmente, a mais adequada.

No entanto, ela é tomada apenas como referência, pois uma segunda matriz “passa-não-passa” é montada para avaliar as outras opções, comparando-a com a opção de referência considerando-se agora, os pesos dados pelos produtores para suas necessidades, descritas na matriz de necessidades, citada no item 3.4.1. Neste caso, as opções remanescentes são submetidas à avaliação e comparadas à opção de referência novamente sob a ótica das necessidades dos produtores e os respectivos pesos. A questão análise agora é se a opção sendo avaliada realiza mais, igualmente, ou menos, a necessidade descrita e a notação na matriz fica, respectivamente, +, = ou -, segundo os critérios adotados.

Tabela 4 – Primeira matriz de avaliação passa-não-passa para o secador de dejetos suínos.

Nº	Necessidades dos produtores	Opções		
		I	II	III
01	Produzir resíduos para adubação	P	P	P
02	Produzir resíduos para alimentação animal	P	P	P
03	Reutilizar gases produzidos no biodigestor	P	NP	NP
04	Usar energia elétrica no acionamento	P	P	P
05	Usar combustível vegetal no acionamento	P	P	NP
06	Usar combustível gasoso (GLP) no acionamento	P	NP	NP
07	Ter baixo custo de manutenção	P	P	NP
08	Ter baixo custo de operação	P	P	NP
09	Ter vida útil longa	P	P	P
10	Ter versatilidade na manipulação e no transporte	P	NP	P
11	Ter um bom nível de automação	NP	NP	NP
12	Ser segura na operação	P	P	P
13	Ser confiável no uso	P	P	P
14	Ser leve quando possível	P	P	P
15	Ter estrutura compatível com o uso	P	P	P
16	Requerer posicionamento estável para uso	P	P	P
17	Produzir baixa intensidade de odores maléficis	P	NP	NP
18	Possibilitar expansão para aumento de produção	P	P	P
19	Ser modular	P	P	P
20	Ter baixo custo de compra	P	NP	P
21	Ter material anticorrosivo	NP	NP	NP

A Tabela 5 traz a representação numérica das avaliações feitas por este método que culminou na escolha da própria opção de referência. As duas outras opções permanecem como possíveis soluções conceituais para o produto, no caso da opção de referência tiver que ser, por algum motivo desconhecido no momento, descartada. Ela traz os pesos atribuídos pelos produtores às suas necessidades. O range utilizado foi de 0 (zero) a 5 (cinco).

A avaliação mostrada na Tabela 5 indicou que a solução conceitual de referência (SCR) I é a mais adequada para o produto, de acordo com os requisitos e necessidades colocadas pelos produtores. A solução conceitual III é a segunda opção mais adequada, seguida pela opção II. Com citado anteriormente, as duas últimas opções poderão eventualmente ser utilizadas, caso solução conceitual escolhida for, por algum motivo, descartada.

Tabela 5 – Segunda matriz de avaliação passa-não-passa para o secador de dejetos suínos.

Nº	Necessidades dos produtores	Peso	Soluções Conceituais		
			I	II	III
01	Produzir resíduos para adubação	3,0		=	=
02	Produzir resíduos para alimentação animal	3,0	R	=	=
03	Reutilizar gases produzidos no biodigestor	5,0		-	-
04	Usar energia elétrica no acionamento	4,0	E	=	=
05	Usar combustível vegetal no acionamento	2,0		=	=
06	Usar combustível gasoso (GLP) no acionamento	1,0	F	+	=
07	Ter baixo custo de manutenção	5,0		-	-
08	Ter baixo custo de operação	5,0	E	-	-
09	Ter vida útil longa	4,0		=	=
10	Ter versatilidade na manipulação e no transporte	5,0	R	-	=
11	Ter um bom nível de automação	5,0		=	=
12	Ser segura na operação	3,0	Ê	-	-
13	Ser confiável no uso	4,0		-	-
14	Ser leve quando possível	2,0	N	-	+
15	Ter estrutura compatível com o uso	4,0		-	=
16	Requerer posicionamento estável para uso	3,0	C	=	-
17	Produzir baixa intensidade de odores maléficos	3,0		-	=
18	Possibilitar expansão para aumento de produção	5,0	I	-	=
19	Ser modular	3,0		=	=
20	Ter baixo custo de compra	5,0	A	=	-
21	Ter material anticorrosivo	3,0		=	=
Total (+)			0	1 (+)	1 (+)
Total (-)			0	10 (-)	7 (-)
Total Global (-) + (+)			0	9 (-)	6 (-)
Peso Global = $\Sigma$ [Peso x (-) + Peso x (+)]			0	- 39	- 28
(=) Atende igual à solução conceitual de referência (SCR); (-) Atende igual à SCR; (+) Atende mais que a SCR					

Com isso, a solução conceitual para o secador é definida e doravante é dimensionada na fase de projeto preliminar.

### 3.6 – Projeto Preliminar

A fase de projeto preliminar implica, principalmente, na definição das funções de cada componente que vai compor a solução conceitual, na definição prévia dos materiais que vão compor cada peça e/ou componente e no pré dimensionamento estático e/ou dinâmico desses componentes.

Isso foi realizado diretamente num dos modeladores geométricos para CAD (*Computer-Aided Design*) disponíveis na Área de Ciências Exatas e da Terra na Instituição. O modelador sólido *Solid Edge* Versão 1.5 é um modelador de CAD *mid-range* comercial que permite uma interação bastante fácil e intuitiva entre projetista e os recursos disponíveis para criação de modelos geométricos de peças, montagens, folhas de engenharia, entre outros recursos e foi o escolhido para este projeto. Além dele, é disponível ainda o Modelador geométrico *High End* da PTC (*Parametric Technology Corporation*) *Pro Engineer*, que engloba na sua versão acadêmica, ferramentas que permitem aos usuários projetistas a completa criação de sistemas técnicos, inclusive podendo gerar simulações dinâmicas e térmicas, via tecnologias CAD, CAE e CAM, englobando as três tecnologias necessárias neste domínio.

A fase de projeto preliminar do secador de dejetos suínos procedeu a realização dos croquis dos componentes do protótipo e o dimensionamento da parte estrutural do mesmo. O conjunto dos croquis deu origem à montagem mostrada na Figura 4. A vista em perspectiva mostrada dá uma idéia do conceito definido na fase de projeto conceitual para o secador de dejetos suínos e seus componentes básicos. Nesta ilustração não são mostrados os ventiladores centrífugos, a bomba de dejetos, os bicos atomizadores e os secadores de gases.

Estes componentes não haviam sido especificados nem dimensionados por ocasião da entrega deste relatório final da pesquisa. Evidentemente, a continuidade desta pesquisa trará a especificação de todos os componentes que por hora estão sendo estudados para comporem a solução final do secador.

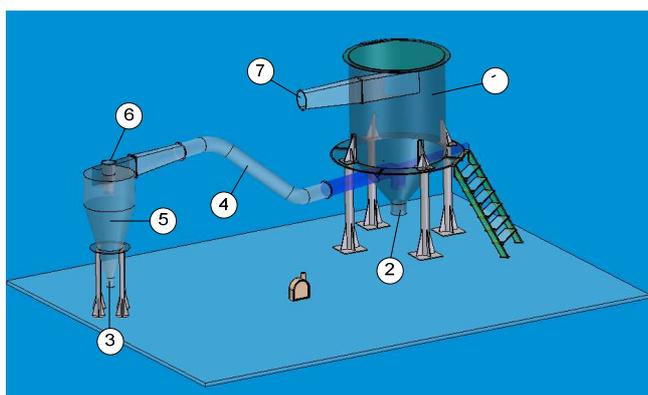


Figura 4 – Croqui do protótipo do secador de dejetos suínos.

Os balões mostrados na Figura 4 representam os componentes básicos do equipamento que são descritos a seguir:

- |  |  |
|--|--|
| 1- Câmara de atomização de dejetos;  | 4- Exaustão de ar úmido;                                 |
| 2- Saída da parte sólida dos dejetos (reusada como fertilizante);                | 5- Ciclone para amortecimento da velocidade de exaustão; |
| 3- Saída da parte sólida remanescente de dejetos (adicionada à primeira tirada); | 6- Saída de ar úmido para atmosfera;                     |
|  | 7- Injeção de volume de ar seco.                         |

O princípio de funcionamento do secador de dejetos suínos, na ótica da conversão de fluxo de energia, material e sinal, é descrito. Inicialmente, após serem recolhidos num reservatório próprio, os dejetos são bombeados por meio da bomba hidráulica de alta pressão para os bicos aspersores ou atomizadores hidráulicos. A alta pressão exercida na saída dos bicos e por interferência da geometria interna característica do tipo de bico utilizado, faz com que uma ejeção atomizada (gotas de diâmetro uniforme) de dejetos seja formada no interior da câmara na forma de um leque cônico e oco no sentido de baixo para cima.

Em contrapartida, na parte superior da câmara de secagem uma dada quantidade ar ambiente é insuflado para secar os dejetos atomizados suspensos na forma de leque cônico oco em contra fluxo, ou seja, de cima para baixo. O ar ambiente absorve a parte úmida atomizada e as partículas sólidas precipitam na direção do funil inferior da câmara de secagem e seja recolhido adequadamente. O ar úmido sai saturado da câmara de atomização sendo transportado para um ciclone que reduz sua velocidade e retém a quantidade remanescente de dejetos sólidos que é retirada e adicionada à parte sólida retirada anteriormente na câmara de secagem, à medida que se dirige à atmosfera. A parte sólida retirada tem valor agregado, podendo ser embalada e comercializada como fertilizante e ainda como alimento animal.

]Para a busca de valores aproximados dos principais parâmetros de medição e controle do processo de secagem, foi necessária a realização duas baterias de testes. Inicialmente, com apenas um furo centrado o jato de água atingiu aproximadamente 4 metros de altura começando a apresentar resquícios de névoa, em seguida foi efetuado um corte transversal sobre a saída do bico observando que com isso houve um aumento expressivo de névoa com diminuição da altura. Por fim efetuou-se novamente outro corte transversal perpendicular ao outro corte onde os resultados apresentaram-se, de certa forma, contraditórios, pelo fato de o material do bico (*nylon*) não ter passado por um melhor acabamento.

Na primeira bateria de testes (realizado em 04/08/2005), observou-se o comportamento do líquido na aspersão, procedeu-se a montagem do sistema com tubos de diâmetro de 25 mm, bomba centrífuga de um estágio, 3460 rpm, potência 1 cv e frequência de 60 hz. Foram efetuados cortes nos tubos e colagem bem como a utilização de fitas “vedaroscas” para se evitar perdas de vazão com vazamentos. Na segunda bateria de testes (realizada em 16/08/2005) observou-se o comportamento do bico na aspersão. Procedeu-se a montagem do bico confeccionado em nylon, no sistema com tubos de 25 mm e 50 mm, bomba centrífuga três estágios, 3460 rpm, potência de 3 cv e rendimento de 79,4%. Foram efetuados corte dos tubos e colagem bem como a utilização de fita “vedaroscas”, para se evitar perdas de vazão com vazamentos. A Tabela 6 mostra um resumo dos dados levantados ao final dos dois testes. A Figura 5 mostra um teste de comportamento do bico de aspersão e seu comportamento quando submetido a uma dada pressão.

Tabela 6 – Levantamento dos dados dos testes de aspersão.

Parâmetros	Comportamento do líquido na aspersão			Comporta <sup>o</sup> do bico na aspersão
	Teste 01	Teste 02	Teste 03	Teste 04
Diâmetro do furo (mm)	1	1,5	2,5	2,0
Frequência (Hz)	60	60	60	60
Altura do jato d'água (m)	6	7	10	-x-x-
Tempo de aspersão (min)	2,5	4,2	2,0	Vazão 421 litros/hora
Volume d'água(litros)	21	5	6	

No teste 01, o líquido foi lançado na forma de jato, com um furo de 1 mm, não formando névoa, apenas na parte superior, cerca de 4,5 a 5,0 metros de altura onde ocorre uma leve dispersão com cerca de 25 a 30 centímetros de diâmetro. No teste 02, comparativamente ao teste 01, obteve-se um acréscimo na elevação do jato, no entanto, a dispersão deste se deu menor que a de 1 mm, e a altura onde se inicia a dispersão foi maior. O teste 03 foi similar ao teste 02, havendo apenas uma maior elevação do jato de água sem aumento de dispersão.



Figura 5 – Foto do teste de comportamento do bico de aspersão Vista

Conclui-se que quanto menor o diâmetro do furo menor a altura do jato de água e maior a dispersão, no entanto, essa dispersão se manteve abaixo do esperado para fins deste projeto. Fazendo cortes transversais a dispersão do líquido aumenta devido à ação da pressão que age para ambos os lados, ou seja, perpendicularmente à superfície. Quanto ao material do bico, serve apenas para as condições de teste, pois não suportaria as condições reais de trabalho. Assim, é necessário um maior nível de pressão para chegar aos resultados desejados.

### 3.7 – Projeto Detalhado

Com os modelos e croquis básicos criados na fase de projeto preliminar, deu-se início às modelagens geométricas finais dos modelos anteriormente criados na fase anterior, no modelador geométrico escolhido (Sistema CAD *Solid Edge V15*). Nele foi realizada a definição final dos materiais e das dimensões da versão final. Os modelos geométricos dos componentes, montagens ficam disponíveis no acervo dos pesquisadores, uma vez que este produto deverá ser patenteado tão logo sejam feitos os testes para sua otimização.

### 3.8 – Fabricação do protótipo do secador

Os modelos geométricos dos componentes produzidos na fase de projeto detalhado foram utilizados na fabricação dos componentes e na montagem do protótipo do secador de dejetos suínos. As Figuras 6(a), 6(b), 7(a) e 7(b) mostram imagens dos componentes do secador já montado no Laboratório de Ciências Térmicas da UNOESC no centro Tecnológico II.



(a)



(b)

Figura 6 – (a) Vista parcial dianteira do protótipo do secador no início das montagens; (b) Vista parcial traseira do protótipo do secador no início das montagens.



(a)



(b)

Figura 7 – (a) Vista inferior da saída da parte sólida; (b) Vista interna da câmara de secagem mostrando em destaque o bico atomizador e a tomada de exaustão da parte úmida.

Lá estão sendo realizados os ajustes necessários à estrutura para início dos testes de fluxo de material similar (pó de café) para verificar a performance da solução conceitual escolhida. Durante a realização desta pesquisa, toda parte estrutural foi fabricada tendo por requisito principal a adequação do protótipo às condições de apoio do Laboratório de Ciências Térmicas.

#### 4. Conclusões

Durante o período de realização desta pesquisa alguns eventos importantes foram realizados cuja participação foi primordial na definição de alguns requisitos de projeto. Um deles foi a “Reunião Técnica sobre Biodigestores para Tratamento de Dejetos Suínos e Uso de Biogás”, realizada na EMBRAPA suínos e aves de Concórdia – SC. Neste evento houve a participação da equipe de projeto desta pesquisa, na qualidade de ouvintes. Num segundo evento, “III Seminário de Grupos de Pesquisa e I Seminário de Iniciação Científica” realizado na UNIPLAC em Lages – SC, houve a participação mais direta da equipe de projeto, com a apresentação oral do trabalho.

Há um grande percurso a ser percorrido antes da aprovação do protótipo, segundo os requisitos contratados junto aos produtores. No entanto, as informações levantadas até o presente momento servem como motivação constante na busca da conclusão da proposta. Com a otimização prevista para um segundo trabalho, espera-se chegar a um conjunto de parâmetros dependentes e independentes controláveis que sirvam para chegar-se a um equipamento versátil, resistente e funcional, de fácil aquisição e acessível à grande maioria dos produtores rurais, criadores de suínos, cuja produção cresce vertiginosamente a cada ano. Com isso, se estará prestando uma grande contribuição na busca de soluções para os problemas decorrentes dos dejetos suínos no Estado de Santa Catarina e em outras regiões do país.

#### 5. Referências

- Jesus, M.F. e Silva, G.F., Programa para estimativa das propriedades psicrométricas, 2002, Revista Brasileira de Produtos Agroindustriais, v.4, n.1, p.63-70.
- Linhares, J. C., 2000, Mapeamento entre os domínios de função e forma geométrica no projeto mecânico, Qualify – Exame de qualificação para tese de doutorado em eng. Mecânica, PósMec/UFSC.
- Pahl, G. & Beitz W, 1984, Engineering Design, Spring Verlag, London.
- Silva, J. S., [Editor], Pré-processamento de produtos agrícolas, 1995, Instituto Maria, Juiz de Fora: MG, 509 p.,.
- Silva, L. C., Silva, J. S., Queiroz, D. M., Oliveira-Filho, 1991, D. Desenvolvimento e Avaliação de um Secador de Café Intermitente de Fluxos Contracorrentes. In : XX Congresso Brasileiro de Engenharia Agrícola.
- Wilhelm, L.R., 1976, Numerical calculation of psychrometrical properties in SI units, Trans. Of the ASAE, (19), p.318-325.

### DESIGN AND MANUFACTURE A PROTOTYPE SWINE SLUDGE DRYING THROUGH REVERSE ATOMIZATION

#### João Carlos Linhares

West University of Santa Catarina, Technological Center I – Rua José Firmo Bernardi, 1591 – Flor da Serra – CEP: 89600-000 – Joaçaba – SC – Brazil  
[joao.linhares@unoesc.edu.br](mailto:joao.linhares@unoesc.edu.br)

#### Antonio Carlos Ferreira

West University of Santa Catarina, Technological Center I – Rua José Firmo Bernardi, 1591 – Flor da Serra – CEP: 89600-000 – Joaçaba – SC – Brazil  
[antonio.ferreira@unoesc.edu.br](mailto:antonio.ferreira@unoesc.edu.br)

**Abstract:** *The swine sludge is the potential problem in Santa Catarina State. Same solutions search processes are in course. For initiative of the Brazilian Company of Agricultural Research and West University of the Santa Catarina it was proposed a prototype swine sludge drying design and manufacture to be used in the small farms. The idea is to separate the sludges liquid and solid parts using energy renewable sources and low environmental risk technologies. The prototype has three main systems: air injection system, sludges atomization system with high pressure and an air exhaustion system to atmosphere. During the sludges aspersion an originated spray of the atomization under high pressure it is put in contact a air flow that absorbs the sludges liquid part allowing its drying. The injected and exhausted air flows are balanced and allow the sludges solid part output in the camara inferior region and it can be used in the fertilizers composition and still as animals food because its fertilizing nature contains proteins. The atomizations drying system is in optimization phase. The pneumatic and mass flow processes should be tested in farms still in 2006.*

**Key-words:** *Swine sludges drying, machines design, mass energy swinging;*

## A STABILIZED FINITE ELEMENT METHOD FOR UNSTEADY POLLUTION DISPERSION IN RIVERS

**Rafael de Mello Pereira**

University of Brasilia. Department of Mechanical Engineering.  
Laboratory of Energy and Environment. 70910-900 Brasilia. DF. Brazil.  
mp.rafael@gmail.com

**Antonio C. P. Brasil Junior**

University of Brasilia. Department of Mechanical Engineering.  
Laboratory of Energy and Environment. 70910-900 Brasilia. DF. Brazil.  
brasiljr@unb.br

**Alan Cavalcanti da Cunha**

Instituto de Pesquisas Científicas e Tecnológicas do Estado do Amapá.  
Centro de Pesquisas Aquáticas.  
brasiljr@unb.br

**Abstract.** *In this work a stabilized finite element method is proposed for the simulation of unsteady pollution in rivers. The pollution constituents transport is modeled using a set of one dimensional and transient convection-reaction-diffusion equations. The boundary conditions can vary on time, and all constituents can interact with each other dynamically. The proposed numerical method is validated using an analytical test case associated with the advection of a pollution front considering time periodic boundary conditions. The DO-BOD model was implemented and the numerical results for a real channel and river pollution problem is analyzed, comparing it to the experimental data.*

**keywords:** *river pollution, finite element method, DO-BOD model.*

### 1. Introduction

The understand of the dynamic characteristic of river pollution transport is fundamental in many environmental problems related to the transient dispersion of chemical or organic compounds. The transient behavior of the river flow influences the concentrations of chemical or biological compounds and its decay after its release from the sources positions. It can compromise the environmental health of the river, considering a admissible maximum concentration of a given specie at any time and any position in the stream. A steady-state analysis based in the time mean values cannot be used to describe this kind of situation.

The unsteady behavior of pollution problem is taken into account in many modern simulation tools, like EDP-RIV1 from USA-EPA or MIKE from DHI for instance. Considering this kind of problem, fast and robust numerical solution schemes have to be implemented in order to provide stable results, without introduction of excessive numerical viscosity.

The space and time dispersion of contaminants have been explored in some works concerning the implementations of numerical schemes. Fischer *et al.*, 1998 had proposed a group of criteria for the numerical simulation of unsteady contaminant transport in rivers. The absence of oscillations in the solution (stable schemes), reduced truncation error and reduced distortion of short-wavelength Fourier components are the main properties required to the numerical schemes.

### 2. Mathematical Formulation

In the present paper unsteady pollutant transport in an open channel (or river) is considered. A reference axis  $x$  along the stream is assumed, and the flow carries a set of species  $\{i = 1, N\}$  diluted in water at a concentration  $C_i(x, t)$ . The concentrations of the species are distributed through the river  $\Omega \equiv \{x \mid x \in [0, L]\}$ , where the transport problem is modeled by a set of unsteady advection-diffusion equations given by:

$$\frac{\partial(AC_i)}{\partial t} + \frac{\partial(uAC_i)}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x} \left( D_i A \frac{\partial C_i}{\partial x} \right) + AS_i \quad (1)$$

In this equation  $A(x)$  denotes the area of the river cross-section and  $u(x)$  is the local velocity of the stream (a plug flow is considered). The distribution of those variables in the stream direction is given from the hydrological and bathymetric river database. The variables  $D_i$  and  $S_i$  denote respectively the longitudinal dispersion coefficient and the source term related to the production or destruction of the specie  $i$ .

This general formulation can reproduce a great number of pollution problems in rivers. Detailed aspects of chemical or biological pollution dynamics can be taken into account for each constituent equation by means of the modeling of diffusion and source terms, (Porto, 1991).

Considering here our attention to organic pollution problems, the classical DO-BOD model will be used. This simple model for organic pollution in rivers takes into account only two species: The dissolved oxygen (DO) and the bio-chemical oxygen demand (BOD).

### 3. Numerical Method

This section present the numerical method used to solve the more generic transport equations Eq. (2). The methodology presented here is one of many variants of a class of methods known as Characteristic-Galerkin Procedure. This kind of methodology has been used with success as early as, Adey and Brebbia, 1974. The Characteristic-Galerkin method variant used in this work was first published by Löhner *et al.*, 1984 and is described in details in other works Löhner *et al.*, 1985 and O. C. Zienkiewicz, 2000b.

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + u \frac{\partial \phi}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) + Q = 0 \quad (2)$$

If the equation above is represented in a reference system convected with the flow such that:

$$dx'_i = dx_i - u_i dt \quad (3)$$

Noting that for  $\phi = \phi(x'_i, t)$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} \Big|_{x_{const}} = \frac{\partial \phi}{\partial x'_i} \frac{\partial x'_i}{\partial t} + \frac{\partial \phi}{\partial t} \Big|_{x'_{const}} = u_i \frac{\partial \phi}{\partial x'_i} + \frac{\partial \phi}{\partial t} \Big|_{x'_{const}} \quad (4)$$

In this new coordinate system convected with the flow eq. (2) becomes simple:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t}(x'(t), t) - \frac{\partial}{\partial x'} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x'} \right) + Q(x') = 0 \quad (5)$$

The time discretization of eq. (5) along a characteristic line, or a line convected with the flow results in eq. (6). In this equation  $\alpha$  is 0 for the explicit form, between zero and one for the semi-implicit form and equal one for the implicit form.

$$\frac{1}{\Delta t} (\phi^{n+1} - \phi^n|_{(x-\delta)}) \approx \theta \left[ \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) - Q \right]^{n+1} + (1 - \theta) \left[ \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) - Q \right]^n \Big|_{x-\delta} \quad (6)$$

Substituting the terms evaluated in  $(x + \delta)$  by Taylor series expansion shown in eq. (7), (8) and (9).

$$\phi^n|_{(x-\delta)} \approx \phi^n - \delta \frac{\partial \phi^n}{\partial x} + \frac{\delta^2}{2} \frac{\partial^2 \phi^n}{\partial x^2} + O(\Delta t^3) \quad (7)$$

Assuming  $\theta$  equal 0.5:

$$\frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) \Big|_{(x-\delta)} \approx \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right)^n - \frac{\delta}{2} \frac{\partial}{\partial x} \left[ \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right)^n \right] + O(\Delta t^2) \quad (8)$$

$$\frac{1}{2} Q|_{(x-\delta)} = \frac{Q^n}{2} - \frac{\delta}{2} \frac{\partial Q^n}{\partial x} \quad (9)$$

Now it is necessary to calculate a approximation for the distance traveled by the particle. There are many forms to calculate this distance, each one leading to different stabilization terms. The approximations employed in this work for velocity and distance are presented in eq. (10), (11) and (12).

$$\delta = \bar{u}\Delta t \quad (10)$$

$$\bar{u} = \frac{u^{n+1} + u^n|_{(x-\delta)}}{2} \quad (11)$$

$$u^n|_{(x-\delta)} \approx u^n - \Delta t u^n \frac{\partial u^n}{\partial x} + O(\Delta t^2) \quad (12)$$

Substituting the Taylor expansion presented in eq. (7), (8) and (9) and the estimative for velocity and traveled distance,  $\delta$ , we have:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\Delta t}(\phi^{n+1} - \phi^n) &= -u^{(n+\frac{1}{2})} \frac{\partial \phi^n}{\partial x} + \frac{\Delta t}{2} u^n \frac{\partial u^n}{\partial x} \frac{\partial \phi^n}{\partial x} + \frac{\Delta t}{2} u^{(n+\frac{1}{2})} u^{(n+\frac{1}{2})} \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \\ &+ \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right)^{n+\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t}{2} u^{n+\frac{1}{2}} \frac{\partial}{\partial x} \left[ \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right)^n \right] - Q + \frac{\Delta t}{2} u^{n+\frac{1}{2}} \frac{\partial Q}{\partial x} \end{aligned} \quad (13)$$

where,

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right)^{n+\frac{1}{2}} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right)^{n+1} + \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right)^n \quad (14)$$

and,

$$u^{n+\frac{1}{2}} = \frac{u^{n+1} + u^n}{2} \quad (15)$$

In order to obtain the fully explicit form the terms evaluate in  $(n + \frac{1}{2})$  are approximated by terms in  $n$ . Equation (16) shows this for the velocity term and the diffusion term is treated in a similar way.

$$u^{n+\frac{1}{2}} = u^n + O(\Delta t) \quad (16)$$

For the fully explicit form:

$$\begin{aligned} \Delta \phi &= \phi^{n+1} - \phi^n = -\Delta t \left[ u^n \frac{\partial \phi}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) + Q \right]^n \\ &+ \frac{\Delta t^2}{2} u^n \frac{\partial}{\partial x} \left[ u^n \frac{\partial \phi}{\partial x} - \frac{\partial}{\partial x} \left( k \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) + Q \right]^n \end{aligned} \quad (17)$$

### 3.1. Spatial Discretization

The spatial discretization of the equation above is possible without any stabilization problem using the Galerkin method. The method is conditional stable even for high Peclet number but this stability depends on the time step used Codina and Zienkiewicz, 2002.

Equation (18) present the interpolation of scalar inside de element, where,  $\tilde{\phi}$ , are the scalar values evaluated in the element nodes,  $\mathbf{N}$ , is the conventional finite element shape function. Utilizing time approximation given by (17) and the Galerkin method in it classical form O. C. Zienkiewicz, 2000a, Hughes, 1987 where the weighting function is the shape function  $N$ , it is possible to find (19).

$$\phi = \mathbf{N} \tilde{\phi} \quad (18)$$

$$\mathbf{M}(\tilde{\phi}^{n+1} - \tilde{\phi}^n) = -\Delta t[(\mathbf{C}\tilde{\phi}^n + \mathbf{K}\tilde{\phi}^n + \mathbf{f}^n) - \Delta t(\mathbf{K}_u\tilde{\phi}^n + \mathbf{f}_s)] \quad (19)$$

$\mathbf{M}$  is the mass matrix and can be treated in its condensed or lumped form Reddy, 1985, Lax and Wendroff, 1960. The treatment of mass matrix this way makes the solutions evident but introduces a new approximation to the problem. In this work the mass matrix is always treated in its lumped form.

The diffusion effect is represented by  $\mathbf{K}$ , this matrix is symmetrical and positive definite. But the convective term in this equation,  $\mathbf{C}$  is asymmetrical. The  $\mathbf{f}$  and  $\mathbf{f}_s$  terms represent the source and the source correction for high Peclet numbers.  $\mathbf{K}_u$  is a convection stabilization term for high Peclet numbers.

$$\begin{aligned} \mathbf{M} &= \int_{\Omega} \mathbf{N}^T \mathbf{N} d\Omega & \mathbf{C} &= \int_{\Omega} \mathbf{N}^T \frac{\partial}{\partial x_i} (u_i \mathbf{N}) d\Omega \\ \mathbf{K} &= \int_{\Omega} \frac{\partial \mathbf{N}^T}{\partial x_i} k \frac{\partial \mathbf{N}}{\partial x_i} d\Omega & \mathbf{f} &= \int_{\Omega} \mathbf{N}^T Q d\Omega \end{aligned} \quad (20)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{K}_u &= -\frac{1}{2} \int_{\Omega} \frac{\partial}{\partial x_i} (u_i \mathbf{N}^T) \frac{\partial}{\partial x_i} (u_i \mathbf{N}^T) d\Omega \\ \mathbf{f}_s &= -\frac{1}{2} \int_{\Omega} \frac{\partial}{\partial x_i} (u_i \mathbf{N}^T) Q d\Omega \end{aligned} \quad (21)$$

### 3.2. Time step calculation

The algorithm presented above is conditionally stable with its stability depending on the time step used. So, it is necessary to deduce a safe way to estimate the time step limits. The factors that determine the stability are the element length, the velocity and the diffusivity coefficient. A dimensional analysis of these variables leads to the following form with time dimension, (22) and (23). These estimations take into account respectively the diffusive and convective effects.

$$\Delta t_d = \frac{h}{|U|} \quad (22)$$

$$\Delta t_c = \frac{h^2}{2k} \quad (23)$$

According to O. C. Zienkiewicz and Vázquez, 1999, the forms present in eq. (24) respect both the diffusivity and convective limits. A further discussion on the calculation of the time step is presented in Codina and Zienkiewicz, 2002.

$$\Delta t = \frac{\Delta t_d \Delta t_c}{\Delta t_d + \Delta t_c} \quad (24)$$

## 4. Results

### 4.1. Single reaction species

This section presents a comparison between the results obtained with the numerical method presented in the last section and the analytical solution for the case of a single reacting species. Twelve different conditions were simulated combining three different diffusivity coefficients, two decay coefficients and two initial conditions. Manson *et al.*, 2000 studied the same problem using another numerical method.

Analytical solution for (2) is possible for the case of a single reacting species with a sudden release of mass  $M$  in a steady flow and uniform channel area. Equation below presents the transient concentrations solution,  $c(x, t)$  obtained if the boundary conditions are given by the same equation when  $x$  equals 0.

$$c(x, t) = \frac{M}{A\sqrt{4\pi(D)t}} \exp\left(-\frac{(x-ut)^2}{4Dt}\right) \exp(-kt) \quad (25)$$

The solution above is gaussian in space traveling with the convection velocity and have a variance given by  $\sigma^2(t) = 2Dt$ . The channel velocity is constant and equal 1 m/s resulting from a  $10m^3/s$  flow in a channel with  $10m^2$ . Three diffusion coefficients were used in this test case, 1, 5 and  $100m^2/s$ . These coefficients are in accord with those present in real rivers. The decay coefficients used were equal to 0 and 0.693/day.

The numerical method is started with the distribution given by (25) with two initial variances  $\sigma^2 = 37,636m^2$  and  $\sigma^2 = 180,000m^2$ . The numerical domain used had 120000 m in length and was divided in 1200 elements with 100m each, the same element length used by Manson *et al.*, 2000. The simulation time is equal 14400 seconds.

Figures (4.1), (4.1), (4.1) and (4.1) compare the numerical and analytical results. These figures show the remarkable agreement obtained for this case and a estimative for the error dimension is only possible when the error in peak percentage is compared Tab. (1).

Table 1: Percentage error in peak

Case	D	k	$\sigma^2$	Error %
1	1	0.693	37636	0.099
2	5	0.693	37636	0.079
3	100	0.693	37636	0.082
4	1	0.693	180000	0.012
5	5	0.693	180000	0.045
6	100	0.693	180000	0.011
7	1	0.000	37636	0.097
8	5	0.000	37636	0.070
9	100	0.000	37636	0.081
10	1	0.000	180000	0.010
11	5	0.000	180000	0.035
12	100	0.000	180000	0.010

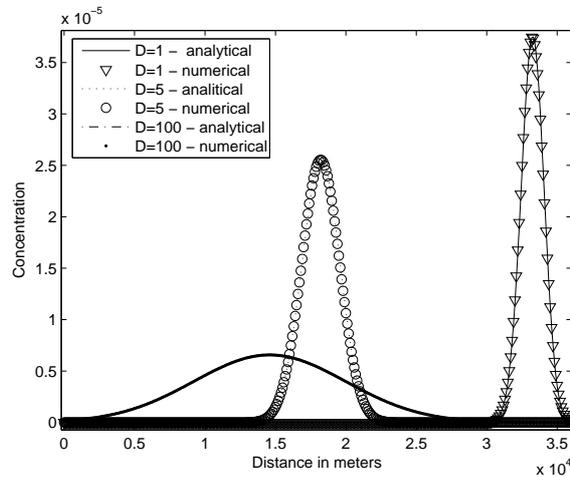


Figure 1: Analytical and numerical comparison for  $k=0.683$  and  $\sigma^2 = 37636m^2$

The good results obtained for this first case suggest that the CBC algorithm can be used to simulate more complex situations or a more long period of time. The computational cost is inexpensive considering that this is a one dimensional problem so no efforts were made to optimize or measure the simulation time.

#### 4.2. Transport of a contaminant cloud with no reaction

In the present section the CBC algorithm is used to simulate the evolution of a cloud of non-reactive component in a channel. In this problem the concentration is measured in two sections 5350 meters apart in the channel, for more information concerning this problem see French, 1986. The measurement in the first section is used as boundary condition for the numerical method. The channel velocity was measured as 0.59m/s. This

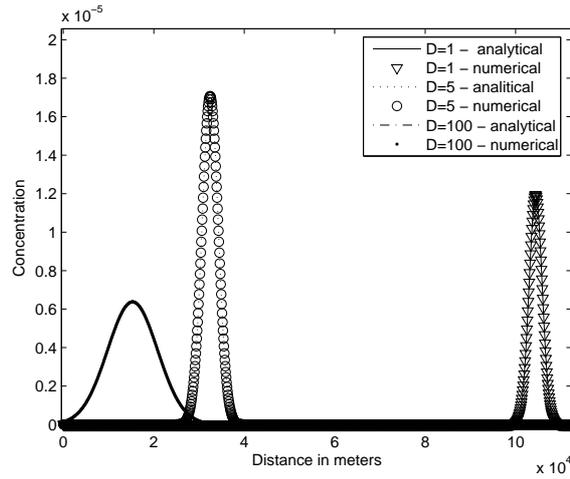


Figure 2: Analytical and numerical comparison for  $k=0.683$  and  $\sigma^2 = 180000m^2$

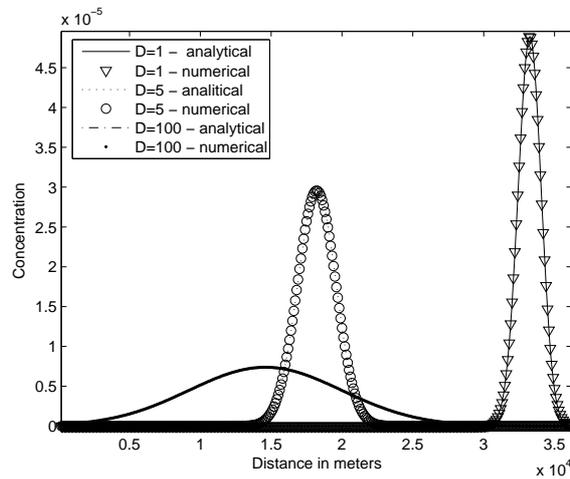


Figure 3: Analytical and numerical comparison for  $k=0.000$  and  $\sigma^2 = 37636m^2$

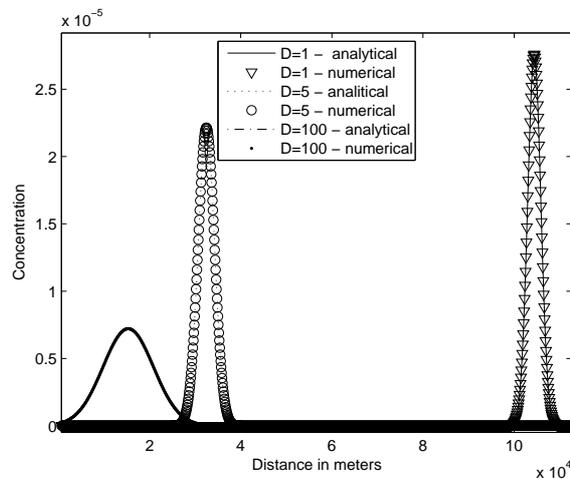


Figure 4: Analytical and numerical comparison for  $k=0.000$  and  $\sigma^2 = 180000m^2$

problem goal is estimate the diffusivity coefficient that best fits the numerical results with the experimental ones.

Table (2) show the measurements for the two sections.

Table 2: Concentration data for section 1 and 2

Section 1		Section 2	
Time in seconds	Concentration	Time in seconds	Concentration
0	0.00	32	0
3	0.26	37	0
6	0.67	42	0.07
9	0.95	47	0.22
11	1.09	52	0.40
13	1.13	56	0.50
15	1.10	60	0.58
17	1.04	62	0.59
19	0.95	64	0.59
24	0.72	68	0.54
29	0.50	75	0.44
34	0.31	84	0.27
39	0.21	94	0.14
49	0.08	104	0.06
59	0.02	114	0.03
-	-	124	0.025
-	-	134	0.02
-	-	144	0

The diffusivity coefficient that best fits the numerical with the experimental results is approximately  $30m^2/s$ , that is very close to the coefficient calculated by French, 1986 using a analytical method. It's important to say that in this case this diffusivity coefficient can not be considered the real diffusivity coefficient that exists in the river, in fact this coefficient is a estimative for the mean of this coefficient along the river. For this simplification and the difficulty to obtain accurate experimental measurements the numerical results can be considered satisfactory.

### 4.3. Multiple interacting species

In 1979 an emergency in a factory in New-Zeland leads to a large amount of milk discharged in the Waipa River. The milk was used as a water tracer transported in the river, data was measure for three fixed times along the river for BOD and DO. The data collected in this incident was compared with numerical estimative by Manson *et al.*, 2000 and McBride and Rutherford, 1984 using different numerical methods.

The experimental data provided by McBride and Rutherford, 1984 include spatial profile for BOD and DO along the river for three times 11 hours apart. In order to validate the CBS algorithm the data obtained for the second time will be used as time boundary condition and results obtained numerically for the last time will be compared with the results measured in the last time. The same velocity and depth profiles used by McBride and Rutherford, 1984 were used in this work (26) and (28), with  $x$  in kilometers. The re-aeration rate  $k_2$  was formulated according to the surface renewal model of O'Connor-Dobbins (27).  $k_1$  was considered as  $1/day$  based in McBride and Rutherford, 1984 and  $D$  was estimated as  $10m^2/s$  based in the same reference.

$$\begin{aligned} u &= 0.09 + 0.002x \quad \text{for } x < 30 \\ u &= -0.4 + 0.018x \quad \text{for } x \geq 30 \end{aligned} \tag{26}$$

$$k_2 = 3.74 \sqrt{\frac{u}{h^3}} \tag{27}$$

$$h = 6 - 0.08x \tag{28}$$

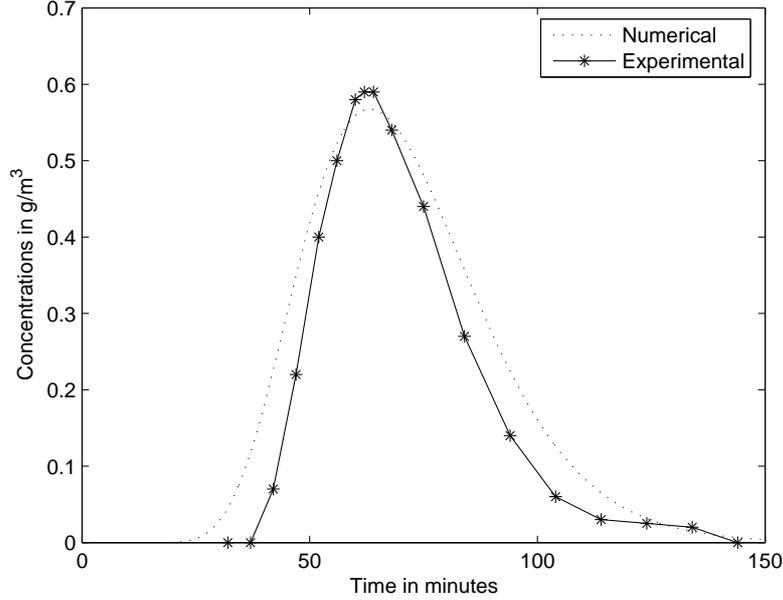


Figure 5: Analytical and numerical comparison for for concentration

For the aerobic condition when  $C > 0.1mg/l$  the Phelps assumption give by (29) was adopted for source and sink terms.

$$\begin{aligned}
 S_l &= -K_1L \\
 S_C &= k_2(C_s - C) - \alpha k_1L
 \end{aligned}
 \tag{29}$$

in this equation  $L$ =river BOD;  $C$ =river DO;  $C_s$ =saturation river DO;  $k_1$ = the river deoxygenation coefficient,  $k_2(x)$ = the river reaeration coefficient and  $\alpha$  is the ratio of the river  $BOD_{ultimate}$  to BOD.

For anoxic condition when  $C < 0.1g/m^3$  the modifications to Streeter-Phelps given by (30) where used.

$$\begin{aligned}
 S_l &= -K_2C_s \\
 S_C &= 0 \quad \text{if } \alpha k_1L > k_2C_s \\
 S_C &= k_2(C_s - C) - \alpha K_1K \quad \text{if } \alpha k_1L \leq k_2C_s
 \end{aligned}
 \tag{30}$$

Figure (4.3) show the experimental data for BOD and DO used as boundary condition for the numerical problem and figure (4.3) show the comparison between the numerical and experimental data. Considering all the errors associated with the experimental measurement and all the assumptions made for estimate  $k_2$ ,  $k_1$ ,  $\alpha$  and the approximations for  $u$  and  $h$  the results can be considered satisfactory.

## 5. Conclusion and Discussions

In the first case studied in this paper the numerical method results were compared with an analytical solution for twelve cases varying three parameters, diffusivity, decay coefficient and initial state. The obtained results are in remarkable good agreement with the analytical solution and indicate that the CBC algorithm can be used in more complex situations and for simulate longer periods of time.

In the second case presented in this paper a comparison with experimental results is performed, a water tracer was throw in a channel and measured in two section for a period of time. The results for the first section were used as boundary conditions for the CBC method, the diffusivity coefficient were calibrated to approximate the numerical results in the second section with the experimental ones. It was noticed some difference between

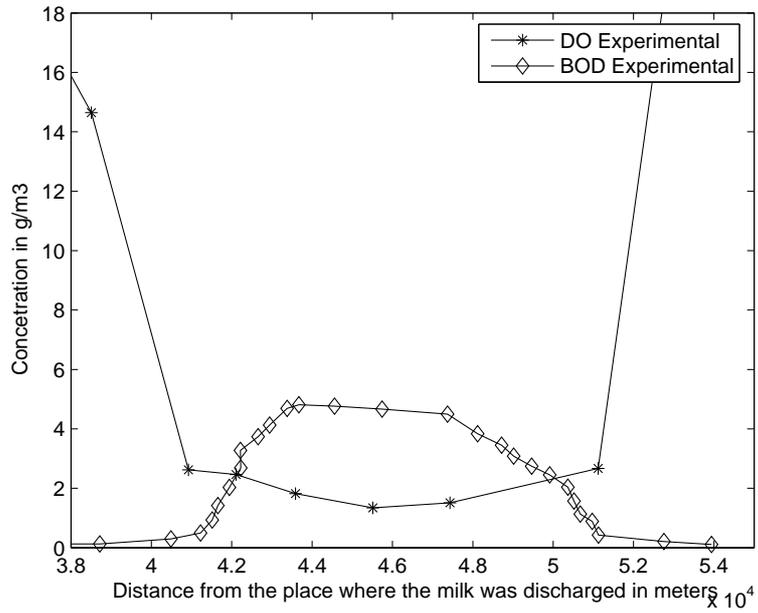


Figure 6: Experimental data for the second section

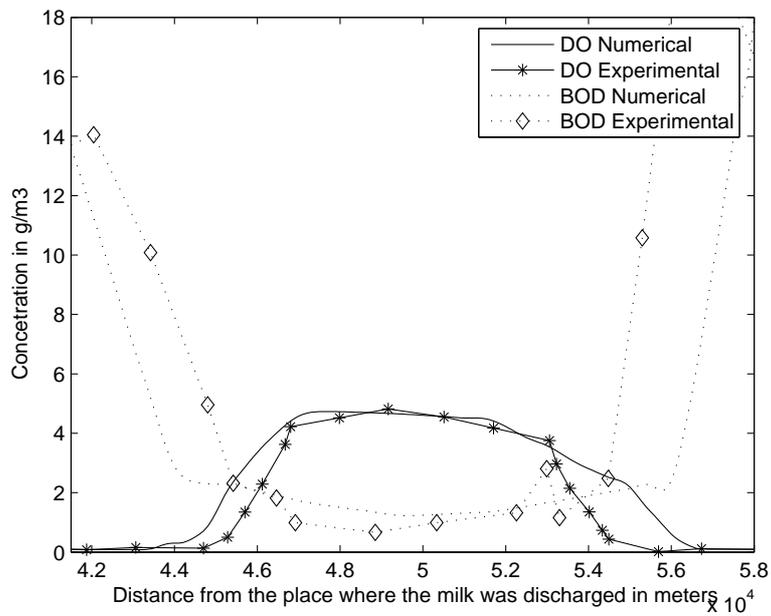


Figure 7: Numerical and experimental data for the last section

the results, but considering that the diffusivity coefficient was taken as constant along the river and always there exists errors associated with the experimental data the CBC algorithm behaved quite well.

The last case show a more realistically application where two species with reaction interact along a real river. For this case is difficult to estimate the CBS algorithm performance alone because the numerical method is influenced by many other parameter that should be calibrated or modeled and moreover there is a error associated with the experimental data collected. The best information provided by this case is the importance of good modeling for the decays coefficients and the right representation of the river domain and velocity as well as the measured data.

## 6. Acknowledgements

This section, if existing, shall appear before the references list.

## 7. References

- Adey, R. A. and Brebbia, C. A., 1974, Finite element solution of effluent dispersion, “Numerical Methods in Fluids Mechanics”, pp. 325–354.
- Codina, R. and Zienkiewicz, O. C., 2002, CBS versus GLS stabilization of the incompressible Navier-Stokes equations and the role of the time step as stabilization parameter, “Communications in numerical methods in engineering”, Vol. 18, No. 2, pp. 22–112.
- Fischer, P., Croucher, A., and OSullivan, M., 1998, Numerical Methods for Contaminant Transport in Rivers and Estuaries, “Computers and Fluids”, Vol. 27, No. 8, pp. 861–878.
- French, R. H., 1986, “Open-Channel Hydraulics”, McGraw-Hill International Editions.
- Hughes, T. J. R., 1987, “The Finite Element Method”, Prendice-Hall, Inc. USA.
- Lax, P. and Wendroff, B., 1960, Systems of conservative laws, “Comm. Pure Appl Math”, p. 1960.
- Löhner, R., Morgan, K., and Zienkiewicz, O. C., 1984, The solution of non-linear hyperbolic equation systems by the finite element method, “Int. J. Num Meth Fluids”, pp. 1043–63.
- Löhner, R., Morgan, K., and Zienkiewicz, O. C., 1985, An adaptive finite element procedure for compressible high speed flows, “Comp. Meth Appl. Mech. Eng.”, , No. 51, pp. 441–461.
- Manson, J. R., Wallis, S. G., and Wang, D., 2000, A conservative, semi-lagrangian fate and transport model for fluvial systems - II numerical testing and practical applications, “Water Resource”, pp. 3778–3785.
- McBride, G. B. and Rutherford, J. C., 1984, Accurate Modeling of River Pollutant Transport, “Journal of Environmental Engineering”, Vol. 10, pp. 808–827.
- O. C. Zienkiewicz, P. Nithiarasu, R. C. and Vázquez, M., 1999, The Characteristic Based Split procedure: An efficient and accurate algorithm for fluid problems, “Int. J. Num Meth. Fluids”, Vol. 31, pp. 359–392.
- O. C. Zienkiewicz, R. T., 2000a, “The Finite Element Method: Basics”, Vol. 1, Butterworth-Heinemann, Linacre House, Jordan Hill, Oxford OX2 8DP.
- O. C. Zienkiewicz, R. T., 2000b, “The Finite Element Method: Fluid Dynamics”, Vol. 3, Butterworth-Heinemann, Linacre House, Jordan Hill, Oxford OX2 8DP.
- Porto, R. L. L., 1991, “Hidrologia Ambiental”, Coleção ABRH de Recursos Hídricos.
- Reddy, J. N., 1985, “An Introduction to the Finite Element Method”, McGraw-Hill.

## A REVIEW ON THE MODELLING OF POLLUTANTS DISPERSION IN STREET CANYONS

**Janaína Ferreira Batista Leal**

EEL-USP, Rodovia Lorena-Itajubá Km 74.5, Lorena – SP 12600-970  
[janaina@debas.faequil.br](mailto:janaina@debas.faequil.br)

**Jurandir Itizo Yanagihara**

Poli-USP, Av. Prof. Mello Moraes 2231, São Paulo – SP 05586-060  
[jiy@usp.br](mailto:jiy@usp.br)

**Abstract.** *Despite significant improvements in fuel and engine technology, present day urban environments are mostly dominated by traffic emissions, representing a serious hazard for human health. The pollutants are carried by the wind towards the buildings and their dispersion depends on a number of parameters, such as the building geometry, street dimension, thermal stratification, plume buoyancy, vegetation or landscape and surface roughness. Since this kind of flow is complex, many experimental and numerical works have been carried out to clarify the dispersion mechanisms and to predict the amount of pollutant dispersed. The objective of the present paper is to review the relevant bibliographical information on modelling of pollutant dispersion in street canyons and present some possible improvements on the models for future studies. The majority of the flow field studies are steady-state simulations of the turbulent field based on the  $k-\epsilon$  model and its variations (RNG and realizable) for different geometries and boundary conditions. There is also a growing interest on the effect of thermal stratification and non-steady effects, although the latter implies in larger computational cost. Finally, some commentaries toward a model for the simulation of pollutant dispersion in a typical street canyon of Sao Paulo city are addressed.*

**Keywords:** *Street canyon, pollutant dispersion, turbulence modelling*

### 1. The problem of dispersion of pollutants in street canyons

In urban environments, especially in areas where the population density and traffic of vehicles are relatively high, an increase of the atmospheric pollution is observed. Examples of these sites are the so-called “street canyons”, found in the downtown areas of the big cities. This term is frequently utilized for the urban streets with buildings on both sides, where high pollutant concentrations can be found. Air pollutants related to the traffic are carbon monoxide (CO), nitrogen oxides (NO<sub>x</sub>), hydrocarbons and particles, besides sulphur and its combinations. Some pollutants burden immediate impact on the human health, such as the carbon monoxide (CO), a suffocating and odorless gas, extremely harmless, mainly in high concentrations. The nitrogen oxides (NO<sub>x</sub>) are a mixture of NO (nitric oxide) and NO<sub>2</sub> (nitrogen dioxide). The nitric oxide combined with oxygen makes the nitrogen dioxide (NO<sub>2</sub>) which is much more hazardous than the NO. Its toxicity is approximately four times higher than the one of the NO, causing illnesses such as pneumonia and bronchitis. Concerning the hydrocarbons, a large amount of them is released through vehicle motors via incomplete combustion and chemical reactions which produce components such as benzene, toluene, ethane, ethylene, pentane, etc. The benzene, for instance, shows cumulative effect on the health and may lead to cancer. The particulate matters are emitted principally by motors using diesel and gasoline. Therein, it is extremely relevant to develop models that can predict pollution levels in urban environments such as street canyons. Parameters directly and indirectly related to the problem must be investigated, aiming the preservation of the air quality standard, and consequently, of the human health.

According to Vardoulakis et al. (2003), the expression street canyon has also been used as a broader definition, including urban streets that do not necessarily have contiguous buildings on both sides, but have some openings in one side of the street. The dimensions of the street canyon can be expressed through the aspect ratio which is defined as the canyon height (H) divided by the width (W). Thus, a *regular canyon* will be found for an (H/W) aspect ratio approximately equal to 1 and without opening on the walls. A wider canyon may have an aspect ratio below 0.5, also called *avenue canyon*, and a *deep canyon* may present an aspect ratio equal to 2. Besides this parameter it is possible to have a canyon length (L) that identifies it as a *short canyon* for values  $L/H \approx 3$ , *medium canyon* for values of  $L/H \approx 5$  and for *long canyons* values of  $L/H \approx 7$ . Concerning the height of the buildings, it can be found *symmetric* or *even street canyons*, for buildings approximately the same height and *asymmetric* with significant differences among the buildings.

It should be made a distinction between the *synoptic* wind flow (free-stream velocity) that is related to the wind conditions above the top of the roof and the *local* wind flow within the canyon cavity. From the type of synoptic wind it is possible to identify three main conditions for dispersion:

- low wind conditions, for synoptic winds inferior to 1.5 m/s;
- perpendicular or almost perpendicular flow, for synoptic winds above 1.5 m/s blowing in angle superior to 30° with respect to the canyon axis;

- parallel or almost parallel flow, for winds superior to 1.5 m/s blowing from all directions.

When a perpendicular airstream flow, with respect to the canyon axis, is found, the up-wind side of the canyon is usually called *leeward*, and the downwind is called *windward*, as it can be seen in Fig. 1 (Dabberdt et al., 1973). When the airstream flow above the roof is perpendicular to the canyon and the wind velocity higher than 1.5 to 2 m/s, the flow can be divided in three basic regimes according to Oke (1988). The Fig. 2 shows these regimes. The first regime is the *isolated roughness flow*, found in wide canyons ( $H/W < 0.3$ ), where the buildings are distant from each other and the airstream flow goes through a downwind distance sufficient enough to get to the posterior building. If the buildings are closer ( $H/W \approx 0.5$ ), the airstream flow experiences some perturbation due to the insufficient distance to self-readjust before reaching the downwind building; this regime is called *wake interference flow*. In the case of the regular canyons ( $H/W \approx 1$ ), the bulk of the synoptic flow skims over the canyon producing the *skimming flow*. This regime is characterized by the circulation of a vortex within the canyon (Hunter et al., 1992 and Vardoulakis et al., 2003).

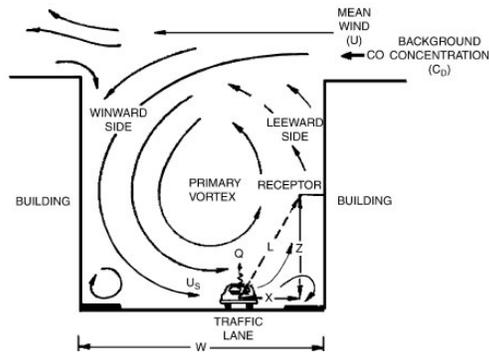


Figure 1. Pollutant Dispersion in a Regular Street Canyon (Dabberdt et al., 1973).

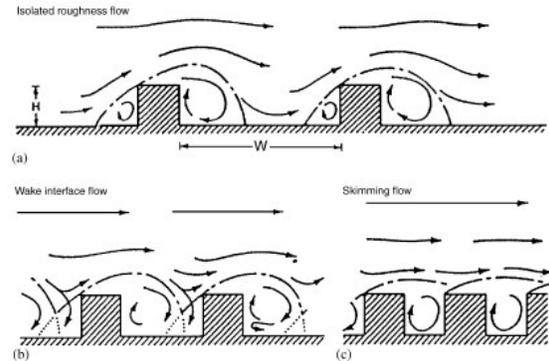


Figure 2. Perpendicular flow regimes in urban canyons for different aspect ratios (Oke, 1998).

The dispersion of pollutants on the street canyons depends on factors such as geometry of the building (height, width and roof shape), street dimensions (breadth and width), environmental conditions (wind velocity and direction), thermal stratification (thermal isolation and orientation of the sun, building and street thermal capacity), plume buoyancy, vegetation or landscape and surface roughness, movement of vehicles (size, number and frequency), etc. (Meroney et al., 1996; Gerdes and Olivari, 1999 and Sagrado et al., 2002).

## 2. General vision on empiric and semi-empiric models

According to Vardoulakis et al. (2003), the pollutant dispersion models can be divided in parametric (operational) and numeric. The operational models are divided in empiric and semi-empiric.

### 2.1. Empiric models

These models include statistic models and are very useful, especially for real time predictions and at short term. It can be cited, as examples, the linear stochastics model, the deterministic/stochastics models, the methods of simulation of Monte Carlo, the multivariate regression models and, more recently, the models based on artificial neural networks (ANN) and fuzzy logic theory (FLT) that provide an alternative to the classic and conventional dispersion models. There are few applications of the stochastics models for prediction of vehicle exhaust dispersion (Sharma et al., 2001).

### 2.2. Semi-empiric models

The Gaussian Plume Models are one of the most popular models to estimate pollutant concentration due to their relative simplicity and the possibility of including other parameters. They were designed to simulate punctual sources in open sites, but they can be used in other types of source such as the street canyon. They are widely suitable for scientific and engineering applications. As the main disadvantage, it can be mentioned the application to only few canyons with different configurations and the large number of entries required (Vardoulakis et al., 2003).

The Street model was developed by Johnson et al. (1973) and is usually used as a screening model, with some simplified considerations with respect to initial dispersion and the traffic induced turbulence (Mensink et al., 2006). The leeward and windward sides have specific formulas to concentration calculate, whenever the wind direction is within  $60^\circ$  to its perpendicular axis. When the wind blows in another directions is applied the arithmetic average of formulations (Mensink et al., 2006 and Vardoulakis et al., 2003).

The Operational Street Pollution Model or OSPM (Berkowicz, 1998) evolved from the CPBM (Canyon Plume Box Model) according to Vardoulakis et al. (2003) and it is a semi-empirical model that calculates concentration of pollutants on both sides of a street canyon. In this model is used a Gaussian plume model for the calculation of the direct contribution from the traffic emissions and a box model for provide the recirculation component. A logarithmic relationship is used to the interaction between street and roof-level winds (Vardoulakis et al. 2003). The mechanical turbulence in the street due to the wind and vehicle traffic is included in the model (Mensink et al., 2006 and Vardoulakis et al., 2003). This model to be used in regulatory applications needs a simplified chemistry algorithm to take into account the transformation of reactive species inside a street canyon as  $\text{NO}_x$  (Vardoulakis et al., 2003).

Mensink and Lewyckj (2001) developed the Street Box model that considers a uniform concentration distribution into a street canyon, with the concept of a turbulent intermittence in the shear flow shed from the upwind roof. The Prandtl-Taylor hypothesis is used for describe the turbulent diffusive flux. The concentrations of benzene, CO and  $\text{NO}_x$  were compared with OSPM model applied in a street canyon in Hannover, it was found a discrepancy of 30% between the predictions of the models (Vardoulakis et al., 2003).

Mensink et al. (2006) compared three semi-empirical street canyon models applied at an urban station in Antwerp (Belgium) to verify the concentration of  $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{PM}_{10}$ , CO and benzene. The authors studied the following models: the Street model, the OSPM model and the Street Box model. These models are convenient for regulatory applications because they do not require larger computational time. The concentration  $C$  ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) inside the canyon was calculated by all models relative to a certain background concentration. The emission input data were derived from an urban traffic emission model and the meteorological data from nearby meteorological towers in Antwerp. A regional air quality model, which is used as reference model for air quality and deposition calculations in Flanders, Belgium was used to provide background concentration values, that is a fast lagrangian trajectory model for long-term simulations. The observations from a monitoring station of same local were used to compare the results of the models, that provided good estimates of the annual averages for the pollutants; OSPM and Street Box were the models that provided the best estimates.

### 3. Experimental studies

A large number of experimental studies on pollutant dispersion in street canyons have been performed for decades. Different modellings and monitoring techniques have been adopted according to the objective. These studies are based on full scale and/or reduce scale measurements.

#### 3.1. Field measurements

Louka et al. (1998) investigated the turbulent airstream flow in the canyons and its coupling with the flow above the roofs. A field experiment was performed in a street canyon formed by two long farm buildings. The authors found out, from the outlet velocity distribution at the level of the roof, that the shape affects significantly the air recirculation in the street canyon, and between the street canyon and the environment air.

Boddy et al. (2005) studied how the background wind flow direction influences the carbon monoxide (CO) dispersion in two street canyons with different geometries in York, England. They found great differences for the wind outflow and dispersion standards when varying the street geometry and the background winds. With the direction of the background winds perpendicular to the street axis, there has been a formation of vertical and horizontal vortices, which may have contributed to the appearance of CO mean concentrations in the leeward side with a factor twice higher than in the windward side. Between the two street canyons analyzed, a difference of around two-fold mean concentrations was observed, being that the two highest mean concentrations were found in narrower street canyons.

Assimakopoulos et al. (2006) analyzed the airstream flow within three typical deep street canyons in Athens with different geometries. The field data were collected during a summertime three consecutive day experimental campaign and compared with the data obtained numerically through the MIMO micro-scale model via tri-dimensional modeling.

Eliasson et al. (2006) performed a long-term field experiment in order to analyze wind fields, temperature, radiation and energy in an urban canyon. The experiment was performed for a street canyon with aspect ratio  $H/W = 2.1$  in Gothenburg, Sweden, during the summer and the fall of 2003. The authors noticed the existence of a single helicoidal vortex for an outflow transversal to the canyon (within  $60^\circ$  orthogonality). It was observed the dependency between the environment outflow direction with respect to the axis along the canyon and the outflow profile within and above the canyon. They also verified, in the building windward side, higher values of turbulent kinetic energy and vertical mixture.

Tsai and Chen (2004) carried out measurements of the pollutants: carbon monoxide, nitrogen oxides and sulphur dioxides and traffic outflow rates according to the type of vehicles circulating in a street in the city of Fung-Shan, capital of Kaoshiung county, Taiwan. The authors used a tri-dimensional scheme through RNG  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model with the finite volume method and compared the numerical data with the field data. It was used a street canyon with aspect ratio  $H/W = 0.8$  and the relation between the canyon length and width equal to 3. The authors noticed that the pollutant concentration becomes smaller as the heights increases and higher in the leeward side than in the windward

side. Yet, it was noticed that the motorcycles contribute most for the pollutant emissions, followed by the automobiles and the vehicles that use diesel.

### 3.2 Wind tunnel measurements

Gerdes and Olivari (1999) investigated the pollutant dispersion in two-dimensional street canyons simulated in a wind tunnel to the models “open country” and “urban roughness”. The parameters investigated were: the landscape upstream of the canyon, the ratio between the heights of the upstream and downstream canyons walls, and the spacing between the canyon walls. In Sagrado et al. (2002) it is studied the pollutant dispersion numerical and experimentally in a two-dimensional street canyon. The experimental part was performed in the wind tunnel of the Von Karman Institute and the numerical modeling was made by the FLUENT 5.2 code, with the  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model, presenting a good concordance with the experimental results. The authors varied the downstream building height and considered the cases of isolated street canyon or open country configuration, where there is no other close building and the case of non-isolated street canyon configuration, where a third building is placed in the front part of the street to be studied. The conclusion was that in both cases the airstream flow collides with the first upstream building being separated and accelerated. In the case of isolated street canyon where a pattern of airstream flow with recirculation was noticed, it was also found higher pollutant concentrations, mainly in the right corner for symmetric canyons. In cases of non-isolated street, especially with the downstream buildings 4 and 5 cm taller, it was noticed that there is fresh air admission, lowering the pollutant concentrations.

Pavageau and Schatzmann (1999) examined some turbulence characteristics and field statistics properties of a regular street canyon concentration field through a wind tunnel. The authors presented results referent to the mean concentrations and the variance of fluctuations of the concentration. Kastner and Plate (1999) presented the results of the pollutant concentration profile along the buildings of a street canyon simulated in a wind tunnel. They defined the buildings dimensions and configuration, wind direction and roof geometry as important parameters.

Ahmad et al. (2002) performed studies in wind tunnels on the exhaust dispersion, utilizing sophisticated models that simulate real traffic situations, called MVSM (Model Vehicle Movement System) by the authors. Urban streets with various configurations with variations in the traffic velocity and volume were studied. The results showed pollutants reduction in street canyons surrounded by tall buildings for weak wind conditions considering the turbulence due to the traffic. Seong-Kyu et al. (2004) studied the vehicles dispersion emission through tests realized in a wind tunnel, applying the tracer gas techniques. The leading test parameters were the street canyon aspect ratio (street width/buildings mean height) and the outer wind direction.

Kastner-Klein et al. (2001) investigated the turbulence and mean airstream flow in a wind tunnel and compared them with full-scale airstream flow measurements in an urban street canyon. The data obtained by the authors suggest airstream acceleration above the roof level. They studied models for one-way and two-way lanes and observed significant differences in the outflow and turbulence patterns.

Uehara et al. (2000) used a stratified wind tunnel to study the atmospheric stability on the urban street canyon airstream flow. The authors varied the atmospheric stability from stable ( $R_b = 0.79$ ) to unstable ( $R_b = -0.21$ ). Airstream outflow and temperature, besides turbulence intensity, shearing tension and heat low distribution were measured. They concluded that, under stable atmospheric conditions, there was a street canyon windward side airstream outflow weakening due to the natural convection.

Chang and Meroney (2001) made a numerical and physical modeling of a tri-dimensional urban street canyon arrangement for pollutant bluff body flow and dispersion analysis. The experimental tests were performed in the Wind Engineering Research Field Laboratory building at Texas Tech University. Visualization, velocity and intensity turbulence profiles, pressure on building surface and dispersion of gas simulating pollutants data were presented.

Ahmad et al. (2005) made a review on wind tunnel simulation studies in street canyons/intersections presenting the effects of some parameters that has influence on flow fields an exhaust dispersion. Kovar-Panskus et al. (2002) conducted an experimental and numerical study to investigate the flow regimes in a street canyon varying the aspect ratio. The experimental part was made in a University of Surrey wind tunnel and numerical analysis was performed with a two-dimensional model using the CHENSI code and a standard  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulent model.

### 4. Numerical models for pollutant dispersion in isothermal conditions

The CFD (Computational Fluid Dynamics) modelling is applied to the study of systems that involves fluid flow, heat transfer, pollutant dispersion and other associated phenomena (chemical reactions, for instance) utilizing numerical methods. The CFD numerical models use the Eulerian approach and present great capacity in dealing with more complex geometries and different contour conditions, being able to reproduce all the outflow field and pollutant dispersions for any street canyon configurations. They are based on the numerical solution of the governing equations on fluid outflow and dispersion derived from the mass conservation equation (continuity), momentum conservation equation (Navier-Stokes) and the pollutants concentration equation, as shown below.

Continuity equation:

$$\frac{\partial U_i}{\partial x_i} = 0 \quad (1)$$

Momentum equation:

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (U_i U_j) = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \nu \frac{\partial U_i}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial x_i} (-\overline{u'_i u'_j}) \quad (2)$$

where  $U$  is the mean velocity,  $u'$  is the velocity fluctuation,  $P$  is the mean pressure and  $\nu$  is the kinematic viscosity.

For the treatment of the atmospheric turbulence process it should be adopted the turbulent models that are classified in two general categories: classic models based on Reynolds Averaged Navier-Stokes (RANS) flow equations and Large Eddy Simulation (LES) models. For the development of the numerical studies based on Reynolds Averaged Navier-Stokes (RANS) flow equations, the turbulence pattern  $\kappa$ - $\epsilon$  models and modified models as, for instance, the RNG  $\kappa$ - $\epsilon$  (Renormalization Group) model and the  $\kappa$ - $\epsilon$  realizable model can be coupled.

The momentum equations include turbulent fluxes  $-\overline{u'_i u'_j}$  which are modelled using the Boussinesq hypothesis so that Reynolds stresses can be linked to the mean rates of deformation

$$-\overline{u'_i u'_j} = \nu_t \left( \frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) - \frac{2}{3} k \delta_{ij} \quad \delta_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{for } i = j \\ 0 & \text{for } i \neq j \end{cases} \quad (3)$$

where  $\nu_t$  is the eddy viscosity (or turbulent viscosity),  $k$  the kinetic energy and  $\delta_{ij}$  the Kronecker delta.

The eddy viscosity  $\nu_t$  is related to the turbulent kinetic energy  $k$  and its rate of dissipation  $\epsilon$ . The eddy viscosity is modelled by Eq. (4):

$$\nu_t = C_\mu \frac{k^2}{\epsilon} \quad (4)$$

where  $C_\mu$  is a constant.

Two additional conservation equations must be solved: one for the turbulent kinetic energy  $k$  and other for its rate of dissipation  $\epsilon$ . In Eq. (5) the last two terms represents the turbulent kinetic energy rates of production and destruction, respectively. The same can be said about Eq. (6) for the kinetic energy dissipation  $\epsilon$ .

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (U_i k) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \nu + \frac{\nu_t}{\sigma_k} \frac{\partial k}{\partial x_i} \right) + P_k - \epsilon \quad (5)$$

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (U_i \epsilon) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \nu + \frac{\nu_t}{\sigma_\epsilon} \frac{\partial \epsilon}{\partial x_i} \right) + C_{1\epsilon} \frac{\epsilon}{k} P_k - C_{2\epsilon} \frac{\epsilon^2}{k} \quad (6)$$

where  $P_k$  is the rate of production of kinetic energy, and  $\sigma_k$ ,  $\sigma_\epsilon$ ,  $C_{1\epsilon}$  and  $C_{2\epsilon}$  are constants of the standard  $k$ - $\epsilon$  model. The rate of production of turbulent kinetic energy is calculated by Eq. (7).

$$P_k = \nu_t \frac{\partial U_i}{\partial x_j} \left( \frac{\partial U_i}{\partial x_j} + \frac{\partial U_j}{\partial x_i} \right) \quad (7)$$

The species (pollutants) transport equation is

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (U_i C) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( D \frac{\partial C}{\partial x_i} - \overline{u'_i c'} \right) \quad (8)$$

where  $C$  is the mean concentration,  $c'$  is the fluctuation of concentration and  $D$  is the molecular diffusion.

The modelling of the last term of Eq. (8) is done by considering that the transport of the scalar  $C$  is proportional to its gradient as indicated by Eq. (9). In Eq. (9) the molecular diffusion term presented in Eq. (8) is ignored since the turbulent diffusion term is predominant.

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(U_i C) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \frac{v_i}{\sigma_C} \frac{\partial C}{\partial x_i} \right) \quad (9)$$

There are various commercial CFD codes that have been widely used in street canyon applications and among them it can be mentioned PHOENICS, FLUENT, STAR-CD, CFX-TASC-flow and Fluidin-PANACHE.

#### 4.1 Two-dimensional numerical models

Xie Xiaomin et al. (2006) utilized a  $\kappa$ - $\epsilon$  pattern turbulence model to examine the impact of an urban street configuration on the atmospheric environment and validated their results with the Meroney et al. (1996) wind tunnel data and Sini et al. (1996) and Jeong and Andrews (2002) simulated results. The authors studied the impact on the layout of a street canyon on the local atmospheric environment. Different street configurations were studied where there was a variation of aspect ratio (height of building leeward/street width) and another aspect ratio defined as the rate between the height of building leeward and the height of the building windward. The authors, taking into account the geometric parameters, defined three airstream flow regimens which characterize the vortices and the dispersion of the pollutants. It was noticed that according to the type of airstream flow in the canyon and the exchange between the canyon and the air above the roof, large variations in pollutant transport and diffusion were found. It was also concluded that there is strong influence of the street layout over the wind area and the diffusion of pollutants that depend mainly on the vortex structure.

Nazridoust and Ahmadi (2006) studied the gas dispersion and particles exhaust emissions in different two-dimensional street canyons, analyzing geometrical aspects and the wind velocity. The authors also studied particles deposits, verifying a reduction connected to a wind velocity increase. The analysis was performed mostly through stress turbulence models and other turbulence model predictions were also analyzed, presenting a favorable conformity between the models simulated and available wind tunnel data.

Li et al. (2005) studied the air exchange rate (ACH) for street canyons idealized with the use of two-dimensional renormalized-group (RNG)  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model. This model validation was based on comparisons with other models (large eddy simulations, LES and  $\kappa$ - $\epsilon$ ) and wind tunnel results. The ACH estimates for street canyons with different aspect ratios (building height/street width) presented good consonance with the ones estimated by the LES model, and utilized less computational time and computer resources.

Xie et al. (2005c) provided a numerical simulation of the vehicle exhaust emissions in an urban environment street canyon comparing three turbulence models: standard, RNG and Chan-Kim  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model. The numerical results were validated with wind tunnel experimental data of the Meteorological Institute of Hamburg University, Germany. The studies show the impact of the configuration of the building in a street canyon with a different roof shape performed for a bi-dimensional simulation and different combinations of buildings on the quality of the air. The two-dimensional results show that the vortex configuration inside the street canyon and the characteristics of dispersion of pollutants endure a huge influence of the roof shape and environment building arrangement.

Lien et al. (2004) presented a numerical simulation of the irregular outflow through and over a two-dimensional set of street canyons with rectangular buildings. The steady-state Reynolds-averaged Navier-Stokes equations were used and, for the Reynolds tensions, the linear and non-linear turbulent viscosity were used. The authors employed a high Reynolds number formulation for the  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model closure to determine the turbulent viscosity. The wall contour conditions were based on an approximated standard wall function. The authors compared four different turbulence models and concluded that their results presented good qualitative and quantitative concordance with experimental wind tunnel data. Nevertheless, the  $\kappa$ - $\epsilon$  non-linear model presented a better performance among the models studied.

Chan et al. (2002) investigated the fluid outflow and the pollutant dispersion in a street canyon isolated utilizing a two-dimensional model based on Reynolds averaged Navier-Stokes equations associated to the standard  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model, Renormalization Group (RNG) and realizable  $\kappa$ - $\epsilon$ . The code used was the FLUENT and the model validated by the comparison with the Meroney et al. (1996) wind tunnel data of the Meteorological Institute of Hamburg University, Germany. The  $\kappa$ - $\epsilon$  RNG model revealed to be the best among the model studied. The measured and estimated non-dimensional pollutant concentrations showed to be less dependent on the wind velocity variation and source strength conditions for the regular street canyon. On the other hand, the influence of the street canyon configuration was significant on the pollutant dispersion. The vortices generated by the fluid outflow transport the pollutants from the source to the walls. The non-dimensional pollutant concentrations on the leeward side decrease exponentially from the bottom of the building upstream, being that on the windward side the pollutant concentrations are almost constant along the height of the downstream building. It is noticed that the pollutant concentrations appear more in the leeward side than in the windward side due to the transportation of pollutants by the vortices circulation. According to the authors

definition, for a regular street canyon (aspect ratio  $W/H = 1$ ) the circulation of a rotating vortex is noticed, for  $H/W = 4$  it was noticed the circulation of two co-rotating vortices and for  $H/W = 1/3$  it was noticed the circulation of two counter-rotating vortices. These vortex circulations lead to different pollutant concentration distributions in the buildings under different street canyon configurations.

Sini et al. (1996) studied the outflows and pollutant vertical exchanges in a two-dimensional street canyon with the use of the  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model and the CHENSI code. They observed the outflow separation in three regimes, according to described by Oke (1988) and also detailed such regimes considering the aspect ratio influence and the recirculation outflow structure in the street canyon. The authors verified how the vertical change rates are influenced by vortex number and structure.

Assimakopoulos et al. (2003) studied numerically the pollutant dispersion in street canyons with different geometric configurations and building heights through the two-dimensional microscale model MIMO. The numeric results were validated with data from experiments in two-dimensional wind tunnel for the configurations of square street canyon and deep street canyon. In this study, the aspect ratio  $H/W = 1$  was used for the square canyon and the relation  $W/H = 1/2$  was used for the deep street canyon. Yet, considering asymmetric buildings the authors defined the terms “step-up notch” configuration, where the upwind building is lower than the downwind building, and “the step-down notch” which represents just the opposite configuration. The authors concluded that there is a strong influence of the street geometry over the airstream flow field and over the pollution dispersion standards. Depending on the building geometry pollutant concentrations can be found in different sites. In the case of the square canyon a higher concentration of pollutants in the upwind building lower corner was noticed, with an increase of 27% from the top to lower corner of the upwind building wall. In the step-up notch, the pollution levels in the canyon were reduced. In the step-down notch configuration the pollution levels increased in both sides of the building. In the symmetric deep canyon it was noticed twice the pollutants concentration found in the square canyon. The interaction between the airstream flow inside and above the canyon was more intense for the wide streets than for the narrow ones. It is noticed that the wider streets present good pollutant dispersion conditions.

Baik and Kim (1999) studied an urban street canyon with a two-dimensional numerical model using the  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulent closure scheme to analyze the flow and pollutant dispersion. It was observed that with the increase of aspect ratio, the number of vortices also increases. Close to the windward side, the wind shears has more intensity causing higher turbulent kinetic energy. It was found a critical value of the ambient wind speed, the distribution pattern of vortices is the same to values higher than this critical point.

Huang et al. (2000) developed a two-dimensional air quality numerical model to predict the pollutant concentration within a street canyon using a  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulent model. The numerical results were compared with data from a set of street canyon air tracer experiments showing good agreement. A detailed study has been done where the height of the buildings and the wind direction was changed. It was observed a higher dilution of the pollutants considering cases of street canyons with lower height, with step down configuration, higher wind speed and inflow wind direction towards the street. Leidl and Meroney (1997) studied the effect of changing source design and source emission rate on the flow field and pollutant dispersion in a street canyon. The numerical study was carried using the FLUENT code with the turbulence standard  $\kappa$ - $\epsilon$  model and the RNG turbulence model. The two-dimensional and three-dimensional numerical simulations were compared with the results from wind tunnel experiments conducted by Rafailidis et al. (1995).

## 4.2 Three-dimensional numerical models

Xie et al. (2005c) performed two-dimensional calculations and a second set of calculations showing a tri-dimensional simulation in order to investigate the influence of the building geometry on the pollutant dispersion. In the 3-D simulation, the influence of the geometry of the building on the dispersion of pollutants was investigated and the results obtained were much in accordance with the results from the wind tunnel experiments (Rafailidis and Schatzmann, 1995) and with the conclusions from the 2D simulations.

Kim and Baik (2004) used a three-dimensional model and investigated the effects of the surrounding wind direction on the airstream flow and pollutant dispersion around a group of buildings. The authors identified three patterns of airstream flow, with different characteristics of circulation of the mean airstream flow according to the surrounding wind direction in the street canyons. It was noticed that when the incident wind angle is  $45^\circ$ , the airstream flow is diagonally symmetric in the back of the upwind building. The study shows that when the wind angle of incidence increases, the pollutants become confined by the vortex portal with high local concentrations, except when the wind is perpendicular to the buildings. When the wind is perpendicular, the pollutants are transported to both sides verges of the street canyon through the outward airstream flow which is prevalent when close to the end of the street and the pollutants escape from the street canyon. The study demonstrates the change in the pollutants spatial distribution, consequence of the big differences in the circulation of the mean airstream flow due to the wind direction variation.

Chan et al. (2001) analyzed the pollutant dispersion for a tri-dimensional street canyon through a  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model. The numerical code used was CFX-5, with the use of tetrahedral finite elements. The results were compared with the wind tunnel data (Uehara et al. 2000, Pavageau and Schatzmann, 1999 and Theurer, 1999). It could be noticed that the pollutant transport and diffusion are strongly dependent on the type of airstream flow in the canyon and on the exchange between the canyon and the air above the roof. The authors identified the critical street canyon configurations

with high pollutant concentrations, delivering some considerations for the urban planning: to avoid building height and canyon width and length uniformity. Wider canyons provide better pollutant diffusion: the source position is not important and the concentrations are higher in the leeward wall foundation. Chan et al. (2003) studied the pollutant airstream flow and dispersion area for different geometries of building sets, considering a three-dimensional street canyon localized within this set, with a  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model. The authors observed that the airstream flow and the pollutants dispersion are greatly influenced by the geometrical configurations, and that the results may be different from the ones obtained for a single street canyon.

Leitl and Meroney (1997) performed calculations for a simplified three-dimensional street canyon to investigate the presence of secondary flow patterns found in the physical model and it was observed a good agreement between the calculated velocity components and measured in the wind tunnel. Hunter et al. (1992) studied a three-dimensional flow within an urban canyon with a  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model to identify the main parameters that are relevant to the transition between the flow regimes for synoptic winds perpendicular to the street axis. The change from skimming to wake interference is much important, because the skimming flow is relatively ineffective in removing pollutants, heat and moisture. The studies of Chang and Meroney (2001), Tsai e Chen (2004) and Assimakopoulos et al. (2006), discussed in the previous section, also present numerical results for three-dimensional modelling.

## 5. Numerical models of pollutant dispersion including thermal effects

The study of thermal effects such as building surface or street-canyon bottom heating has a great importance in determining flow pattern and pollutant dispersion in street canyons. The density is a function of temperature for incompressible turbulent inert flow. In the cases where it is considered the heating of building walls and bottom, the air density changes due to the air temperature increase. The buoyancy forces induce the air motion and these forces are added in the momentum conservation equation. Adopting the Boussinesq approximation, it is assumed that the density and the other physical parameters do not change except for the density in the buoyancy forces term, as shown below,

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (U_i U_j) = \left( \frac{\rho - \rho_n}{\rho_n} \right) g_j - \frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \nu \frac{\partial U_i}{\partial x_i} \right) + \frac{\partial}{\partial x_i} \left( -\overline{u_i' u_j'} \right) \quad (10)$$

where  $g_j$  is the components of the gravitational acceleration,  $\rho$  is the fluid density and  $\rho_n$  is the reference density.

The density deviation  $\rho - \rho_n$  is related to the temperature through the following linear equation of state:

$$\frac{\rho - \rho_n}{\rho_n} = -\beta (\Theta - \Theta_n) \quad (11)$$

where  $\Theta$  is the mean temperature and  $\beta$  is thermal expansion coefficient.

The turbulence production due to the buoyancy effect is included in the momentum transport modelling.

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (U_i k) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \nu + \frac{\nu_t}{\sigma_k} \frac{\partial k}{\partial x_i} \right) + P_k - \epsilon - \beta g_j \overline{u_i \theta} \quad (12)$$

$$\frac{\partial}{\partial x_i} (U_i \epsilon) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \nu + \frac{\nu_t}{\sigma_\epsilon} \frac{\partial \epsilon}{\partial x_i} \right) + C_{1\epsilon} \frac{\epsilon}{k} (P_k - \beta g_j \overline{u_j \theta}) - C_{2\epsilon} \frac{\epsilon^2}{k} \quad (13)$$

$$-\overline{u_i \theta} = K_t \frac{\partial \Theta}{\partial x_i} \quad (14)$$

$\overline{u_i \theta}$  is the turbulent heat flux and  $K_t$  is the turbulent diffusivity coefficient.

The energy equation (Eq. 15) takes into account the thermal effects, allowing the calculation of the temperature field.

$$\frac{\partial (U_i \Theta)}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i} \left( K_t \frac{\partial \Theta}{\partial x_i} \right) \quad (15)$$

Various research works presented in this section are based on configurations similar to that shown in Fig. 3.

Nakamura and Oke (1988) considered measurements of air temperature and the time evolution of temperature, airflow and stability in a street canyon. The authors show that, depending on the hour of the day, the direction of the vortex varies with the sunshine conditions. According to Sini et al (1996) the canyon geometry and the differential heating of the wall of the buildings in a street canyon influence the in-street flow and the diffusion process. Sini et al. (1996) simulated a street canyon with aspect ratio  $W/H = 0.89$  and three sunlit wall configurations, with the temperature of the surfaces (ground, leeward and windward)  $5^\circ\text{C}$  warmer than the incoming flow, and the neutral upwind atmospheric thermal stratification. In the cases of warm ground or leeward wall, the flow structure is quite similar to the isothermal case, although the intensity of the only vortex is increased by the action of dynamics and thermal buoyancy, generating a net increase in the vertical exchanges. When the windward wall is heated, the buoyancy flux tends to oppose the recirculation motion, dividing the vortex and resulting in a change of the flow regime from the one vortex skimming flow to multi-vortex skimming flow, generating a large reduction of the vertical exchanges. For the modelling it was used the Boussinesq assumption with the Reynolds-averaged Navier-Stokes equations, solved using the CHENSI code.

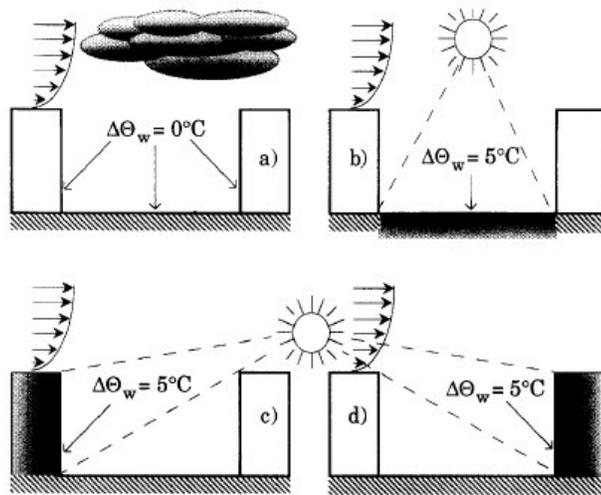


Figure 3. The sunlit wall configurations (Sini et al., 1996).

Xie et al (2005b) evaluated the effect of solar radiation on the airflow and the dispersion within street canyons for different configurations. It was investigated the symmetrical, step up notch and step down notch configurations with the temperature difference between the surfaces and ambient air of  $10^\circ\text{C}$ . The authors observed that the street geometry has a strong influence on the wind field and pollutant dispersion patterns. The heating from surfaces of the street canyons that receive solar radiation leads to an upsurge in a strong buoyancy flow close to the wall or the ground, leading to a combined thermally and mechanically induced flow that affects the flow structure and the pollutant dispersion in the canyon. The numerical results were compared with the wind-tunnel data of Uehara et al (2000). Xie et al. (2005a) examined the influence of the thermal effects on vehicles emission dispersion in street canyons. It was used a two-dimensional street canyon with the aspect ratio  $H/W = 1$ . The authors showed the flows and concentration profiles for different wind speeds and temperatures ranges. The relative influence of the effects of the thermal radiation on the flow was estimated by parameter  $Gr/Re^2$ . For  $Gr/Re^2 = 1$  the flow is induced by thermal and mechanical effects, for  $Gr/Re^2 < 1$  the thermal effects can be ignored. Fixing the street geometry, the parameter  $Gr/Re^2$  varies with the temperature difference and wind speed. Low wind conditions and large temperature differences cause large thermal effects.

Kim and Baik (1999) studied the thermal effects on the flow and pollutant dispersion in urban street canyons with the aspect ratio ( $H/W$ ) varying from 0.5 to 3. It was used a non-steady two-dimensional model with a  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulent closure scheme, where the thermal situations studied were no heating, upwind and downwind building-wall heating and street canyon bottom heating, with the temperature difference between the air and the surfaces of  $5^\circ\text{C}$ . The authors observed the emergence of one vortex regardless of aspect ratio for the case of upwind building-wall heating. They also shown that at the street level the dispersion of pollutants released is quite dependent upon the aspect ratio and the location of the heat source. It was verified that the residue concentration ratio is greatly influenced by the vortex number and intensity in the street canyon. The study indicated that the surfaces (wall and bottom) heating significantly affect flow and dispersion in urban street canyons. Kim and Baik (2001) investigated the flow in street canyons considering the street-bottom heating to various aspect ratios and different heating intensities. It was employed a non-steady two-dimensional numerical model with a  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence closure scheme. The authors identified five flow regimes that are characterized according to the vortex structure and intensity. The numerical results were compared with the wind-tunnel data of Uehara et al. (2000) showing a good agreement. Kim and Baik (2005) used a circulating water

channel to study experimentally the effects of street bottom heating and inflow turbulence on the flow of a regular street canyon, which produced a canyon vortex with higher intensity.

Moussiopoulos et al. (2005) described numerically the influence walls heating and building shading on the flow and dispersion of pollutant in a street canyon. The model MIMO was used with an introduction of a heating module and the results were compared with the code CFX-TASC flow. Tsai et al. (2005) investigated numerically the thermal effects on airflow and dispersion of pollutants in a street canyon with an aspect ratio of 0.8 and a length-to-width ratio of 3 using a three-dimensional modelling. The authors used the RNG  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulence model and one of the observations was that with the increase of heating condition the pollutant concentration decreases. Liu et al. (2003) studied experimentally non-symmetrical street-canyons using a water tank to observe the convection flow induced by bottom heating and the effects of the ambient wind on the flow. In a wide street canyon, it was verified more than two vortices induced by convection; in a narrow street canyon it was observed only one vortex.

## 6. Toward the modelling of pollutant dispersion in a street canyon of São Paulo city

According to studies of the Experimental Atmospheric Pollution Laboratory of the Faculty of Medicine of the University of São Paulo, the atmospheric pollution in São Paulo city is responsible, indirectly, by the death of eight people per day, in average. Yet, according to the researches, the inhabitants of the city have diminished the life expectation in two years for they live in polluted places. Among the most common health problems resulting from the inhalation of pollutants, it can be mentioned the pneumonia, infarct of the myocardium and emphysema especially in older people. According to the CEInfo (Coordination of Epidemiology and Information), Health Municipal Office, pneumonia was the third main cause of death in 2004. The vehicle exhaust gases are the main source of the atmospheric pollutant in São Paulo city, as there are 7 millions cars running in the metropolitan area. Although there are efforts to improve the air quality in the city, such as the Program of Control of Pollution by Automotive Vehicles (PROCONVE), the situation is far from adequate.

The main problems related to the pollutant dispersion in São Paulo city are the topography, which includes valleys, and street canyons that prevent the gases and particulates to dissipate. The thermal inversion phenomenon which occurs during the winter aggravates the situation as the dispersion by wind is severely constrained. Numerical and experimental studies, including field and wind tunnel measurements, are necessary to address this problem. The next steps for this study will include the characterization of a typical street canyon in São Paulo city with high concentration of atmospheric pollutants and the screening of field data to set the boundary conditions. The modified  $\kappa$ - $\epsilon$  turbulent model, proposed by Mello and Yanagihara (2006) for open field atmospheric pollutant dispersion, will be tested along with other major models described herein.



Figure 4. Typical street canyon in São Paulo city



Figure 5. Atmospheric pollutant in São Paulo city

## 7. References

- Ahmad, K., Khare, M. and Chaudhry, K. K., 2002, "Model Vehicle Movement System in Wind Tunnels for Exhaust Dispersion Studies under Various Urban Street Configurations", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, Vol. 90, pp. 1051-1064.
- Ahmad, K., Khare, M. and Chaudhry, K. K., 2005, "Wind Tunnel Simulations Studies on Dispersion at Urban Street Canyons and Intersections – A Review", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, Vol. 93, pp. 697-717.
- Assimakopoulos V. D., Georgakis, C. and Santamouris, M., 2006, "Experimental Validation of a Computational Fluid Dynamics Code to predict the Wind Speed in Street Canyons for Passive Cooling Purposes", *Solar Energy*, Vol. 80, pp. 423-434.
- Assimakopoulos, V. D., ApSimon, H. M. and Moussiopoulos, N., 2003, "A Numerical Study of Atmospheric Pollutant Dispersion in Different Two-Dimensional Street Canyon Configurations", *Atmospheric Environment*, Vol. 37, pp. 4037-4049.
- Baik, J. J and Kim, J.J., 1999, "A Numerical Study of Flow and Pollutant Dispersion Characteristics in Urban Street Canyons", *Journal of Applied Meteorology*, Vol. 38, pp. 1576-1589.
- Berkowicz, R., 1998, "Street Scale Models", In: Fenger, J., Hertel, O., Palmgren, F. (Eds.), *Urban Air Pollution – European Aspects*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, pp. 223-251.
- Boddy, J. W. D., Smalley, R. J., Dixon, N. S., Tate, J. E. and Tomlin, A. S., 2005, "The Spatial Variability in Concentrations of a Traffic-Related Pollutant in Two Street Canyons in York, UK – Part I: The Influence of Background Winds", *Atmospheric Environment*, Vol. 39, pp. 3147-3161.
- Chan, A. T., So, E. S. P. and Samad, S. C., 2001, "Strategic Guidelines for Street Canyon Geometry to achieve Sustainable Street Air Quality", *Atmospheric Environment*, Vol. 35, pp. 5681-5691.
- Chan, A. T., Au, W. T. W. and So, E. S. P., 2003, "Strategic Guidelines for Street Canyon Geometry to achieve Sustainable Street Air Quality- part II: Multiple Canopies and Canyons", *Atmospheric Environment*, Vol. 37, pp. 2761-2772.
- Chang, C. H. and Meroney, R. N., 2001, "Numerical and Physical Modeling of Bluff Body and Dispersion in Urban Street Canyons", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, Vol. 89, pp. 1325-1334.
- Chan, T. L., Dong, G., Leung, C. W., Cheung, C. S. and Hung, W. T., 2002, "Validation of a Two-Dimensional Pollutant Dispersion Model in an Isolated Street Canyon", *Atmospheric Environment*, Vol. 36, pp. 861-872.
- Dabberdt, W. F., Ludwig, F. L., Johnson, W. B., 1973, "Validation and Applications of an Urban Diffusion Model for Vehicular Pollutants", *Atmospheric Environment*, Vol. 7, pp. 603-618.
- Eliasson, I., Offerle, B., Grimmond, C.S.B. and Lindqvist, S., 2006, "Wind Fields and Turbulence Statistics in an Urban Street Canyon", *Atmospheric Environment*, Vol. 40, pp. 1-16.
- Gerdes, F. and Olivari, D., 1999, "Analysis of Pollutant Dispersion in an Urban Street Canyon", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, Vol. 82, pp. 105-124.
- Huang, H., Akutsu, Y., Arai, M. and Tamura, M., 2000, "A two-dimensional Air Quality Model in an Urban Street Canyon: Evaluation and Sensivity Analysis", *Atmospheric Environment*, Vol. 34, pp. 689-698.
- Hunter, L. J., Johnson, G. T. and Watson, I. D., 1992, "An Investigation of Three-Dimensional Characteristics of Flow Regimes within the Urban Canyon", *Atmospheric Environment*, Vol. 26B, No. 4, pp. 425-432.
- Jeong, J. J. and Andrews, M. J., 2002, "Application of the  $\kappa$ - $\epsilon$  Turbulence Model to the High Reynolds Number Skimming Flow Field of an Urban Street Canyon", *Atmospheric Environment*, Vol. 36, pp. 1137-1145.
- Kastner-Klein, P., Fedorovich, E. and Rotach, M. W., 2001, "A Wind Tunnel Study of Organized and Turbulent Air Motions in Urban Street Canyons", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, Vol. 89, pp. 849-861.
- Kastner-Klein, P. and Plate, E. J., 1999, "Wind-Tunnel Study of Concentration Fields in Street Canyons", *Atmospheric Environment*, Vol. 33, pp. 3973-3979.
- Kim, J. J and Baik, J.J., 2004, "A Numerical Study of the Effects of Ambient Wind Direction on Flow and Dispersion in Urban Street Canyons using the RNG  $\kappa$ - $\epsilon$  Turbulence Model", *Atmospheric Environment*, Vol. 38, pp. 3039-3048.
- Kim, J. J. and Baik, J. J., 2005, "Physical Experiments to Investigate the Effects of Street Bottom Heating and Inflow Turbulence on Urban Street-Canyon Flow", *Advances in Atmospheric Sciences*, Vol. 22, pp. 230-237.
- Kim, J. J. and Baik, J. J., 2001, "Urban Street Canyon Flows with Bottom Heating", *Atmospheric Environment*, Vol. 35, pp. 3395-3404.
- Kim, J. J. and Baik, J. J., 1999, "A Numerical Study of Thermal Effects on Flow and Pollutant Dispersion in Urban Street Canyons", *Journal of Applied Meteorology*, Vol. 38, pp. 1249-1261.
- Kovar-Panskus, A., Louka, P., Sini, J. F., Savory, E., Czech, M., Abdelqari, A. and Mestayer, P. G. and Toy, N., 2002, "Influence of Geometry on The Mean Flow within Urban Street Canyons-A Comparison of Wind Tunnel Experiments and Numerical Solutions", *Water, Air, and Soil Pollution*, pp. 365-380.
- Leitl, B. M. and Meroney, R. N., 1997, "Car Exhaust Dispersion in a Street Canyon. Numerical Critique of a Wind Tunnel Experiment", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, pp. 293-304.

- Li, X.-X., Liu, C.-H. and Leung, D. Y. C., 2005, "Development of a  $\kappa$ - $\epsilon$  Model for the Determination of Air Exchange Rates for Street Canyons", *Atmospheric Environment*, Vol. 39, pp. 7285-7296.
- Lien, F. S., Yee, E., and Cheng, Y., 2004, "Simulation of Mean Flow and Turbulence over a 2D Building Array using High-Resolution CFD and a distributed Drag Force Approach", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, Vol. 92, pp. 117-158.
- Liu, H. Z., Liang, B., Zhu, F. R., Zhang, B. Y. and Sang, J. G., 2003, "A Laboratory Model for the Flow in Urban Street Canyons induced by Bottom Heating", *Advances in Atmospheric Sciences*, Vol. 20, pp. 554-564.
- Louka, P., Belcher, S. E. and Harrison, R. G., 1998, "Modified Street Canyon Flow", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, pp. 485-493.
- Mensink, C. and Lewyckj, N., 2001, "A Simple Model for the Assessment of Air Quality in Streets", *International Journal of Vehicle Design*, Vol. 27, pp. 242-250.
- Mensink, C., Lefebvre, F., Janssen, L. and Cornelis, J., 2006, "A Comparison of Three Street Canyon Models with Measurements at an Urban Station in Antwerp, Belgium", *Environmental Modelling & Software*, Vol. 21, pp. 514-519.
- Meroney, R.N., Pavageau, M., Rafailidis, S. and Schatzmann, M., 1996, "Study of Line Source Characteristics for 2D Physical Modeling of Pollutant Dispersion in Street Canyons", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, Vol. 62, pp. 37-56.
- Mello, P.E.B. and Yanagihara, 2006, "Prediction of gas concentration fluctuations and pollutant dispersion in the atmosphere using a numerical model", *Journal of Wind Engineering & Industrial Aerodynamics*, submitted.
- Moussiopoulos, N., Ossanlis, I. and Barmpas, P., 2005, "A Study of Heat Transfer Effects on Air Pollution Dispersion in Street Canyons by Numerical Simulations", *International Journal of Environment and Pollution*, Vol. 25, pp. 131-144.
- Nakamura, Y. and Oke, T. R., 1988, "Wind, Temperature and Stability Conditions in an East-West Oriented Urban Canyon", *Atmospheric Environment*, Vol. 22, pp. 2691-2700.
- Nazridoust, K. and Ahmadi G., 2006 "Airflow and Pollutant Transport in Street Canyons", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, Vol. 94, pp.491-522.
- Oke, T. R., 1988, "Street Design and Urban Canopy Layer Climate", *Energy and Buildings*, Vol. 11, pp. 103-113.
- Park, S.-K., Kim, S.-D. and Lee, H., 2004, "Dispersion Characteristics of Vehicle Emission in an Urban Street Canyon", *Science of The Total Environment*, Vol. 323, pp. 263-271.
- Pavageau, M. and Schatzmann, M., 1999, "Wind Tunnel Measurements of Concentration Fluctuations in an Urban Street Canyon", *Atmospheric Environment*, Vol. 33, pp. 3961-3971.
- Rafailidis, S. and Schatzmann, M., 1995, "Studie on Different Roof Geometries in a Simplified Urban Environment", [http://www.mi.uni-hamburg.de/technische\\_meteorologie/windtunnel/](http://www.mi.uni-hamburg.de/technische_meteorologie/windtunnel/)
- Rafailidis, S., Pavageau, M. and Schatzmann, M., 1995, "Wind Tunnel Simulation of Car Emission Dispersion in Urban Street Canyons", *Annalen der Meteorologie, Deutsche Meteorologische Gesellschaft, Munich*.
- Sagrado, A. P. G., van Beeck, J., Rambaud, P. and Olivari, D., 2002, "Numerical and Experimental Modeling of Pollutant Dispersion in a Street Canyon", *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, Vol 90, pp. 321-339.
- Sharma, P. and Khare, M., 2001, "Modelling of Vehicular Exhausts – a Review", *Transportation Research Part D*, Vol.6, pp. 179-198.
- Sini, J. F., Anquetin, S. and Mestayer, P. G., 1996, "Pollutant dispersion and thermal effects in urban street canyons", *Atmospheric Environment*, Vol. 30, pp. 2659-2677.
- Theurer, W., 1999, "Typical Building Arrangement for Urban Air Pollution Modeling", *Atmospheric Environment*, Vol.33, pp. 4057-4066.
- Tsai, M. Y. and Chen, K. S., 2004, "Measurements and Three-Dimensional Modeling of Air Pollutant Dispersion in an Urban Street Canyon", *Atmospheric Environment*, Vol. 38, pp. 5911-5924.
- Tsai, M. Y., Chen, K. S and Wu, C. H., 2005, "Three-dimensional Modeling Dispersion in an Urban Street of Air Flow and Pollutant Canyon with Thermal Effects", *Journal of the Air & Waste Management Association*, Vol. 55, pp. 1178-1189.
- Uehara, K., Murakami, S., Oikawa, S. and Wakamatsu, S., 2000, "Wind Tunnel Experiments on How Thermal Stratification Affects Flow in and Above Urban Street Canyons", *Atmospheric Environment*, Vol. 34, pp. 1553-1562.
- Vardoulakis, S., Fisher, B. E. A., Pericleous, K. and Gonzales-Flesca, N., 2003, "Modelling Air Quality in Street Canyons: a Review", *Atmospheric Environment*, Vol. 37, pp. 155-182.
- Xie, X., Huang, Z., Wang, J. and Xie, Z., 2005a, "Thermal Effects on Vehicle Emission Dispersion in an Urban Street Canyon", *Transportation Research Part D: Transport and Environment*, Vol. 10, pp. 197-212.
- Xie, X., Huang, Z., Wang, J. and Xie, Z., 2005b, "The Impact of Solar Radiation and Street Layout on Pollutant Dispersion in Street Canyon, *Building and Environment*, Vol. 40, pp. 201-212.
- Xie, X., Huang, Z. and Wang, J., 2005c, "Impact of Building Configuration on Air Quality in Street Canyon", *Atmospheric Environment*, Vol. 39, 4519-4530.
- Xie, X., Huang, Z. and Wang, J., 2006, "The Impact of Urban Street Layout on Local Atmospheric Environment", *Building and Environment*, Vol. 41, pp. 1352-1363.

## ESTUDO NUMÉRICO DO ESCOAMENTO SUPERFICIAL NA FOZ DO RIO MATAPI – COSTA INTERNA ESTUARINA DO AMAPÁ

### **Dr. Alan Cavalcanti da Cunha**

Instituto de Pesquisas Científicas e Tecnológicas do Estado do Amapá – Centro de Pesquisas Aquáticas LABHIDRO/CPAQ/ IEPA. Rodovia JK km 10, Distrito da Fazendinha – Macapá-AP. CEP 68907-190. Prof. Modelagem de Sistemas Ambientais PPGBio/IEPA-UNIFAP-EMBRAPA-CI. E-mail: [alan.cunha@iepa.ap.gov.br](mailto:alan.cunha@iepa.ap.gov.br).

### **PhD. Antônio César Pinho Brasil Júnior**

Universidade de Brasília – UnB, Faculdade de Tecnologia, Departamento de Eng. Mecânica – Laboratório de escoamentos Ambientais. CEP 70910-900. Brasília – DF. E-mail: [brasiljr@unb.br](mailto:brasiljr@unb.br).

### **Msc. José Gustavo Coelho**

Universidade de Brasília – UnB, Faculdade de Tecnologia, Departamento de Eng. Mecânica – Laboratório de escoamentos Ambientais. CEP 70910-900. Brasília – DF. E-mail: [josegustavo@unb.br](mailto:josegustavo@unb.br).

### **Msc. Marcio Sousa**

Instituto de Pesquisas Científicas e Tecnológicas do Estado do Amapá – Centro de Pesquisas Aquáticas DGAS/CPAQ/ IEPA. Rodovia JK km 10, Distrito da Fazendinha – Macapá-AP. CEP 68900-000. E-mail: [marcio.sousa@iepa.ap.gov.br](mailto:marcio.sousa@iepa.ap.gov.br).

### **Grad. Coline Floury.**

Ecole Centrale de Lyon – 69130 Ecully France. E-mail: [coline.floury@ecl2006.ec.lyon.fr](mailto:coline.floury@ecl2006.ec.lyon.fr).

### **Grad. Sidnei Belcides Avelar**

Instituto de Pesquisas Científicas e Tecnológicas do Estado do Amapá – Centro de Pesquisas Aquáticas LABHIDRO/CPAQ/IEPA. Iniciação Científica – CNPq. Rodovia JK km 10, Distrito da Fazendinha – Macapá-AP. CEP 68900-000. e-mail: [sidnei.avelar@iepa.ap.gov.br](mailto:sidnei.avelar@iepa.ap.gov.br).

**Resumo.** No presente trabalho foram realizadas simulações numéricas de escoamento no Rio Matapi, afluente do Rio Amazonas, próximo das cidades de Santana e Macapá. O objetivo geral da pesquisa foi avaliar o comportamento espaço-temporal do escoamento hidrodinâmico e de potenciais fontes poluentes na foz do Rio Matapi em confluência com o Rio Amazonas. Foram simuladas as condições dos escoamentos naturais que variam no tempo tal como aquelas causadas por movimentos de correntes de marés e que influenciam fortemente o comportamento dos constituintes passivos da água. Os principais resultados são as análises do comportamento hidrodinâmico do escoamento em regime transiente em 3D. Campos temporais de velocidade e de concentração de um poluente orgânico foram gerados. As informações podem ser úteis como base para o planejamento nas áreas de engenharia sanitária, saúde pública e disposição de águas residuárias industriais no Distrito Industrial de Santana-AP. A compreensão do fenômeno de dispersão de poluentes tem sido importante para melhor interpretar como algumas áreas críticas da zona estuarina tendem a se autodepurar, dispersando os poluentes da água que podem estar sob risco de contaminação.

**Palavras-chaves:** simulação 3D, escoamento superficial, regime transiente, maré, poluição, Rio Matapi, Rio Amazonas.

## NUMERICAL STUDY OF THE SURFACE FLOW ON MATAPI RIVER MOUTH – INTERNAL AMAPÁ ESTUARINE COAST

**Abstract.** In this work numerical simulation of fluid flow of Matapi River, affluent of the Amazon River, on Amapá State estuarine coast is performed. The general aim of the present research is to study unsteady pollution release and hydrodynamic behavior nearby Santana and Macapá Cities, which are located at the Low Amazon River. Specific aim is to comprehend the spatial and temporal variability of the water quality parameters of the river and the dynamic process that influence the behavior of pollutants dispersion. Volumetric discharge conditions were simulated and can vary on time, such as water movement by tidal currents, and all passive constituents that can interact by dynamical kinetics one with each other. Experimental data such as discharge and water quality parameters are utilized. The field and laboratory parameters were used to support the comparison results and general analysis with simulation. The results of analysis provided useful information sanitary, public health and final pollution disposal planning. The comprehension of the phenomena is important to interpret how the several critical areas of the estuarine zone are being polluted or on risk of pollution.

**Key-words:** 3D simulation, river flows, unsteady river pollution, tidal influence, Matapi River, Amazon River.

## 1. Introdução

Nos sistemas fluviais amazônicos tem sido necessária a busca por um melhor entendimento sobre o comportamento dos processos de assimilação e dispersão de resíduos e efluentes lançados nos recursos hídricos. Tem se constituído um desafio enorme saber lidar com procedimentos de gestão e monitoramento sistemáticos desses corpos de água, principalmente em vista da falta de infra-estrutura de saneamento básico e em função dos elevados níveis de impactos ambientais sofridos pelos recursos hídricos em áreas urbanas, periurbanas e industriais próximas, como é o caso do Rio Matapi (Cunha *et al.*, 2004).

Em se tratando de monitoramento ou controle do lançamento de efluentes urbanos e industriais (áreas de risco de contaminação ambiental, como o Distrito Industrial de Santana) em rios da Amazônia estuarina e sob efeito de maré, há um interesse particular em vista de que a simples presença do mesmo já justificaria a necessidade de se implantar um sistema de controle, monitoramento e fiscalização, com o objetivo de manter certos níveis e padrões da qualidade e quantidade da água, em especial aqueles preestabelecidos por classes dos corpos de água preconizados pelo (Conselho Nacional do Meio Ambiente (Nova Resolução CONAMA 357).

Além disso, o tratamento prévio de esgotos urbanos e de resíduos industriais é um fator fundamental para a conservação dos corpos de água naturais. E na Amazônia este tem sido apontado como um problema sério a ser resolvido, ao mesmo tempo em que se desconhece quase que totalmente as características autodepurativas dos corpos de água nessas regiões. Mesmo em nível de Brasil pouco se tem estudado sobre como se comportam tais resíduos nesses mesmos corpos de água. É mais fácil determinar padrões de lançamento de resíduos do que determinar a capacidade autodepurativa dos corpos de água.

Do ponto de vista teórico e do gerenciamento e controle de poluição dos recursos hídricos, em condições de abundância e uso pouco intensivo da água como no Rio Matapi, são desnecessários maiores cuidados com o controle, tanto em termos de quantidade quanto de qualidade. Mas estudos realizados por Cunha (2003), Cunha *et al.* (2001), têm demonstrado desde então uma significativa alteração da qualidade da água em rios próximos desta área costeira de Macapá e Santana, principalmente quando se adentra rio acima em áreas urbanas e periurbanas próximas (Cunha & Couto, 2002). Portanto, a constatação das ameaças e dos potenciais efeitos antrópicos negativos sobre os corpos de água estudados suscitaram a realização do presente estudo, buscando uma abordagem um tanto quanto simplificada inicialmente para os padrões amazônicos, partindo-se da abordagem e uso da modelagem matemática ou numérica aplicada aos recursos hídricos e escoamentos ambientais, com base em experimentação e monitoramento de algumas variáveis importantes *in loco*.

Das abordagens principais implementadas no presente trabalho de pesquisa, considerou-se uma linha de estudo regida pela **hidrodinâmica e dispersão de poluentes no Rio Matapi**, em especial na zona de influência que limita o Distrito Industrial de Santana, desde sua foz até aproximadamente 7 km acima (Porto do Céu), indicada pela Figura-1:

- a) Abordagem experimental prévia – uso de dados e informações obtidas em campo ou experimentalmente, tais como a quantificação de descarga líquida e de parâmetros da qualidade da água, durante um ciclo de maré (aproximadamente 12,6 horas) em uma seção previamente escolhida – Local denominado de Balsa;
- b) Abordagem da simulação computacional – simulação numérica do processo físico da hidrodinâmica e da dispersão de poluentes no escoamento gerado (passivo ou escalar acoplado ao escoamento).

### 1.1. Objetivo

O objetivo geral da presente pesquisa proposta consiste na utilização de *software* numérico disponível no Laboratório de Energia e Ambiente –LEA/UnB (CFX 5.10 da ANSYS) para simular o escoamento transiente de superfície livre 3D tridimensional, com reação química de um composto orgânico – gasolina (decaimento de primeira ordem), próximo da foz do Rio Matapi em confluência com o Rio Amazonas.

### 1.2. Objetivos Específicos

- Simular as principais características do escoamento do Rio Matapi – AP, aplicando um modelo turbulento – no presente caso o SST (Tensor Shear Stress do CFX) para avaliar o comportamento hidrodinâmico e o comportamento da dispersão de plumas de poluentes, segundo o regime transiente naturais das correntes de marés;
- Analisar o comportamento de descargas líquidas e o comportamento das plumas de poluentes, ambas ao longo de um ciclo de maré (12,6 horas aproximadamente);

- Comparar alguns dos resultados da simulação com os dados e informações disponíveis na literatura e avaliar se o modelo capturou as principais características do escoamento real do Rio Matapi;

## 2. Caracterização Física da Área - Foz do Rio Matapi-AP

O domínio espacial escolhido foi somente o trecho de aproximadamente sete 7 km de extensão a partir da foz do Matapi, mostrado na Figura-1. O Distrito Industria de Santana foi criado em 1982 e está localizado no Município de Santana a seis quilômetros do Porto de Santana e a 14 quilômetros da Capital do Estado, Macapá. Contribui para o desenvolvimento do Estado e possui uma área de 1.300 hectares, dentro da qual está situado o Loteamento Industrial, com área aproximada de 400 hectares, distribuída em 11 quadras, subdivididas em 96 lotes. Os lotes têm dimensões que variam entre 20.000 m<sup>2</sup>, 10.000 m<sup>2</sup> e 5.000 m<sup>2</sup>. Como limite está ao norte a linha do equador, ao sul o Rio Amazonas, leste Rodovia Macapá/Mazagão e a oeste o Rio Matapi (Figura-1).



Figura 1: a) *Direita acima* - Imagem de satélite da zona estuarina estudada; b) *Esquerda abaixo* - Foto aérea do Distrito Industrial de Santana às margens do Rio Matapi. No detalhe observa-se a foz do Rio Matapi, desaguando no Canal do Norte (Rio Amazonas). Cunha (2000).

Podemos caracterizar esses ambientes como ambientes costeiros de transição, onde se encontram áreas da bacia inundadas pela maré e influenciados por diferentes regimes energéticos, como as descargas de água da bacia de drenagem, ventos, ondas, etc. O trecho estudado do Rio Matapi, próximo de sua foz, pode ser considerado como bastante influenciado pelo regime de descarga líquida, sob efeitos de marés e precipitações pluviométricas sazonais, de acordo com algumas definições de estuários feitas por Miranda *et al.* (2002).

Pode-se dizer que a capacidade de dispersão, diluição ou autodepuração de cada corpo de água corrente é também uma característica particular e, em seu próprio contexto, altamente variável. Daí decorre a dificuldade de se estudar características generalizadoras desses processos. Velz (1984) afirma que o caráter dos recursos hídricos é dinâmico e complexo (por exemplo, ressaltam-se as regiões estuarinas, com suas variações espaciais e temporais), e que o equilíbrio estável no ambiente hidrológico é estabelecido através de interações complexas entre a água, o canal de escoamento e a cobertura de vegetação, os quais são relativamente variáveis no tempo (Victoria, 2003, Cunha 2006, Cunha, 2001; Cunha *et al.*, 2000a; Cunha *et al.*, 2002a,b).

Normalmente os processos que afetam a distribuição e a variabilidade de propriedades físicas, a concentração de substâncias naturais (salinidade, nutrientes dissolvidos e sedimentos em suspensão) e dos organismos biológicos, bem como a concentração de poluentes, devem ser abordados de forma interdisciplinar, de acordo com Miranda *et al.* (2002), nas componentes principais: a) **circulação, transporte e mistura entre as águas estuarinas e salgadas** (no caso do Matapi e o Rio Amazonas, entre águas doces com características visivelmente diferenciadas), b) efeitos ambientais sobre a flora e a fauna estuarina e c) transporte, erosão e deposição de sedimentos. Os autores reforçam que a dependência entre esses componentes é significativa em quase todos os processos que ocorrem em estuários. Além disso, a natureza dos sistemas de drenagem é radicalmente influenciada pela fisiografia (em uma bacia razoavelmente estável, os fatores determinantes como o clima, precipitação, temperatura, velocidade do vento, pressão de vapor, radiação solar, são altamente variáveis no tempo e no espaço), que induz a variações no escoamento e na capacidade de assimilação de resíduos (Siqueira, 1996; Siqueira *et al.*, 1997; Siqueira & Cunha, 2001; Lung, 1993 & Velz, 1984). Isto

influencia nas características dos canais, os quais têm um papel maior sobre a dispersão, diluição ou autodepuração dos corpos de água.

### 3. Metodologia

#### 3.1. Pesquisa de Campo

Alguns estuários, como o Amazônico, são típicos de regiões de planície costeira que se formaram durante a transgressão do mar no Holoceno, que inundou os vales de rios. Esses estuários são relativamente rasos, raramente excedendo 30 m de profundidade. A área de seção transversal em geral aumenta estuário abaixo, às vezes de forma exponencial e a configuração geométrica tem a forma de “V”, em que a razão entre a largura/profundidade, em geral, é grande (Lung, (1993) e Miranda *et al.* (2002)). A foz do Rio Matapi e o Rio Amazonas, nos trechos estudados da zona estuarina estão um pouco fora desta classificação, com valores próximos de 30-40 m na foz do Matapi e confluência do Canal do Norte no Amazonas.

Os processos físicos comuns aos sistemas estuarinos são os movimentos cíclicos e a mistura entre massas de água de origens contrastantes (água doce e salgada), cujos resultados ocasionam em corpos de água a não homogeneidade e suas propriedades podem variar em elevadas faixas ou intervalos das escalas de espaço e tempo, ainda mais quando associado às forças geradoras de movimentos, como o as forçantes climáticas. No caso da presente pesquisa as simulações foram embasadas nas variações reais de medidas de descargas líquidas, as quais variaram entre 1000 e 1800 m<sup>3</sup>/s, e velocidades médias por volta de 0,5 a 1,7 m/s, aproximadamente (Ver Figura-2). A largura média trecho estudado do Rio Matapi variou na ordem de 200 a 300 m, dependendo da distância do ponto à foz. Profundidade média considerada na geometria foi por volta dos 7 m. O comprimento total do trecho simulado foi de 7 km de distância Cunha (2006). Na mesma Figura-2 observa-se, logo abaixo da seção de medida, valores de descarga líquida obtidas com o equipamento denominado ADCP<sup>1</sup> do CPAQ/IEPA.

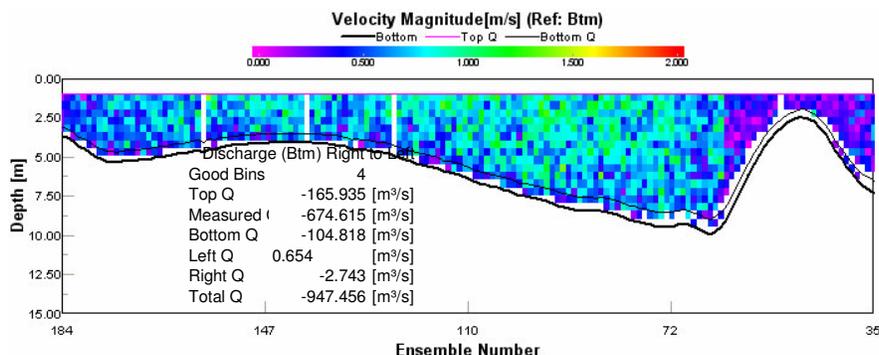


Figura 2: medição de descarga líquida (numa série de 170 em apenas um ciclo de maré, feitas com ADCP (600Hz) numa seção do Rio Matapi – AP (maio de 2006). O sinal negativo da vazão significa maré subindo.

Em duas ocasiões (2001 e 2006) foi possível realizar levantamentos pontuais sobre o comportamento hidrodinâmico (medição de descarga líquida - vazão) no Canal do Norte no Rio Amazonas e no próprio Rio Matapi, utilizando-se ADCP, as quais foram utilizadas para parametrização para as simulações. Neste caso, o intuito foi fundamentar as primeiras simulações numéricas para a dispersão de uma fonte poluente utilizando o CFX 5.10. Para as simulações numéricas, envolvendo a qualidade da água, restringiu-se à utilização de dados de Cunha (2006). Como informações complementares, são listadas abaixo as principais características dos parâmetros da qualidade da água do Rio Matapi, para efeito de informação complementar e para atuais e futuras comparações entre experimentos e simulações numéricas (ver Tabela-1):

<sup>1</sup> ADCP. A tecnologia ADCP (Acoustic Doppler Current Profiler) é um equipamento composto por uma sonda, com quatro transdutores e um “deck box”, onde os sinais são filtrados e transmitidos para um PC com um software específico que coordena as ações de todo o sistema, recebe os dados e disponibiliza em forma de gráficos, tabelas, etc. O princípio de funcionamento do equipamento é regido pelo movimento das partículas na água que causam variações na frequência de eco. O ADCP mede estas variações – o efeito Doppler – com uma função da profundidade para obter a velocidade da corrente em até 128 posições diferentes na coluna da água. Com o conhecimento da velocidade da corrente, da área da seção de medição e da profundidade da mesma, um programa de computador especialmente desenvolvido para o ADCP calcula a vazão total na seção de descarga ou de medição (Guyot et al., 1995 *apud* Benedito 2002).

Tabela-1: Dados médios temporais para análise de variação dos parâmetros de qualidade da água nos rios Matapi (todos pontos dentro do trecho estudado) - Média desde 1999-2004. Fonte Cunha (2003).

Rio Matapi – Principais Pontos Sistemáticos de Coleta de Água – Santana/AP. Balsa – Medida de Vazão.												
Nome	Distância Foz (km)	SS (mg/l)	ST (mg/l)	OD (mg/l)	pH	Cond. Elét. (S/cm)	Turb. (NTU)	TDS (mg/l)	T água (°C)	T Ar (°C)	Colif. Fecais (NMP)	DBO (mg/l)
Mat. Foz	0,0	47,2	204,0	5,4	6,6	44,6	51,8	34,1	30,6	29,0	993,1	3,0
Igarapé Correa	2,3	59,2	202,0	5,6	6,3	31,7	39,8	20,6	30,9	28,8	1523,5	2,0
Pt. Balsa	4,0	63,8	196,0	5,2	6,2	32,3	40,4	22,2	30,0	28,5	1696,7	2,1
Serraria	4,6	62,7	431,6	5,6	6,3	32,5	41,2	26,7	30,3	28,7	1253,3	2,4
Porto Céu	6,2	62,3	327,6	5,3	6,2	31,2	44,3	30,3	30,8	28,7	732,6	2,1

### 3.2. Digitalização do Domínio Computacional a Partir da Batimetria do Canal – Geração da Malha

Uma das principais dificuldades do trabalho foi elaborar uma malha computacional representativa oriunda de contorno natural do rio, como o indicado pela Figura-3 e converter arquivos de uma fonte ArcViv e ou ARcGIS para o CFX (*solidworks*) ou o gerador de malha do CFX. Essa foi uma limitação que dever ser futuramente superada nos próximos trabalhos. Contudo, a idéia inicial era que o gerador de malha do CFX tivesse êxito e facilidade na conversão dos dados ArcView e ou ArcGIS em extensão “.eps”. Isto é, que pudesse gerar uma curva primitiva para que a CFX interpretasse automaticamente. O que acabou não ocorrendo. Como de início não foi possível gerar facilmente a malha, utilizou-se um artifício para a geração aproximada do contorno real da batimetria do Rio Matapi, utilizando-se o formato do fundo pela “extrusão” da “Seção Reta da Balsa” da Figura –3a,b, obtidas a partir das medições reais de descarga e dados de batimetria no Rio Matapi.

O resultado do processo de extrusão adaptativo, para contornar o problema da geração de malha diretamente da Figura-3, está indicado nas Figuras 3a e 3b.

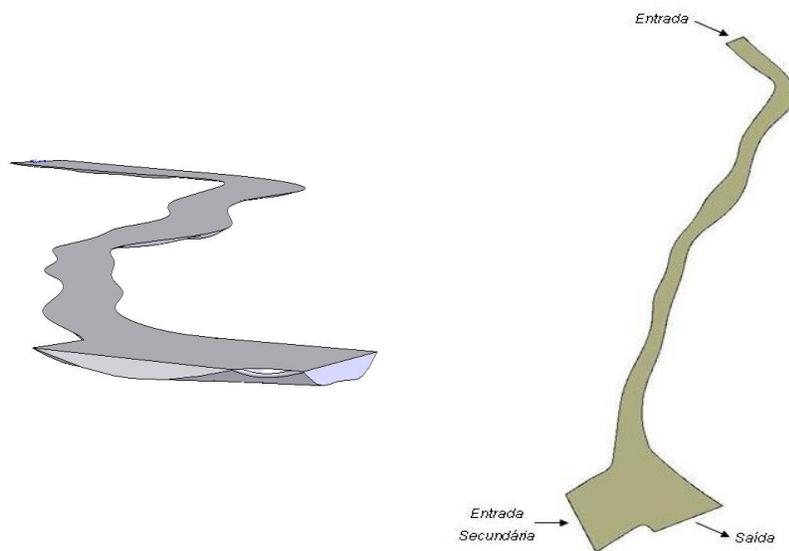


Figura 3: a) Rio Matapi desaguando no Canal do Norte (Rio Amazonas) “extrudado” e em perspectiva 3D – na interseção com o Canal do Norte, em frente, a Ilha de Santana; b) condições de contorno e iniciais do escoamento na referida simulação.

### 3.3 Pré-processamento e Geração da Malha Computacional 3D

A geração da malha foi executada no próprio pré-processador do CFX-5.10, resultando em uma estatística da malha com a seguinte estrutura: a) o número de nós gerados foi de 164.979 e o número de elementos tetraédricos foi de 820.854, tal como mostra a Figura-4.



Figura 4: Malha 3D gerada no CFX. Pré-processamento do Canal da Foz do Rio Matapi e encontro com o Canal do Norte, no Rio Amazonas.

### 3.4 Simulação do Escoamento e Dispersão de Plumas de Poluentes no Rio Matapi – AP com Uso do Modelo SST

A rigor, na presente pesquisa poder-se-ia utilizar o modelo turbulento  $\kappa - \varepsilon$  padrão para a simulação do escoamento e dispersão de poluentes na água. Mas, em função de que em alguns trabalhos de escoamentos ambientais já iniciados com problemas de contorno e divergência numérica no LEA/UnB, foi sugerido o uso do Modelo SST, para melhor solucionar o problema de escoamento complexo em questão – hidrodinâmica com influência de marés e contornos complexos, de acordo com Mente (1994)<sup>2</sup>.

Menter (1994) *apud* Moura (2003) propôs um modelo de duas equações designado para melhorar o comportamento dos modelos  $\kappa - \varepsilon$  e  $\kappa - \omega$ . O ponto inicial para o desenvolvimento desse modelo foi a necessidade de resultados mais acurados para os escoamentos aeronáuticos que têm gradientes de pressão e descolamento da camada

---

<sup>2</sup> Menter, F. R. Eddy viscosity transport equations and their relation to the k -  $\varepsilon$  Model, AMMES Research Center, 1994.

limite acentuados. O modelo  $\kappa - \varepsilon$  é um modelo muito robusto, porém, não consegue capturar descolamento da camada limite em casos turbulentos. Nesse ponto, o modelo  $\kappa - \omega$  é mais realista, isto é, obtém melhores resultados perto da parede. Porém, em escoamentos livres, a equação de  $\omega$  possui uma sensibilidade muito grande o que acaba inviabilizando a troca definitiva do modelo do  $\kappa - \varepsilon$  pelo  $\kappa - \omega$ . Esse foi o ponto motivacional para o desenvolvimento do modelo SST (Menter, 2003)<sup>3</sup>. Para que a lógica desse modelo funcione, o modelo  $\kappa - \varepsilon$  é multiplicado por uma função de mistura e adicionado ao modelo  $\kappa - \omega$  também multiplicado por essa função de mistura. Então, impõe-se que a função tenha valor unitário na região logarítmica e gradativamente torne-se nula fora da mesma.

As especificações para esse modelo são:

Viscosidade turbulenta

$$\mu_t = \rho \frac{a_1 k}{\max(a_1 \omega, (S_{ij} S_{ij})^{\frac{1}{2}} F_2)} \quad (1)$$

onde  $(S_{ij} S_{ij})^{\frac{1}{2}}$  é uma medida invariante do tensor taxa de deformação e  $F_2$  é uma das funções de combinação e é determinada por:

$$F_2 = \tanh \left\{ \left[ \max \left( \frac{2\sqrt{k}}{B^* \omega y}, \frac{500 \nu}{y^2 \omega} \right) \right]^2 \right\} \quad (2)$$

A formulação das funções de mistura  $F_1$  e  $F_2$  é baseada na distância até a parede e nas variáveis. As funções de mistura têm como característica a delimitação de zonas aonde cada modelo irá atuar. Através do valor encontrado para as funções, o modelo irá mudar a formulação nas equações de transporte, onde a primeira função de mistura ( $F_2$ ) é responsável pela troca de modelos na formulação da viscosidade turbulenta e a outra função de mistura,  $F_1$  (Equação-5) é responsável pela determinação das constantes do modelo, e pela troca de modelos na equação de transporte de  $\omega$  (Noleto, 2006)<sup>4</sup>.  $F_1$  é igual a 1, considerando afastado da parede (utiliza a função  $\kappa - \varepsilon$ ) e é igual a zero quando considera a função próxima à parede (nesse caso, faz uso da função  $\kappa - \omega$ ).

Equação de transporte para a energia cinética turbulenta  $k$ , é dada por:

$$\rho \frac{\partial k}{\partial t} + \rho \bar{u}_i \frac{\partial k}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right) + \tilde{P}_k - \beta^* \rho \kappa \omega ; \quad (3)$$

onde:

$$P_k = \mu_t \frac{\partial u_i}{\partial x_i} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \Rightarrow P_k = \min(P_k, 10 \cdot \beta^* \rho \kappa \omega) \quad (4)$$

Equação de transporte para  $\omega$  é:

$$\rho \frac{\partial \omega}{\partial t} + \rho \bar{u}_i \frac{\partial \omega}{\partial x_j} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( (\mu + \sigma_\omega \mu_t) \frac{\partial \omega}{\partial x_j} \right) + \alpha \rho S^2 - \beta \rho \omega^2 + 2(1 - F_1) \rho \sigma_{\omega 2} \frac{1}{\omega} \frac{\partial k}{\partial x_i} \frac{\partial \omega}{\partial x_i} ; \quad (5)$$

onde  $F_1$  é definida como:

$$F_1 = \tanh \left\{ \left\{ \min \left[ \max \left( \frac{\sqrt{\kappa}}{B^* \omega y}, \frac{500 \nu}{y^2 \omega} \right), \frac{4 \rho \sigma_{\omega 2} \kappa}{CD_{\kappa \omega} y^2} \right] \right\}^4 \right\} \quad (6)$$

<sup>3</sup> Menter, F. R. Multscale model turbulent for turbulent flow, In: 24<sup>th</sup> Fluid Dynamic Conference. American Institute of Aeronautics and Astronautics, 1993.

<sup>4</sup> Noleto, L. Comunicação pessoal. Estudo de escoamentos de cilindros. Simulação numérica híbrida e grandes escalas do escoamento turbulento em uma matriz de cilindros. Dissertação em elaboração (2005).

com  $CD_{\kappa\omega 1} = \max \left( 2\rho\sigma_{\omega 2} \frac{1}{\omega} \frac{\partial \kappa}{\partial x_i} \frac{\partial \omega}{\partial x_i}, 10^{-10} \right)$  e  $y$  é a distância da superfície de não deslizamento.

As outras constantes são todas oriundas dos modelos  $\kappa - \varepsilon$  e  $\kappa - \omega$  com alguns ajustes e são determinadas como:  $\beta^*=0,09$ ,  $\alpha_1=5/9$ ,  $\beta_1=3/40$ ,  $\sigma_{k1}=0,85$ ,  $\sigma_{\omega 1}=0,5$ ,  $\alpha_2=0,44$ ,  $\beta_2=0,0828$ ,  $\sigma_{k2}=1$  e  $\sigma_{\omega 2}=0,856$ . (Menter, 2003)<sup>5</sup>.

#### 4. Resultados sobre a Simulação Numérica com o SST – CFX 5.10.

##### 4.1 . Campos de Velocidade.

Na seqüência da Figura-5a e 5b são mostrados os campos de velocidades com as respectivas escalas. Contudo, as limitações sobre o conhecimento da hidrodinâmica e hidrologia locais levaram a algumas simplificações momentâneas. Desta forma, foi possível, dentro dos limites da pesquisa, observar o comportamento hidrodinâmico ao na superfície líquida longo de um ciclo completo de maré. A partir de medidas de vazão (ver Figura-2) com o ADCP, alguns parâmetros hidráulicos ou hidrodinâmicos puderam ser determinados *in loco* e utilizados para estimar as condições iniciais e de contorno necessárias para executar a modelagem do escoamento e simulação da dispersão de plumas de poluentes na água.

Na seqüência da Figura 5a e 5b são mostrados os escoamentos previstos pelas simulações, em que se percebe, inicialmente, um movimento de vazante (direção à foz), tempo  $t = 30$  min, reversão do fluxo,  $t = 150$  min, e refluxo (maré enchente),  $t = 150$  min. Na mesma seqüência, Figura 5b, observa-se após um ciclo de maré, inicialmente, um movimento de enchente (direção contrária à foz), tempo  $t = 480$  min, reversão do fluxo,  $t = 570$  min, e refluxo (maré vazante, novamente),  $t = 600$  min (aproximadamente 12 horas após o início do processo).

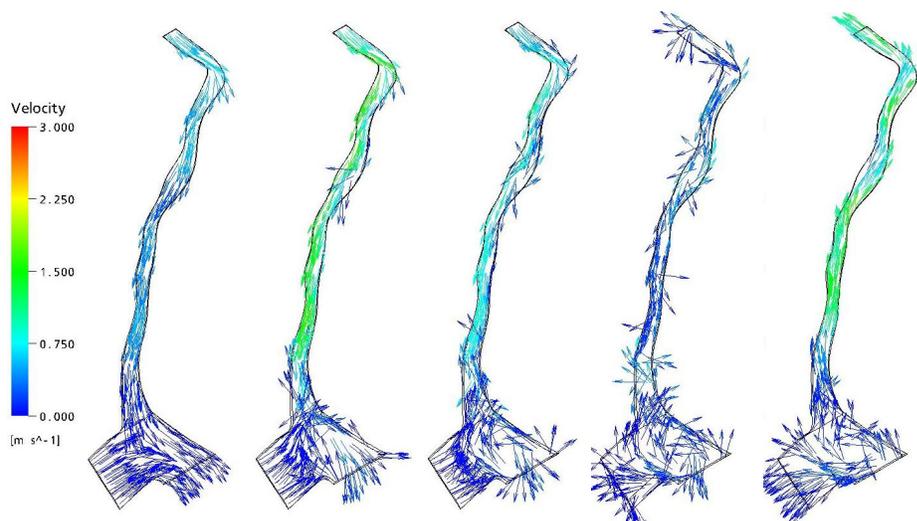


Figura 5a: campos de velocidades simulados em regime transiente no Rio Matapi: a)  $t = 30$  min, b)  $t = 60$  min, c)  $t = 90$  min, d)  $t = 120$  min e e)  $t = 150$  min. Maré vazante, reversão do fluxo e início da enchente.

<sup>5</sup> Menter, F. R. A scale-adaptative simulation model for turbulent flow predictions, 41st Aerospace Science Meeting & Exhibit, 6-9 January, Reno, Nevada. 2003.

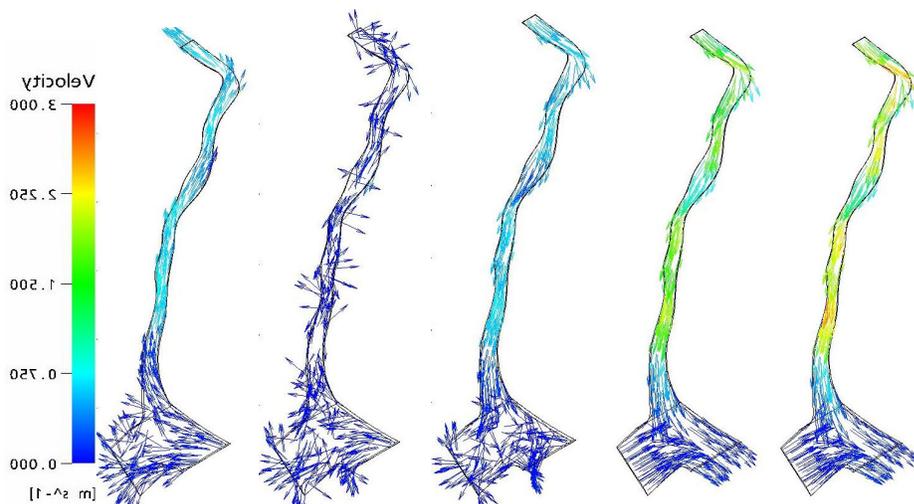


Figura 5b: campos de velocidades simulados em regime transiente: f)  $t = 480$  min, g)  $t = 510$  min, h)  $t = 540$  min, i)  $t = 570$  min e j)  $t = 600$  min. Observa-se a final da enchente, reversão e vazante de maré no tempo.

#### 4.2 . Campos de Concentração de Poluente Orgânico - Duas Fontes Poluidoras Contínuas Lançadas no Centro do Canal a Aproximadamente 1,4 km de Distância.

Analogamente, na seqüência da Figura-6a e 6b, são mostrados os campos de concentração de duas plumas de poluentes não-conservativas. As duas fontes poluidoras foram dispersadas ao longo de um ciclo completo de maré. Quando se observa, simultaneamente as Figuras 5a - 6a e 5b - 6b, é fácil avaliar que a coerência dos movimentos das plumas em função do escoamento nos mesmos instantes analisados. Na seqüência da Figura 6a e 6b são indicados os comportamentos das plumas de poluentes no escoamento. Desta forma, na Figura 6a, pelas simulações observa-se, inicialmente, o lançamento de duas fontes poluentes contínuas de forma pontual, no período de vazante (direção à foz), tempo  $t = 30$  min, com dispersão da pluma, em função do fluxo,  $t = 150$  min, e refluxo (maré enchente),  $t = 150$  min. Na mesma seqüência, Figura 6b, observa-se a mesma característica, após um novo ciclo de maré, inicialmente, um movimento de enchente (direção contrária à foz), tempo  $t = 480$  min, reversão do fluxo,  $t = 570$  min, e refluxo (maré vazante, novamente),  $t = 600$  min (aproximadamente 12 horas após o início do processo).

A seqüência indicada pelas figuras 5 e 6, demonstra as potencialidades do uso da ferramenta numérica para os estudos de escoamentos ambientais e de dispersão de poluentes em corpos naturais de água.

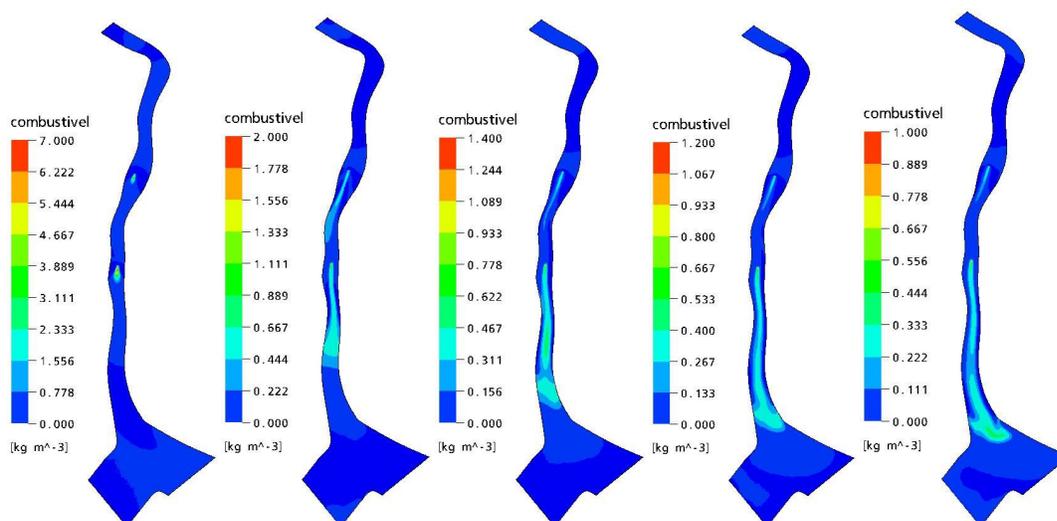


Figura 6a: campos de concentração de poluentes de duas fontes instantâneas: a)  $t = 30$  min, b)  $t = 60$  min, c)  $t = 90$  min, d)  $t = 120$  min e e)  $t = 150$  min. Maré Vazante.

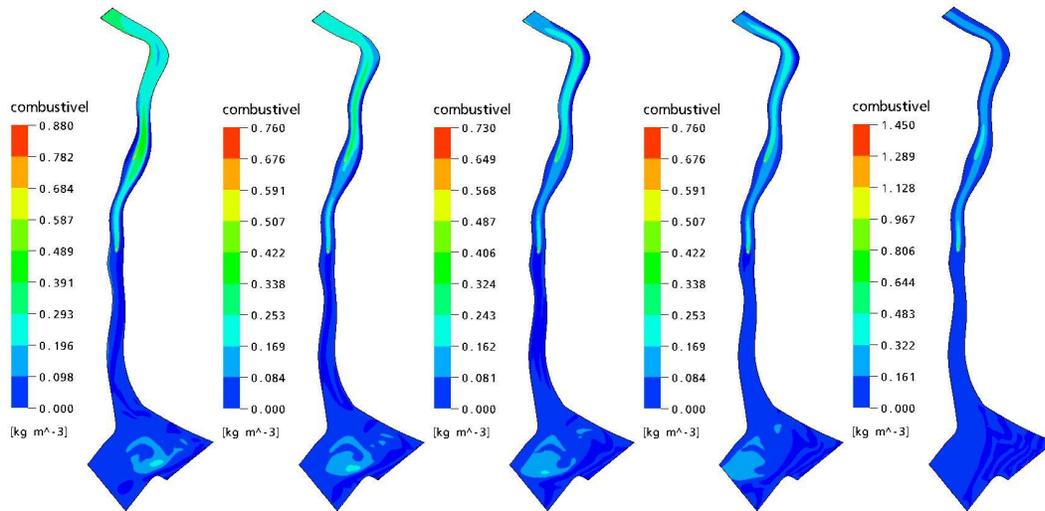


Figura 6b: campos de concentração de poluentes: f)  $t = 480$  min, g)  $t = 510$  min, h)  $t = 540$  min, i)  $t = 570$  min e j)  $t = 600$  min. Maré enchente.

## 5. Conclusões

Foi feito um estudo preliminar, com o uso da simulação numérica, para avaliar o comportamento da hidrodinâmica (escoamento natural em canais abertos e de dispersão de poluentes no Rio Matapi. Neste aspecto a pesquisa apresenta uma relevância importante para geração de conhecimento dos ecossistemas aquáticos do Estado do Amapá e na Amazônia de modo geral.

Desta forma, podemos afirmar que as principais contribuições da presente pesquisa foram resumidas abaixo:

- 1) O presente estudo preliminar introduziu uma forte perspectiva para aprofundamentos de novas pesquisas na área, o que pode permitir o melhor embasamento de conhecimentos sobre esses sistemas físicos tão complexos e, ao mesmo tempo, servir como ferramenta de análise e estudos de cenários para a gestão ambiental no Rio Matapi e, por conseqüência, do **Distrito Industrial de Santana**, associando simulação numérica e experimentação, através de uma abordagem interdisciplinar útil e necessária para estes casos;
- 2) Verificou-se que, mesmo em um contexto um tanto limitado de investigação, que é possível avaliar **quantitativamente e qualitativamente** os principais componentes governantes dos fenômenos hidrodinâmicos (escoamento com superfície livre) e da dispersão de poluentes em escoamentos naturais em ambientes amazônicos;
- 3) O SST (CFX. 5.10, da ANCYS) mostrou-se **robusto e suficientemente capaz** de capturar os principais movimentos hidrodinâmicos do escoamento real esperado para o sistema fluvial em questão, em que pese a variação das grandezas físicas e químicas presentes no escoamento, no espaço e no tempo. Contudo, a presente pesquisa é considerada pelos autores uma análise ainda simplificada e de **caráter eminentemente qualitativo e prospectivo**, pois muitas considerações físicas foram feitas para simplificar a parte física do problema, e sem a preocupação excessiva quanto aos detalhes numéricos das simulações. Destaca-se o exemplo de que a variação da elevação do nível da água nos ciclos de maré é insignificante no processo, o que provavelmente veio superestimar as velocidades superficiais do escoamento mostradas nas Figuras 5a-b e provavelmente influenciou o processo de dispersão avaliado. Contudo, praticamente todos os demais parâmetros de entrada do modelo foram fundamentados em grandezas e características físicas, químicas, geométricas, hidrodinâmicas do escoamento real;
- 4) Foi utilizada uma aproximação matemática para a vazão, por meio de uma função senoidal (obtida a partir de medições físicas reais – Figura-2) como condição de entrada no modelo, bem como a inserção de grandezas cinéticas (taxa de decaimento de primeira ordem de um poluente orgânico da ordem de grandeza de concentração mostrada pela Tabela 1), faixa de variação de velocidade em certa seção do escoamento, descarga líquida variando no tempo, etc, para compor as condições de contorno e iniciais do escoamento (pré-processamento da modelagem).

- 5) Além do estudo da variação do escoamento hidrodinâmico, verificou-se também o comportamento de duas plumas de poluentes lançadas (passivos do escoamento lançados em dois pontos distintos do domínio computacional (ver figuras 6 a-b), durante um ciclo completo de maré;
- 6) Ficou demonstrado que a ferramenta computacional é interessante para se estudar esse tipo de fenômeno complexo. Além disso, é útil para analisar as escalas de espaço e de tempo de deslocamento de plumas de poluentes. Exemplo de aplicação são os potenciais acidentes com derramamento de contaminantes químicos, físicos ou biológicos na água no Distrito Industrial, o que é bastante provável que possam ocorrer em curto ou médio prazos e que podem exigir tomada de decisão quanto aos procedimentos de mitigação de impactos ambientais;
- 7) As principais considerações e limitações da presente pesquisa estão relacionadas com as dificuldades inerentes à obtenção de uma série de dados hidrológicos mais precisos, bem como um maior detalhamento da batimetria. Neste aspecto, há uma tendência para que os futuros estudos nesta área tenham um maior aprofundamento na análise detalhada dos aspectos numéricos associados com os aspectos experimentais;
- 8) Finalmente a pesquisa também permitiu aos pesquisadores envolvidos iniciar um processo de investigação por via de avaliar as potencialidades das ferramentas da simulação numérica aplicadas aos escoamentos em correntes naturais como os rios amazônicos e, ao mesmo tempo, possibilitar que tais estudos possam ser acopladas aos experimentos de campo ora inicialmente empreendidos. Tais ferramentas abrem fortes perspectivas de aprofundamento em uma área sensível e pouco investigada da Engenharia Ambiental na região, sobre a qual pesam muitas lacunas de conhecimento a respeito dos ecossistemas aquáticos e ao meio ambiente de modo geral. Neste aspecto, esta tende a se tornar em uma forte ferramenta para subsidiar políticas públicas de meio ambiente e de gestão de recursos hídricos regionais.

## 6. Agradecimentos

Os autores gostariam de agradecer o suporte financeiro da pesquisa cedido pelo CT-Hidro, CNPq e IEPA, apoio do LAQ/SEMA, CAESA, LEA/UnB e FINATEC. Essas instituições, em conjunto, permitem a integração de conhecimento relevante às tomadas de decisão vinculadas à qualidade de água.

## 7. Referências

Chapra, S. C. *Surface Water-Quality Modeling*. McGraw-Hill. Texas, EUA. 844 p. 1997.

Cunha, A. C. *Monitoramento, Parâmetros e Modelos de Qualidade da Água*. Macapá/AP: Secretaria de Estado do Meio Ambiente - AP. 83 p. 2000.

Cunha, A. C, Cunha, H. F. A. & Siqueira, E. Q. Water Pollution Survey in Rivers of the State of Amapá–Brazil. In: V Workshop Ecolab, Nov., 19-25. Macapá-AP/Brazil. p 315-323. (2000a).

Cunha, A. C, Cunha, H. F. A. & Siqueira, E. Q. “Diffuse Pollution Survey in Rivers of Southeast of Amapá State – Brazil”. In: 5<sup>th</sup> International Conference on Diffuse/Nonpoint Pollution and Watershed Management, Milwaukee, Wisconsin, Proceedings, EUA, June, 10-15. CD-ROM. (2001).

Cunha, A. C. “*Levantamento de Parâmetros Físico-químicos e Hidráulicos para a Avaliação da Qualidade da Água em escoamentos naturais – Desenv. do Distrito Industrial na Bac. do Rio Matapi*”. Rel. Na. p/ CNPq/IEPA. Macapá-AP, Set., 58p. (2001).

Cunha, A. C. & Cunha, H. F. A.: “*Monitoramento de Águas Superficiais em Rios Estuarinos do Estado do Amapá sob Poluição Microbiológica*”. Boletim do Museu Paraense Emílio Goeldi. Boletim. Museu Paraense Emílio Goeldi, série Ciências Naturais, Belém-PA, vol.1, N. 1, p. 141-148, jan-abr, 2005.

Cunha, A. C., et al.: “*Approaches to Evaluation of Self-purification in Estuarine Rivers of Southeast of Amapá State – Brazil*”. ABEQUA -VIII Congresso da Associação Brasileira do Quaternário:Período. Local: Mariluz, Imbé - Rio Grande do Sul. (2002)

Cunha, A. C., et al.: “*Qualidade microbiológica da água em rios de áreas urbanas e periurbanas no Baixo Amazonas: o caso do Amapá*”. Artigo Técnico, Revista da Associação Brasileira de Engenharia Sanitária e Ambiental - ABES, Out-Dez, Vo. 9, N. 4, p-322-329, 2004.

Cunha, A. C. *Simulação Numérica da Hidrodinâmica da Costa Estuarina Urbana e Periurbana de Macapá e Santana - AP: Um Subsídio à Gestão de Recursos Hídricos*. Relatório Técnico – Pesquisador Associado do Departamento de Engenharia Mecânica da UnB. 30 p. Jan, 2006.

Lung, Seng-Wu. *Water quality modeling*. Vol III: Application to Estuaries. CRC Press, Inc.USA. 194 p. (1993).

McCutcheon, S.C.; French, R.H: *Water quality modeling: transport and surface exchange in rivers*. v. 1. Series Edit. CRC Pres. Inc. Boca Raton, Florida. EUA. 334p. (1989).

Miranda, L. B. et al. *Princípios da Oceanografia de Estuários*. Editora Edusp-SP. (2002).

Moura, M. D. *Modelagem e simulação numérica do escoamento turbulento em tubos de sucção de turbinas*. Dissertação de Mestrado Eng. Mecânica – UnB. Brasília, Distrito Federal – DF. 157 p. 2003.

Siqueira, E. Q; Cunha, A. C. “*Re-oxygenation coefficient in model QUAL2E: Prediction methodology*”. Int. Stormwater and Urban Water Syst. Modeling Conf. Monog. 9 in the Series, Proc. of the Conference on Stormwater and Urban Systems Modeling, Toronto, Ontario, Guelph. Edited by Willian James. Computational Hydraulics International (CHI). Período 24-25 de fevereiro de 2000. p. 153-160. (2001).

Silva, M. S.; Kosuth, P. 2001 – *Comportamento das vazões do rio Matapi em 27.10.2000*. CONGRESSO DA ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ESTUDOS DO QUATERNÁRIO, 8. Imbé-RS. Resumos, ABEQUA, p. 594-596.

Velz, C. J. *Applied Stream Sanitation*. A Wiley-Interscience Publication. Second Edition. Michigan, EUA. 799 p. (1984).

Victoria, R. L. *O papel dos sistemas fluviais amazônicos regional e global de carbono: evasão de CO<sub>2</sub> e interações entre os ambientes terrestres e aquáticos*. Piracicaba-SP. CNEM-USP. 22 p. (2003).

## APLICAÇÃO DA REMEDIAÇÃO ELETROCINÉTICA PARA REMOÇÃO DE CHUMBO E NÍQUEL EM SOLOS DE LANDFARMING DE REFINARIAS DE PETRÓLEO.

**Viviane Ventura Guaracho**

Universidade Federal do Paraná (UFPR), Departamento de Engenharia Mecânica, Programa Interdisciplinar em Engenharia do Petróleo e Gás Natural (PRH-24/ANP), Laboratório de Tecnologia Ambiental (LTA), Centro Politécnico - Curitiba/PR, 81531-990  
[vguaracho@ufpr.br](mailto:vguaracho@ufpr.br)

**Maria José Jerônimo de Santana Ponte**

Universidade Federal do Paraná (UFPR), Departamento de Engenharia Mecânica, Programa Interdisciplinar em Engenharia do Petróleo e Gás Natural (PRH-24/ANP), Laboratório de Tecnologia Ambiental (LTA), Centro Politécnico - Curitiba/PR, 81531-990  
[mponete@demec.ufpr.br](mailto:mponete@demec.ufpr.br)

**Resumo.** Em muitas áreas no mundo, o solo tem sido seriamente contaminado, devido às práticas de disposição inadequadas e atividades industriais poluentes. O solo poluído torna-se uma ameaça ao meio ambiente por apresentar substâncias tóxicas, entre estas substâncias podemos citar os metais pesados. É importante considerar que os metais, além de causar danos ao meio ambiente, também oferecem sérios riscos à saúde humana. Como alternativa para solucionar esta ameaça, técnicas são desenvolvidas na tentativa de extrair estes contaminantes do solo, sendo uma delas a técnica da remediação eletrocínética, que tem sido considerada promissora porque apresenta um excelente potencial de recuperação de locais contaminados por metais pesados. Desta forma, o objetivo deste trabalho é avaliar o desempenho da técnica de remediação eletrocínética para remoção dos metais pesados, chumbo e níquel, com composições destes metais na ordem das encontradas nos solos de landfarming de refinarias. O solo foi simulado utilizando areia contaminada com nitrato de chumbo e sulfato de níquel e introduzido no interior do reator com concentrações previamente estabelecidas. Para uma redução nos custos experimentais deste trabalho foi utilizada uma técnica de planejamento estatístico. Foram alterados parâmetros como: concentração dos íons, potencial aplicado e tempo. Buscando uma função resposta para eficiência de remoção do íon chumbo (Pb) e para o íon Níquel (Ni).

*Palavras chave:* chumbo, níquel, remediação eletrocínética, solos landfarming.

### 1. Introdução

O aumento no interesse de encontrar novas e inovadoras soluções para remoção de contaminantes de solos, minimizando sua poluição, tem mobilizado vários pesquisadores em busca de tecnologias para solucionar este problema. Dentre estas tecnologias, a remediação eletrocínética tem sido considerada uma boa alternativa.

A remediação eletrocínética, também conhecida como processamento eletrocínético do solo, eletromigração, descontaminação eletrocínética, ou eletrocorreção, pode ser usada para extrair metais pesados e alguns tipos de resíduos orgânicos de solos e sedimentos (Acar *et al.*, 1995).

Esta técnica baseia-se na aplicação de uma corrente direta, na ordem de mA/cm<sup>2</sup>, ou de um potencial através do solo entre dois ou mais eletrodos. Os contaminantes são mobilizados na forma de espécies carregadas ou partículas, a corrente aplicada mobiliza espécies carregadas eletricamente, partículas e íons no solo pelos seguintes processos:

- Eletromigração: transporte de espécies químicas carregadas sob um gradiente elétrico;
- Eletro-osmose: transporte de fluido intersticial sob um gradiente elétrico;
- Eletroforese: movimento de partículas carregadas sob um gradiente elétrico;
- Eletrólise: reações químicas associadas com o campo elétrico.

A Figura 1 apresenta um diagrama do processo de aplicação típica da correção eletrocínética.

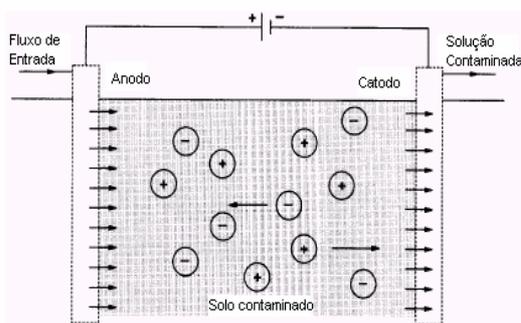


Figura 1. Diagrama sistemático do processo de remediação eletrocínética.

A variação do pH nos eletrodos resulta da eletrólise da água. A solução torna-se ácida no ânodo porque os íons hidrogênio são produzidos e o gás oxigênio é liberado, seu pH poderia cair até abaixo de 2. No cátodo a solução torna-se básica, onde os íons hidróxido são gerados e o gás hidrogênio é liberado e seu pH poderia aumentar até acima de 12, em ambos casos depende da corrente total aplicada (Acar *et al.*, 1997).

A frente ácida eventualmente migra do ânodo para o cátodo. A movimentação da frente ácida por migração resulta na dessorção de contaminantes do solo. O processo conduz à acidificação temporária do solo tratado, e não há um procedimento estabelecido para a determinação do tempo necessário para o restabelecimento do equilíbrio.

Estudos têm indicado que eletrodos metálicos podem dissolver-se como resultado da eletrólise e introdução de produtos corrosivos no solo. Porém, se eletrodos inertes, tais como carbono grafite ou platina forem usados, não serão introduzidos resíduos no solo tratado como resultado do processo.

Antes de a remediação eletrocinética ser adotada em um local, um número de diferentes campos e testes laboratoriais de filtragem devem ser realizados para determinar se o local é propício à técnica de tratamento.

Pretende-se aplicar esta técnica de tratamento em solos de sistema de landfarming de uma refinaria de petróleo, visto que com o aumento da necessidade de processamento de mais petróleo decorre a formação de mais resíduos.

O sistema de landfarming pode ser definido como um processo biotecnológico para tratamento de resíduos sólidos biodegradáveis na camada reativa do solo.

Este processo utiliza microorganismos do solo para tratamento dos resíduos industriais orgânicos biodegradáveis. Para isto, é mantida uma população microbiana aderida nas partículas do solo, que é colocada em contato com o resíduo a ser degradado.

O landfarming geralmente é utilizado para tratar resíduos oleosos provenientes da atividade petrolífera, recebendo os seguintes resíduos:

- Lodos químico e biológico, gerados diariamente na unidade de tratamento de despejos industriais;
- Lodos da estação de tratamento de água;
- Borras oleosas, provenientes da limpeza de fundo de tanques de petróleo e de tanques da estação de tratamento de despejos líquidos industriais (tratamentos primário e secundário).

No caso dos resíduos gerados nas refinarias, promove-se uma mistura entre a borra oleosa, por exemplo, e o solo, em condições favoráveis a biodegradação, dentre elas: ser passível de biodegradação pela população microbiana da camada reativa do solo; ser tolerado, em relação à toxicidade, pela população microbiana da camada reativa de solo e possuir propriedades físicas, principalmente viscosidade, compatíveis com as operações de aplicação e incorporação no solo.

## 2. Materiais e Métodos

### 2.1. Materiais

Para o estudo da recuperação dos íons dos metais pesados (chumbo e níquel) foi projetada uma unidade experimental, representada esquematicamente na Fig. 2.

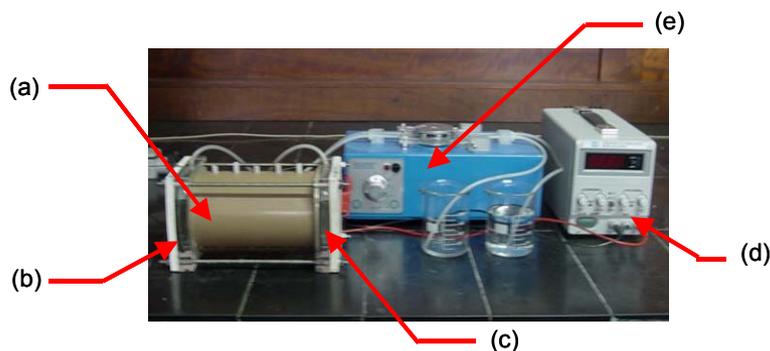


Figura 2. Representação da unidade experimental utilizada.  
(a) reator eletroquímico; (b) compartimento anódico;  
(c) compartimento catódico; (d) fonte e (e) bomba dosadora.

Esta unidade é constituída pelos seguintes componentes:

- Reator eletroquímico (ou célula eletroquímica) composto por compartimento anódico e catódico;
- Fonte da marca Power Supply modelo EMG 18134, com capacidade de fornecer 30 V;
- Bomba dosadora peristáltica marca Milan com potência de 1,0 HP.

O reator eletrocinético a ser utilizado para o processo de remediação apresentado na Fig. 2 foi projetado e construído segundo literatura (Yeung *et al.*, 1997), apresenta uma configuração cilíndrica e nas suas extremidades estão

localizados, como placa alimentadora de corrente (cátodo) o material utilizado será Chumbo e como contra-eletrodo (ânodo) sendo o material de aço inox 304.

## 2.2. Métodos

A técnica utilizada para operação do reator é o planejamento estatístico fatorial, em especial o planejamento composto central (PCC).

O planejamento fatorial tem sido muito aplicado em pesquisas básicas e tecnológicas, é classificado como um método do tipo simultâneo, em que as variáveis de interesse que realmente apresentam influências significativas na resposta são avaliadas ao mesmo tempo. Um dos aspectos favoráveis deste tipo de planejamento é a realização de poucos experimentos, ocasionando um menor custo experimental.

O planejamento composto central é na verdade o planejamento fatorial clássico em dois níveis (2k), utilizado para ajuste em equação de primeira ordem, acrescido de alguns pontos experimentais que permitem a estimação dos coeficientes de uma superfície de 2ª ordem.

No planejamento composto central é comum codificar os níveis das variáveis. Geralmente, assumem-se três níveis igualmente espaçados, de forma que assumam os valores de -1, 0 e 1, respectivamente para o valor inferior, intermediário e superior.

A atribuição dos sinais de codificação aos níveis superiores ou inferiores é feita de forma arbitrária e não interfere na realização dos experimentos ou na interpretação dos resultados, além de permitir esquematizar o planejamento na forma de matrizes de planejamento. As matrizes de planejamento são tabelas utilizadas para organizar as informações relacionadas ao desenvolvimento de um planejamento fatorial.

A Tabela 1 apresenta a matriz de planejamento experimental para os íons Chumbo e Níquel, gerada através do programa Statistica.

Tabela 1. Matriz de planejamento experimental

Corrida Experimental	Concentração (ppm)	Potencial Aplicado (V)	Tempo (h)
1	-1	-1	-1
2	-1	-1	1
3	-1	1	-1
4	-1	1	1
5	1	-1	-1
6	1	-1	1
7	1	1	-1
8	1	1	1
9	-1,68	0	0
10	1,68	0	0
11	0	-1,68	0
12	0	1,68	0
13	0	0	-1,68
14	0	0	1,68
15	0	0	0
16	0	0	0
17	0	0	0
18	0	0	0
19	0	0	0
20	0	0	0

Cada linha da matriz de planejamento corresponde a uma corrida experimental, que deve ser realizada com as variáveis assumindo o valor correspondente à sua coluna.

Para a realização desse trabalho foram selecionados três fatores (variáveis) para avaliar a influência nas seguintes respostas: eficiência de corrente e consumo energético. Esses fatores são: concentração de chumbo; potencial aplicado e tempo e estão codificados de acordo com a Tab. 2 para o Chumbo e Tab. 3 para o Níquel.

Tabela 2. Codificação das variáveis para o Chumbo

Variável	-1,68	-1	0	1	1,68
Concentração de Chumbo (ppm)	2000	2750	3500	4250	5000
Potencial Aplicado (V)	5	10	15	20	25
Tempo (h)	8	24	32	48	72

Tabela 3. Codificação das variáveis para o Níquel

Variável	-1,68	-1	0	1	1,68
Concentração de Níquel (ppm)	400	800	1200	1600	2000
Potencial Aplicado (V)	5	10	15	20	25
Tempo (h)	2	4	8	24	48

Para a realização de cada corrida experimental foram seguidas algumas etapas:

- Tratamento do solo para simular as condições de um solo contaminado:  
O solo utilizado foi areia passada em peneira 60 mesh. Em seguida, foi mantida em solução 10% de ácido clorídrico por 24h para não ocorrer formação de óxidos e, posteriormente, realizado enxágue com água deionizada. Após este processo de lavagem, permaneceu em repouso por 24h em solução 10% de ácido sulfúrico para retirada de orgânicos e, novamente efetuado enxágue com água deionizada e, mantida em estufa para secagem.
- Contaminação da areia (solo):  
Realizada a homogeneização da solução de Nitrato de Chumbo, para a simulação da contaminação do íon Chumbo e solução de Sulfato de Níquel, para a simulação da contaminação do íon Níquel, na concentração de acordo com a corrida a ser realizada, com a areia seca.
- Preencher o reator com a areia de maneira uniforme e compacta que não haja vazios.
- Ligar os eletrodos à fonte.
- Ligar a bomba dosadora para circulação de água deionizada. Esta água foi utilizada com uma vazão de 20mL/h para auxiliar no fluxo eletrosmótico.

Para a execução desta análise do Chumbo utilizou-se um espectrofotômetro, modelo FEMTO 600 PLUS, para análise da concentração do íon chumbo durante cada corrida experimental. As soluções a serem analisadas foram diluídas até a faixa de detecção do aparelho. Para determinação da concentração de níquel foi utilizado espectrofotômetro SpectrAA-200, marca Varian.

### 3. Resultados

A Tabela 4 apresenta as corridas experimentais para o elemento Chumbo.

Tabela 4. Resultados experimentais para o Chumbo

Corrida Experimental	Concentração de Chumbo (C) [ppm]	Potencial Aplicado (E) [V]	Tempo (t) [h]	Eficiência de Remoção (R) [%]
1	2750	10	24	98,55
2	2750	10	48	99,56
3	2750	20	24	98,92
4	2750	20	48	96,70
5	4250	10	24	92,42
6	4250	10	48	99,04
7	4250	20	24	98,84
8	4250	20	48	98,97
9	2000	15	32	97,36

CONTINUA

Continuação da Tabela 4. Resultados experimentais para o Chumbo

Corrida Experimental	Concentração de Chumbo (C) [ppm]	Potencial Aplicado (E) [V]	Tempo (t) [h]	Eficiência de Remoção (R) [%]
11	3500	5	32	98,90
12	3500	25	32	95,40
13	3500	15	8	96,52
14	3500	15	72	99,27
15	3500	15	32	98,31
16	3500	15	32	98,39
17	3500	15	32	98,67
18	3500	15	32	98,05
19	3500	15	32	98,82
20	3500	15	32	97,75

Os resultados obtidos para a taxa de remoção estão todos na faixa de 90-100%, indicando que esse processo se mostrou bastante eficiente. As taxas de menor e maior remoção foram de 92,42% (corrida experimental 5) e de 99,56% (corrida experimental 2) respectivamente.

Utilizando-se a técnica dos mínimos quadrados foram estimados os coeficientes ( $\beta$ ), adotando um nível de 5% de significância e considerando os respectivos erros-padrão, testes t de Student a Eq. (1) empírica que relaciona eficiência de remoção do ion chumbo às variáveis estudadas tem a seguinte forma:

$$R_{pb} = 97,96 + 1,49t + 2,21CE + 1,99Ct - 2,43Et \quad (1)$$

A análise de variância para o ajuste da Eq. (1) determina o coeficiente de correlação múltipla ao quadrado  $R^2=0,6986$  e os valores calculados  $F_c=34,77$  e tabelado  $F_t=5,86$  da distribuição F para um nível de significância de 5% do modelo.

A Tabela 5 apresenta as corridas experimentais para o elemento Níquel.

Tabela 5. Resultados experimentais para o Níquel

Corrida Experimental	Concentração de Níquel (C) [ppm]	Potencial Aplicado (E) [V]	Tempo (t) [h]	Eficiência de Remoção (R) [%]
1	800	10	4	30,50
2	800	10	24	67,00
3	800	20	4	37,00
4	800	20	24	71,50
5	1600	10	4	32,79
6	1600	10	24	55,38
7	1600	20	4	38,00
8	1600	20	24	76,24
9	400	15	8	54,96
10	2000	15	8	56,24
11	1200	5	8	66,53
12	1200	25	8	76,80
13	1200	15	2	21,60
14	1200	15	48	77,93
15	1200	15	8	47,67
16	1200	15	8	48,25
17	1200	15	8	43,50
18	1200	15	8	46,31
19	1200	15	8	47,86
20	1200	15	8	49,25

Os resultados obtidos para a taxa de remoção do níquel estão todos na faixa de 30 a 78%, indicando que esse processo não se mostrou tão eficiente como às taxas de remoção que foram obtidas para o chumbo. As taxas de menor e maior remoção foram de 30,50% (corrida experimental 1) e de 77,93% (corrida experimental 14) respectivamente.

Utilizando-se a técnica dos mínimos quadrados foram estimados os coeficientes ( $\beta$ ), adotando um nível de 5% de significância e considerando os respectivos erros-padrão, testes t de Student a Eq. (2) empírica que relaciona eficiência de remoção do íon níquel às variáveis estudadas tem a seguinte forma:

$$R_{Ni} = 47,61 + 7,96E + 33,18t + 13,63E^2 \quad (2)$$

A análise de variância para o ajuste da Eq. (2) determina o coeficiente de correlação múltipla ao quadrado  $R^2=0,9191$  e os valores calculados  $F_c=181,76$  e tabelado  $F_t=8,69$  da distribuição F para um nível de significância de 5% do modelo.

#### 4. Conclusão

Na correlação obtida para a eficiência de remoção do íon Chumbo, Eq. (1), o valor do teste F calculado (34,77) foi superior ao tabelado (5,86) para um nível de significância (5%) do ajuste de 95%. Logo, a Eq. (1) é estatisticamente significativa. O valor do coeficiente de correlação múltipla ao quadrado ( $R^2$ ) foi de 0,6986 que implica em uma qualidade moderada do ajuste dos pontos experimentais. Isto significa que 69,86% da variação total em torno da média é explicada pela regressão, ficando apenas 30,14% com os resíduos.

Li *et al.* 1997 obtiveram eficiência de remoção na ordem de 83% para um tempo de remediação de 78 horas.

No caso do níquel, a correlação obtida para a eficiência de remoção, Eq. (2), o valor do teste F calculado (181,76) foi superior ao tabelado (8,69) para um nível de significância (5%) do ajuste de 95%. Logo, a Eq. (2) é estatisticamente significativa. O valor do coeficiente de correlação múltipla ao quadrado ( $R^2$ ) foi de 0,9191 que implica em uma boa qualidade do ajuste dos pontos experimentais. Isto significa que 91,91% da variação total em torno da média são explicadas pela regressão, ficando apenas 8,09% com os resíduos.

#### 5. Agradecimentos

Os autores agradecem o apoio da Agência Nacional do Petróleo (ANP) através do Programa Interdisciplinar em Engenharia do Petróleo e Gás Natural da Universidade Federal do Paraná (PRH-24) e da Financiadora de Estudos e Projetos (FINEP).

#### 6. Referências

- Acar Y.B., Alshawabkeh, A.N. Principles of Electrokinetic Remediation. Environ. Sci. Technol., v. 27, n. 13 p. 2638-2647, 1993.
- Acar Y.B., Alshawabkeh, A.N., Parker, R.A. Theoretical and experimental modeling of multi-species transport in soils under electric fields. EPA/600/R-97/054, August 1997.
- Acar, Y.B., Gale, R.J., Alshawabkeh, A.N., Marks, R.E., Puppala, S., Bricka, M., Parker, R. Electrokinetic remediation: Basics and technology status. Journal of Hazardous Materials v. 40, p. 117-137, 1995.
- Achar, J.A. Planejamento de Experimentos em Engenharia e Indústria, ICMSC-USP São Carlos, p. 226-238, 1995.
- Li, Z., Yu, J.W., Neretnieks, I. Removal of Pb(II), Cd(II) and Cr(III) from sand by electromigration. Journal of Hazardous Materials, v. 55, p. 295-304, 1997.
- Statsoft, Inc. STATISTICA for Windows, release 6, 2001, 1 CD. Programa para análises estatísticas.
- Yeung, A.T., Scott, T.B., Gopinath, S., Menon, R.M., Hsu, C. Design, fabrication, and assembly of an apparatus for electrokinetic remediation studies. Geotechnical Testing Journal, v. 20, n. 2, p. 199-210, 1997.

## MODELO ALGÉBRICO PARA SEGUIMENTO DE BOLHAS EM ESCOAMENTO HORIZONTAL GÁS-LÍQUIDO NO PADRÃO DE GOLFADAS

**Hendy T. Rodrigues**

PPGEM / UTFPR, Av. Sete de Setembro 3165, CEP. 80230 – 901, Curitiba - PR  
hendytr@gmail.com

**Rigoberto E. M. Morales**

PPGEM / UTFPR, Av. Sete de Setembro 3165, CEP. 80230 – 901, Curitiba - PR  
rmorales@cefetpr.br

**Eugênio S. Rosa**

DE /FEM/ UNICAMP, Barão Geraldo, Cx. P. 6122, CEP. 13083-970, Campinas - SP  
erosa@fem.unicamp.br

**Ricardo A. Mazza**

DE /FEM/ UNICAMP, Barão Geraldo, Cx. P. 6122, CEP. 13083-970, Campinas - SP  
mazza@fem.unicamp.br

**Resumo.** O trabalho desenvolve um modelo algébrico para previsão da evolução dos pistões de líquido e bolhas de gás ao longo de uma tubulação horizontal com escoamento gás-líquido no padrão de golfadas (slug flow). A motivação deste desenvolvimento é pela sua simplicidade, facilidade de aplicação, baixo custo computacional. Ele é uma ferramenta útil para gerar dados de referência para testes de consistência para modelos numéricos de segmento de bolhas e se mostrou capaz para obter estimativas em novos cenários de aplicações. O potencial deste modelo é demonstrado numa aplicação onde é analisado a influência do aumento da viscosidade da fase líquida no escoamento em golfadas. As estimativas do tamanho, velocidade, frequência e gradiente de pressão dos pistões de líquido e bolhas de gás são realizadas para escoamentos de gás-líquido numa linha horizontal de 20 metros de comprimento e diâmetro de 26 mm, envolvendo líquidos Newtonianos com viscosidade entre 1 cP e 300 cP.

**Palavras chave:** Escoamento Gás-Líquido, Golfadas, Modelo Algébrico.

### 1. Introdução

O escoamento gás-líquido no padrão de golfadas, também conhecido como 'slug flow', ocorre com frequência na produção de óleo em campos terrestres e marítimos. Este tipo de escoamento caracteriza-se pela seqüência de pistões de líquido e de bolhas alongadas de forma intermitente e irregular no tempo e no espaço o que torna a sua modelagem complexa. O pistão de líquido pode conter bolhas dispersas. Ele vem seguido por uma bolha alongada que possui um filme de líquido abaixo dela. Denomina-se por unidade um conjunto de um pistão seguido por uma bolha. Sua representação esquemática é dada na Fig. (1), LS e LB referem-se aos comprimentos do pistão e da bolha, VB e Vf a velocidade da frente da bolha e do filme e P a pressão na bolha de gás. A predição das propriedades das estruturas gás-líquido (tamanho, frequência e velocidades) assim como seu gradiente de pressão são relevantes na indústria de petróleo para o dimensionamento de linhas, de separadores gás-líquido assim como previsão do inventário de óleo e gás no reservatório.

A modelagem escoamento em golfadas de líquido se desenvolveu após a introdução do conceito de célula unitária Wallis (1969). A idéia central desta família de modelos é considerar que o escoamento seja periódico no tempo e no espaço de forma que o foco da modelagem passa a ser em apenas um conjunto pistão-bolha, denominado por célula unitária, em vista que ao longo do tempo e do espaço ele se repete dentro da tubulação. O conceito de célula unitária deu origem a uma classe de modelos. Entre os modelos que utilizam este conceito podemos citar Dukler e Hubbard (1975) pelo pioneirismo, Fernandes et al. (1983) pela aplicação em escoamentos verticais e mais recentemente Taitel e Barnea (1990a) que reporta um modelo geral para escoamentos horizontais, verticais e inclinados. Eles são populares e empregados com frequência no dimensionamento de linhas. A principal crítica que se faz a esta classe de modelos é que ela não reproduz as irregularidades espacial e temporal das golfadas nem permite a interação entre as bolhas. Além disto, para a solução do escoamento na célula unitária são necessárias correlações experimentais para o fechamento do modelo.

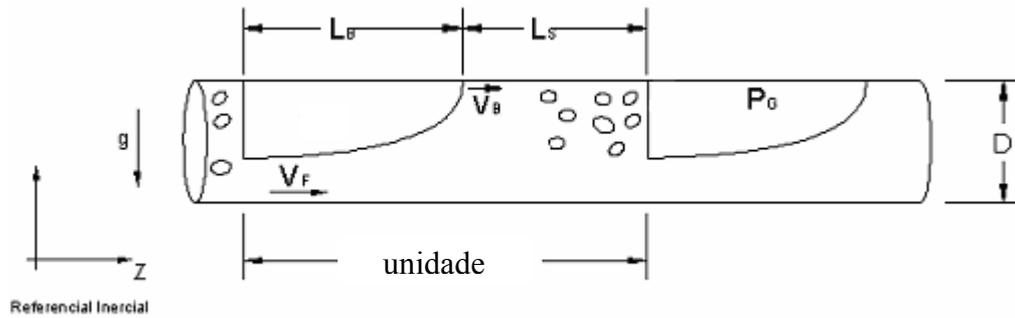


Figura 1. Esquema do escoamento intermitente líquido-gás.

Durante a década de 90 surgiram os primeiros modelos de seguimento de bolhas. Esta nova classe de modelos permite a interação entre bolhas e supera um ponto fraco do modelo de célula unitária que é sua capacidade de não reproduzir as irregularidades espacial e temporal intrínsecas do escoamento de golfadas. Também conhecidos como modelos lagrangeanos, eles seguem as bolhas e pistões ao longo do escoamento atualizando suas propriedades a cada avanço na distância e no tempo. Os primeiros modelos desta classe foram puramente cinemáticos. Taitel e Barnea (1993) propuseram um modelo de segmento de pistões de líquido em um trecho reto de tubulação e realizaram a determinação de sua distribuição de tamanhos ao longo da linha. Zheng et al. (1994) estenderam o modelo de Taitel e Barnea para terrenos com inclinação variada propondo a criação ou extinção de pistões e bolhas de líquido em função da mudança de inclinação da linha. O efeito de compressibilidade do gás foi introduzido posteriormente nos modelos por Taitel e Barnea (1998) para considerar a expansão do gás na bolha devido a queda de pressão na linha. Nydal e Banerjee (1996) propuseram um modelo dinâmico de segmento de bolhas. Eles negligenciaram o arrasto interfacial e também a aeração do pistão de líquido. Grenier (1997) desenvolve um novo esquema para segmento dinâmico de pistões e mais recentemente Franklin (2003) propõe aperfeiçoamentos ao modelo proposto por Grenier. Os modelos de seguimento dinâmico de bolhas utilizam extensivamente recursos computacionais e suas programações contêm relativa complexidade, portanto requerem um esforço de implementação maior comparado aos modelos de célula unitária.

Durante o desenvolvimento dos modelos dinâmicos de seguimentos de bolhas frequentemente se depara com a necessidade de se comparar a solução numérica obtida com uma solução previamente conhecida. Esta comparação é um teste de consistência para as rotinas implementadas. Por meio dela pode-se comparar a precisão da solução numérica contra a algébrica e estabelecer tamanhos da grade do espaço e do tempo compatíveis com a precisão que se deseja atingir. Foi para atender estas demandas que o modelo algébrico foi desenvolvido. A idéia central deste modelo é utilizar os resultados do modelo de célula unitária para definir o tamanho, frequência e velocidades na entrada do tubo e propagar as estruturas por meio do modelo algébrico de segmento de pistões. Pelo fato de ser algébrico ele contém simplificações em relação ao modelo numérico de seguimento de bolhas, entretanto sua implementação é mais simples e sua forma permite que se explore diferentes cenários de aplicação tais como mudança de viscosidade da fase líquida. Este tópico será abordado na última seção onde os dados do modelo serão comparados com os dados experimentais de campo.

## 2. Modelo Algébrico

O desenvolvimento do modelo algébrico para escoamento isotérmico, horizontal com golfadas de líquido requer que: (i) o pistão de líquido seja não-aerado, (ii) as bolhas não interajam entre si, (iii) o escoamento seja periódico na entrada do duto e (iv) a introdução e ou remoção das bolhas e pistões na linha não introduzam uma perturbação de pressão.

Se os pistões de líquido são não-aerados então todo gás é transportado pelas bolhas. Além disto, não havendo interação entre bolhas não ocorrerá coalescência e, portanto, a massa de gás contida em uma bolha permanecerá constante da sua formação no início do duto até a sua saída. Para um referencial que se move junto com uma bolha de pressão  $P$ , pode-se dizer que a velocidade superficial do gás varia ao longo do duto conforme a relação:

$$j_G(z) \cdot P(z) = j_G(L) \cdot P(L), \quad (1)$$

onde  $z$  é a coordenada ao longo do tubo cujo sentido crescente coincide com o sentido de fluxo de gás e líquido. Sua origem está em  $z = 0$  e a descarga em  $z = L$ . Denominando a velocidade superficial e a pressão de descarga da linha por  $j_{GS}$  e  $P_{atm}$ , a equação (13) passa a ser:

$$j_G(z) \cdot P(z) = j_{GS} \cdot P_{atm} \quad (2)$$

Considerando conhecidas as condições de descarga da linha, a Eq. (2) mostra que a velocidade superficial do gás em qualquer posição da linha pode ser determinada uma vez conhecido a pressão neste ponto. Como o líquido é incompressível sua velocidade superficial média,  $j_L$ , é constante ao longo do tubo e portanto, a velocidade média da mistura,  $j$ , em qualquer posição  $z$  passa a ser definida por:

$$j(z) = j_L + \frac{j_{GS} P_{atm}}{P(z)} \quad (3)$$

Se a massa de gás de uma bolha permanece constante e o escoamento é isotérmico então podemos relacionar o comprimento da bolha,  $L_B$ , sua fração de vazios,  $R_G$  e a pressão da bolha por meio de:

$$L_B(z) \cdot R_G(z) \cdot P(z) = \text{constante} \quad (4)$$

Por meio da equação (4), pode-se calcular o comprimento de bolha ou sua fração de vazio ao longo de todo o escoamento, porém, é necessário o valor da constante. Ela pode ser determinada a partir do conhecimento de  $P$ ,  $L_B$  e  $R_G$  na entrada ou na saída do duto. Este assunto será tratado mais adiante na definição das condições de entrada e equações constitutivas. Os comprimentos dos pistões,  $L_S$ , são determinados a partir do conhecimento dos comprimentos da bolhas e de sua razão de intermitência  $\beta$ , definida por  $\beta = L_B/(L_B+L_S)$ ; assim  $L_S$  é então:

$$L_S(z) = L_B(z) \cdot ((1 - \beta)/\beta) \quad (5)$$

O conjunto de equações (1) a (5) permite determinar como as velocidades superficiais do gás e do líquido, os comprimentos, a pressão e a fração de vazios variam ao longo da tubulação. A posição no tempo das estruturas gás-líquido que são propagadas na entrada do tubo são determinadas pela velocidade de translação da bolha,  $V_B$ . Para um referencial que se move junto com a bolha temos que:

$$\frac{dz}{dt} = V_B = C_0 \cdot j + C_1 \cdot \sqrt{gD} \quad (6)$$

A velocidade média de translação da bolha,  $V_B$ , é determinada pela relação cinemática proposta por Nicklin (1962) largamente aceita e confirmada por diversos trabalhos subseqüentes ( Bendiksen, 1980). Na Eq. (6)  $C_0$  e  $C_1$  são constantes e  $D$  é o diâmetro da linha. Esta relação aplica-se tanto para escoamento horizontal, inclinado ou vertical, ascendente ou descendente. Ela propõe que a velocidade de translação da bolha é proporcional a velocidade do pistão de líquido a sua frente mais um termo de deslizamento proporcional a  $(gD)^{1/2}$ .

As equações (1) a (6) constituem o modelo algébrico de propagação de bolhas. Para a sua solução é necessário o conhecimento da fração de vazios da bolha,  $R_G$ , do fator de intermitência  $\beta$  e da pressão  $P$  ao longo do tubo. Estas grandezas serão estimadas por meio de equações constitutivas e de um balanço de forças que determinará a queda de pressão.

## 2.1. Equações constitutivas

As equações constitutivas fornecem as informações necessárias para o fechamento do modelo algébrico. Estas equações são baseadas em dados experimentais. Neste trabalho serão empregadas três equações constitutivas para fechamento: (a) equação para a velocidade de propagação da frente da bolha definida na seção anterior; (b) equação para a frequência de células unitárias e (c) a equação para o fator de intermitência,  $\beta$ .

Considerando uma unidade constituída por um pistão seguido por uma bolha, a frequência de ocorrência da unidade,  $f_u$ , pode ser determinada por meio de correlações. Não há um consenso entre as equações constitutivas que melhor representam os dados experimentais. Além disto, só há disponível na literatura equações para  $f_u$  aplicadas para escoamentos horizontais. Entre elas podemos citar as correlações de  $f_u$  para escoamentos horizontais propostas por Tronconi (1990), Hill and Wood (1994) e Heywood and Richardson (1979). Uma das críticas que se faz a estes modelos é que eles não trazem uma dependência explícita com a viscosidade do líquido. Testes experimentais revelaram que nenhum deles representou de forma adequada a frequência experimental num escoamento de nitrogênio e óleo com 324 cP. Considerando as ressalvas acima, este trabalho utilizará a correlação de  $f_u$  proposta por Heywood and Richardson, Eq. (7):

$$f_u = 0,0434 \left[ \frac{j_L}{j} \left( \frac{2.02}{j} + \frac{j^2}{gD} \right) \right]^{1,02} \quad (7)$$

para líquidos com viscosidade de até 30 cP quando for necessário.

Por último é apresentada uma equação constitutiva para determinação do fator de intermitência. Não se tem conhecimento de outra equação constitutiva desta natureza na literatura. Ela foi baseada em dados experimentais obtidos de escoamentos isotérmicos com de ar-água, ar-glicerina e nitrogênio-óleo em tubulação de 29 mm de diâmetro e também de gás e óleo em tubulação com 154 mm de diâmetro. Durante os testes a viscosidade e a densidade da fase líquida variou entre 1 cP e 464 cP, e 917 kg/m<sup>3</sup> a 1188 kg/m<sup>3</sup> (Rosa, 2006). A pressão na entrada da linha variou entre 1000 KPa a 100 KPa. O melhor ajuste dos valores de  $\beta$  contra  $j_G/j$  revela um comportamento linear definido por:

$$\beta = C_2 \cdot (j_G/j) + C_3. \quad (8)$$

Os valores das constantes  $C_2$  e  $C_3$  tem valores diferentes para cada configuração do escoamento e são apresentados na seção de resultados (Tabela 1).

Com o auxílio das Eqs. (6) a (8) pode-se obter uma forma alternativa para Eq. (4). Reconhecendo que:

$$V_B = (L_S + L_B) \cdot f_u \equiv C_0 \cdot j + C_1 \cdot \sqrt{gD}, \quad (9)$$

pode-se expressar  $L_B$  e  $R_G$  de maneira desacoplada. Substituindo a definição de  $L_S$  da Eq. (5) na Eq. (9) vamos ter uma nova expressão para  $L_B$ :

$$L_B(z) = [V_B(z) \cdot \beta(z)] / f_u. \quad (10)$$

Nesta equação o comprimento da bolha ao longo da tubulação varia com o produto da velocidade da bolha e do parâmetro de intermitência. Considera-se que a frequência da unidade permanece constante ao longo do duto. A partir do balanço de massa do gás na bolha, determina-se a fração de vazios na região da bolha:

$$R_G(z) = j_G(z) / [L_B(z) \cdot f_u]. \quad (11)$$

## 2.2 Gradiente de Pressão ao longo da tubulação.

O conhecimento da pressão em cada posição  $z$  da linha é fundamental para fechar o modelo algébrico. Ela é determinada a partir da definição do gradiente de pressão  $\lambda$ :

$$\lambda = \frac{\Delta P}{\Delta Z}, \quad (12)$$

onde  $\Delta P$  e  $\Delta Z$  representam, respectivamente, a queda de pressão na linha e a distância onde ela ocorre. Uma vez conhecido  $\lambda$ , a pressão ao longo da linha pode ser determinada por:

$$P(z) - P_{atm} = - \int_z^L \lambda(z) \cdot dz, \quad (13)$$

onde  $0 \leq z \leq L$  e  $z = L$  corresponde ao final da linha. Se considerarmos  $\lambda$  constante em toda linha, a pressão em qualquer posição  $z$  da linha é obtida pela relação linear:

$$P(z) = -\lambda(L - z) + P_{atm}. \quad (14)$$

Não é possível determinar o gradiente de pressão para toda extensão da linha numa única expressão analítica, entretanto, pode-se determinar  $\lambda$  para uma unidade do escoamento que contenha um pistão de líquido seguido por uma bolha. Este procedimento é o mesmo utilizado nos modelos de célula unitária. A queda de pressão na unidade é composta pela queda de pressão no pistão de líquido e no filme de líquido da região da bolha,  $\Delta P_S$  e  $\Delta P_f$ , conseqüentemente  $\lambda_u$  passa a ser definido por:

$$\lambda_u = \frac{\Delta P_S + \Delta P_f}{L_S + L_B}. \quad (15)$$

O gradiente de pressão da unidade pode ser determinado na região do pistão de líquido e na região da bolha (Taitel e Barnea, 1990b) por:

$$\Delta P_S = f_S \left( \frac{L_S}{D} \right) \left( \frac{\rho_L j^2}{2} \right) \text{ e } \Delta P_f = f_f \left( \frac{L_B}{D} \right) \left( \frac{\rho_L V_f^2}{2} \right) \left( \frac{S_L}{\pi D} \right) \left( \frac{1}{1 - R_G} \right) \quad (16)$$

onde  $f_S$  e  $f_f$  representam aos fatores de atrito para pistão de líquido e filme de líquido respectivamente,  $V_f$  a velocidade média do filme de líquido e  $S_L$  é o perímetro do tubo que está molhado pelo filme de líquido.

Pode-se definir um único fator de atrito  $f$  para ambos os casos  $f_S$  e  $f_f$ . As definições de  $f$  para regime laminar e turbulento com paredes lisas é dada na Eq. (17).

$$f = \begin{cases} \frac{64}{Re}, & Re < 2000 \\ \frac{0.316}{Re^{1/4}}, & 2000 < Re < 10^5 \end{cases} ; \text{ onde } Re = \frac{\rho_L \cdot V_{ref} \cdot D_h}{\mu_L}, \quad (17)$$

o que especifica  $f$  para o pistão ou para o filme de líquido é a definição da velocidade  $V_{ref}$  e do diâmetro hidráulico empregada no Reynolds, para referência a Eq. (18) traz estas definições:

	$V_{ref}$	$D_h$	
pistão de líquido	$j$	$D$	(18)
filme de líquido	$V_f$	$\frac{\pi D^2 (1 - R_G)}{S_L}$	

onde  $V_f$  é a velocidade média no filme de líquido definida por:

$$V_f = V_B + \frac{(j - V_B)}{(1 - R_G)}. \quad (19)$$

A definição do perímetro molhado na região do filme de líquido parte da hipótese de interface plana. O líquido ocupa a parte inferior e o gás a parte superior, conforme representado na Fig. 2. O filme de líquido possui uma altura máxima  $h_f$  na figura e seu perímetro molhado é representado pelo ângulo  $\theta$  que a interface faz com o centro do tubo. Por meio de relações trigonométricas pode-se estabelecer uma relação entre,  $h_f$ ,  $\theta$ ,  $R_G$  e  $S_L$  conforme mostra a Eq. (20):

$$\theta = 2 \cdot \cos^{-1} \left( 1 - 2 \frac{h_f}{D} \right); \quad (1 - R_G) = \frac{\theta - \sin \theta}{2\pi} \text{ e } S_L = \frac{\theta D}{2}. \quad (20)$$

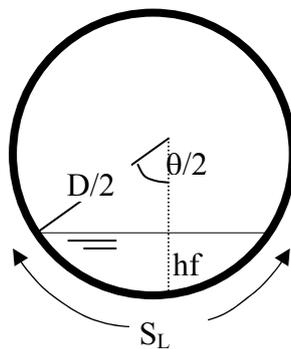


Figura 2 – Representação de uma interface plana. Onde  $h_f$  representa à altura de filme e  $S_L$  ao perímetro molhado pelo filme de líquido.

Substituindo a Eq. (16) na Eq. (15) vamos encontrar que o gradiente de pressão da unidade é definido por:

$$\lambda_u = f_s \left( \frac{\rho_L j^2}{2D} \right) \left[ (1 - \beta) + \frac{f_f}{f_s} \beta \left( \frac{V_f}{j} \right)^2 \left( \frac{S_L / \pi D}{1 - R_G} \right) \right] \quad (21)$$

Substituindo a definição de fator de atrito dada na Eq. (17) na Eq. (21) pode-se simplificá-la para:

$$\lambda_u = f_s \left( \frac{\rho_L j^2}{2D} \right) \left[ (1 - \beta) + \beta \left( \frac{V_f}{j} \right)^{2-n} \left( \frac{S_L / \pi D}{1 - R_G} \right)^{1+n} \right] \quad (22)$$

Ela é válida somente se o regime no pistão e no filme sejam os mesmos, isto é, turbulento ou laminar. Neste caso  $n = 1$  se laminar e  $n = 1/4$  se turbulento.

As Equações (21) ou (22) revelam que o gradiente de pressão da unidade varia, em primeira aproximação, com o quadrado de  $j$ . A medida que a bolha se desloca no tubo, a pressão cai,  $j$  aumenta em consequência da expansão do gás e causa uma variação de  $\lambda_u$  ao longo de toda linha. O fato de  $\lambda_u$  não ser constante ao longo da linha introduz um grau maior de dificuldade na realização do modelo algébrico. Ele deve ser resolvido de maneira iterativa em conjunto com as equações constitutivas e com gradiente de pressão. Este é o assunto da próxima seção.

### 3. Procedimento de Cálculo

O procedimento de cálculo é realizado em duas etapas. Na primeira etapa é realizado um cálculo iterativo para determinar o gradiente de pressão da unidade  $\lambda_u$  na entrada da tubulação. Este cálculo inicial é iterativo, pois necessita dos comprimentos, frequência e das velocidades do gás e líquido em  $z = 0$  que por sua vez também dependem da pressão. A pressão em  $z = 0$  é estimada neste estágio considerando que  $\lambda_u$  vale para toda extensão da tubulação. Uma vez convergidos os valores para  $\lambda_u$  e demais propriedades,  $L_B$ ,  $L_S$ ,  $j_G$ ,  $j$ ,  $V_B$ ,  $V_f$  e  $R_G$  para  $z=0$  parte-se para a próxima etapa.

Na segunda etapa estima-se a pressão ao longo da linha considerando  $\lambda_u$  da etapa 1. Com a distribuição de pressão determina-se as propriedades:  $L_B$ ,  $L_S$ ,  $j_G$ ,  $j$ ,  $V_B$ ,  $V_f$  e  $R_G$  para diferentes  $z$  ao longo da linha. A partir destas propriedades calcula-se as quedas de pressão no pistão e na bolha e determina-se um novo  $\lambda_u$  para cada posição  $z$  da linha. Com  $\lambda_u$  estimado para cada posição determina-se novamente a distribuição de pressão na linha e recomeça-se os cálculos até que neste processo iterativo as diferenças sejam menores que 0,1% entre uma interação e outra.

O algoritmo de cálculo inicia definindo o diâmetro e comprimento da linha, a densidade e a viscosidade do líquido, a constante do gás e a temperatura de operação. Também são definidas as velocidades superficiais do líquido e do gás nas condições de descarga, a pressão de descarga e as constantes das equações constitutivas (Eqs. 6 e 9). A frequência também deve ser calculada nesta etapa ou fornecida por meio de dados experimentais e é considerada constante ao longo de toda linha.

#### Etapa (1) – Calcula propriedades para $z = 0$

- Atribui-se um valor para  $\lambda_u$ ,
- Estima pressão em  $z = 0$ ,  $P(0) = \lambda_u L + P_{atm}$
- Calcula:  $j_G(0)$  [Eq.2],  $j(0)$  [Eq.3],  $V_B(0)$  [Eq.9],  $\beta(0)$  [Eq.8],  $L_B(0)$  [Eq.10],  $L_S(0)$  [Eq.5],  $R_G(0)$  [Eq.11],  $\Delta P_S$  e  $\Delta P_f$  [Eq.16] e  $\lambda_u$  [Eq.15].
- Verifica se o  $\lambda_u$  calculado difere em menos que 0,1% do anterior, se falso retorne a etapa (b), se verdadeiro vá para etapa (2)

#### Etapa (2) – Calcula propriedades para $0 < z < L$

- Estima pressão ao longo do tubo utilizando  $\lambda_u$  da etapa (1) e a Eq. (14),  $P(z) = \lambda_u (L-z) + P_{atm}$
- Calcula as propriedades para diferentes posições  $z$  no tubo:  $j_G(z)$  [Eq.2],  $j(z)$  [Eq.3],  $V_B(z)$  [Eq.9],  $\beta(z)$  [Eq.8],  $L_B(z)$  [Eq.10],  $L_S(z)$  [Eq.5],  $R_G(z)$  [Eq.11],  $\Delta P_S$  e  $\Delta P_f$  [Eq.16] e  $\lambda_u(z)$  [Eq.15].
- Com  $\lambda_u(z)$  estimado em (b) ao longo do tubo estima-se novamente a pressão  $P(z)$  [Eq. 13]
- Calcula as propriedades para diferentes posições  $z$  no tubo com a nova estimativa de pressão do passo (c):  $j_G(z)$  [Eq.2],  $j(z)$  [Eq.3],  $V_B(z)$  [Eq.9],  $\beta(z)$  [Eq.8],  $L_B(z)$  [Eq.10],  $L_S(z)$  [Eq.5],  $R_G(z)$  [Eq.11],  $\Delta P_S$  e  $\Delta P_f$  [Eq.16] e  $\lambda_u(z)$  [Eq.15].
- Se verifica se nenhuma propriedade calculada no passo (d) difere em menos que 0,1% daquela estimada no passo (b), se falso retorne a etapa (b), se verdadeiro os cálculos estão concluídos.

#### 4. Resultados

O modelo algébrico é comparado contra dados experimentais para três pares de fluidos: (a) ar e água (b) ar e solução de 80% glicerina 20% água em volume e (c) nitrogênio e óleo. O interesse é avaliar o desempenho do modelo para líquidos com viscosidade variando entre 1 cP a 324 cP em escoamentos horizontais mantendo-se constante as vazões de gás e líquido e o diâmetro da linha para fins de comparação. Os testes foram realizados nas facilidades experimentais do Departamento de Energia da FEM. Uma descrição da seção de testes e da metodologia experimental está em Rosa (2004). As propriedades dos fluidos, vazões, dimensões da linha horizontal e constantes utilizadas estão mostradas na Tabela 1. Cada par de fluidos possui sua fase líquida com um valor de viscosidade que varia entre 1cP a 324 cP, aproximadamente. Por conveniência os pares: ar-água, ar-solução de glicerina e nitrogênio-Óleo são identificados na legenda dos gráficos por: A@W, A@G e N@O, respectivamente. Destaca-se que os dados relativos à frequência da unidade,  $f_u$ , e dos valores das constantes  $C_0$ ,  $C_1$ ,  $C_2$  e  $C_3$  fornecidos na Tabela 1 vem de valores médios obtidos a partir dos experimentos e serão empregados no modelo.

Tabela 1 – Propriedades de entrada para o modelo algébrico

Par de Fluidos	Ar-Água (A@W)	Ar-Glicerol (A@G)	N <sub>2</sub> -Óleo (N@O)
Comprimento da linha, L (m)	23,4	23,4	26,3
Diâmetro do tubo, D (m)	0,026	0,026	0,0288
Velocidade superficial de gás na saída, $j_{GS}$ (m/s)	0,67	0,67	0,67
Velocidade superficial de líquido, $j_L$ (m/s)	0,33	0,33	0,33
Densidade do líquido, $\rho_L$ (kg/m <sup>3</sup> )	998	1188	917
Viscosidade do líquido, $\mu$ (cP)	0,95	23,9	324
Frequência da unidade, $f_u$ (Hz)	0,74	0,87	4,3
Constante $C_0$ para cálculo $V_B$ ,	1,12	1,27	1,8
Constante $C_1$ para cálculo $V_B$ ,	0	0	0
Constante $C_2$ para cálculo $\beta$ ,	0,819	0,819	0,919
Constante $C_3$ para cálculo $\beta$ ,	0,242	0,242	0,073
Pressão de saída, $Patm$ (Pa)	94700	94700	94700

Os resultados experimentais e aqueles produzidos pelo modelo algébrico são mostrados na forma de gráficos nas figuras subseqüentes. Símbolos e linhas contínuas representam os resultados experimentais e do modelo, respectivamente.

A figura (3) mostra a queda de pressão absoluta ao longo do tubo. A pressão de descarga é de 94700 Pa. Os dados experimentais mostram que conforme a viscosidade da fase líquida aumenta há um aumento do gradiente de pressão, conforme era de se esperar. Os dados do modelo algébrico apresentam a mesma tendência dos dados experimentais, o maior gradiente de pressão ocorre para N<sub>2</sub>-Óleo seguido por Ar-solução glicerina e por último Ar-água. Os menores erros relativos entre modelo e experimento ocorreram para N<sub>2</sub>-Óleo. O modelo tende a sub-estimar as pressões para ar-solução de glicerina e ar-água.

A figura (4a), mostra a evolução da velocidade superficial de gás ao longo da tubulação. Observa-se que os valores de  $j_G$  para os três pares de fluidos tendem para o mesmo valor na saída. Isso é claro, pois a velocidade superficial de gás na saída é um dado de entrada do problema. A variação de  $j_{G(z)}$  ao longo da tubulação é inversamente proporcional à pressão em cada posição do tubo em acordo com a Eq. (2), portanto o fluido que tem maior variação de pressão acaba tendo também a maior variação da velocidade superficial de gás, mas no sentido inverso. O modelo é capaz de capturar a tendência dos dados experimentais, entretanto, ele superestima os valores de  $j_G$  para os pares ar-solução de glicerina e ar-água.

A velocidade média da frente da bolha ao longo do tubo está na Fig. (4b). Definida pela Eq. (9), ela é proporcional a velocidade do líquido a frente da bolha,  $j$ , que aumenta quando a pressão cai. Isto explica o comportamento do dado

experimental e do modelo. As maiores variações de  $V_B$  ocorrem para o par N<sub>2</sub>-Óleo que apresenta a maior variação de pressão. A melhor concordância ocorre entre modelo e experimento ocorre para ar-água.

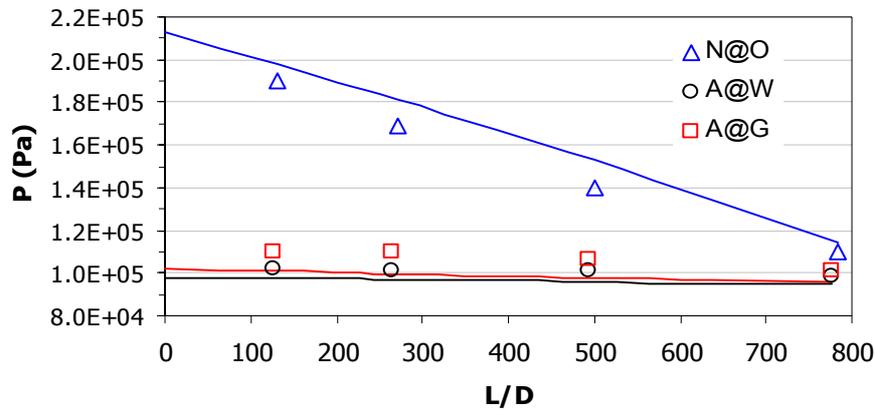


Figura 3: Evolução da pressão em uma bolha ao longo da tubulação.

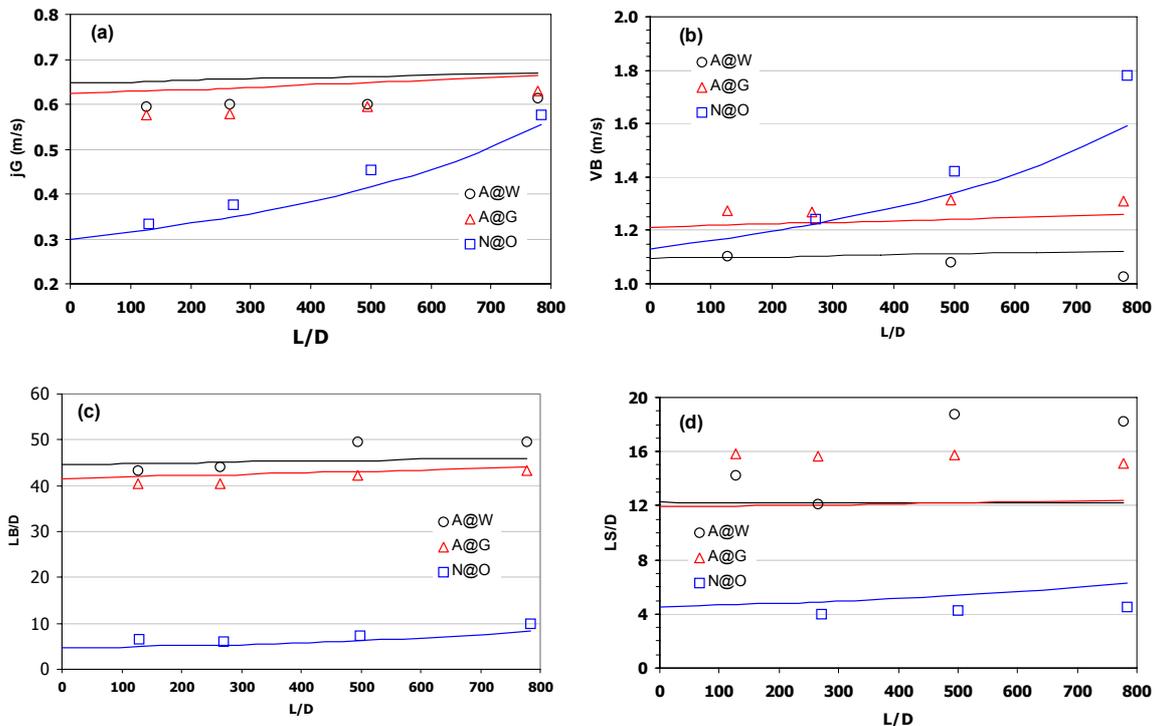


Figura 4: Evolução da velocidade superficial do gás (a), da velocidade da bolha (b), do comprimento da bolha ( $L_B/D$ ) (c) e do comprimento do pistão de líquido ( $L_S/D$ ) (d) ao longo da tubulação.

Os comprimentos de pistão e bolha ao longo do tubo estão nas figuras (4c) e (4d). Os resultados do modelo mostram e o dados experimentais confirmam que o aumento da viscosidade traz uma redução no tamanho das bolhas e no tamanho dos pistões de líquido. Ao longo do duto o comprimento da bolha sempre aumenta. Por outro lado o comprimento do pistão de líquido permanece praticamente constante para ar-água, mostra uma tendência de crescimento para ar-solução de glicerina e tem um nítido crescimento para N<sub>2</sub>-Óleo. Observa-se também que o modelo produz resultados de  $L_B/D$  muito próximos dos dados experimentais, porém sub-estima os resultados de  $L_S/D$  quando comparados com os dados experimentais de Ar-Água e Ar-solução glicerina. Atribui-se a isto a incertezas no coeficiente linear do ajuste do fator de intermitência  $\beta$  (Rosa, 2006).

## 5. Conclusões

O modelo algébrico reproduziu a evolução das grandezas médias do escoamento intermitente horizontal:  $V_B$ ,  $L_B$ ,  $L_S$  e  $P$  para líquidos com diferentes viscosidades. Ele combina efetivamente a propagação das bolhas ao longo do duto com módulos do modelo de célula unitária. Dessa maneira ele captura a evolução das estruturas gás-líquido no escoamento incluindo os efeitos de compressibilidade do gás. Os principais pontos fracos do modelo são: não considerar a hipótese de pistão de líquido aerado, o escoamento é periódico na entrada, não há interação entre bolhas e sua entrada ou saída do duto não perturba a pressão da linha. No entanto ele se mostrou capaz de capturar a evolução das estruturas gás-líquido no escoamento. Ele também cumpre o objetivo inicial que é fornecer dados de referência para teste de modelos numéricos de seguimento de bolhas. O próximo desenvolvimento deverá estender o atual modelo para escoamentos inclinados ou verticais. O presente modelo é baseado em três correlações experimentais que estimam: a velocidade da bolha, a frequência da unidade e o fator de intermitência. É necessário conhecer a sensibilidade do modelo em relação as variações das constantes  $C_0$ ,  $C_1$ ,  $C_2$  e  $C_3$  empregadas nas equações constitutivas para  $V_B$  e  $\beta$ . Entre as equações constitutivas empregadas considera-se o modelo de determinação de frequência da unidade o mais problemático pelo fato dele não ter contra partida para escoamentos verticais nem tão pouco ter uma dependência explícita com a viscosidade. Espera-se no futuro substituir a equação algébrica da  $f_u$  por um modelo de bolha, suplantando esta deficiência e reduzir a dependência do modelo para apenas duas correlações. Entretanto, esta substituição se tiver sucesso, aumentará a complexidade algébrica do modelo, pois introduz uma equação a mais para a solução do modelo.

## 6. Agradecimentos

Os autores agradecem ao apoio financeiro da ANP por meio do Programa de Recursos Humanos para o setor de Petróleo e Gás PRH-ANP (PRH 10 – CEFET/PR) e do CENPES-PETROBRAS.

## 5. Referências

- Bendiksen, K.H., 1980, "An experimental investigation of the motion of long bubbles in inclined tubes", *Int. J. Multiphase Flow*, vol. 10, pp. 467-483.
- Dukler A.E. and Hubbard M.G., 1975, "A model for gas liquid slug flow in horizontal and near horizontal tubes", *Ind. Eng. Chem. Fundam.* Vol. 14, n. 4, pp. 337-347.
- Grenier, P., 1997, "Evolution des longueurs de bouchons en écoulement intermitten horizontal", Ph. D thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse, Toulouse, France.
- Fernandes, R.D, Semiat, R. and Dukler, A.E., 1983, "Hydrodynamical model for gás-liquid slug flow in vertical tubes", *AIChE J.* vol 29, n.6, pp. 981-989.
- Franklin, E.M, 2004, "Modelagem numérica para seguimento dinâmico de bolhas em escoamento intermitente horizontal gás-líquido", Tese de Mestrado, Faculdade de Engenharia Mecânica da UNICAMP, Campinas, SP, Brazil.
- Heywood H.I. and Richardson, J.F., 1979, "Slug flow of air-water mixtures in a horizontal pipe: determination of liquid holdup by gama-ray absorption", *Chem. Eng. Sci.*, 34, pp. 17-34.
- Hill, T.J. and Wood, D.G., 1994, "Slug flow occurrence, consequences and prediction", Centennial Petroleum Engng Conference, Tulsa, OK, August, SPE number 27960.
- Nicklin, D.J., Wilkes, J.O. and Davidson, J.F., 1962, "Two-phase flow in vertical tubes", *Trans. Instn. Chem. Eng.*, vol. 40, pp. 61-68.
- Nydal, O.J. and Banerjee S., 1996, "Dynamic slug tracking simulation for gas-liquid flow in pipelines", *Chem. Eng. Comm.*, vol. 141-142, pp. 13-39.
- Rosa E.S., 2004, "Flow structure in the horizontal slug flow", *Thermal Engineering*, vol. 3, n. 2, pp. 151-160.
- Rosa, E. S, 2006, "Análise de Escoamentos em Golfadas de Óleos Pesados e de Emulsões Óleo-água" Quarto Relatório de Atividades e Resultados alcançados, Projeto UNICAMP / CENPES – PETROBRAS, Campinas, SP.
- Taitel Y. and Barnea D., 1990a, "Two phase slug flow. In *Advances in Heat Transfer* (ed. Harnett, J.P. and Irvine, T.F. Jr)", v.29, pp. 83-132.
- Taitel Y. and Barnea D., 1990b, "A consistent approach for calculating pressure drop in inclined slug flow", *Int. J. Multiphase Flow*, vol (45) n.5, pp. 1199-1206.
- Taitel Y. and Barnea D., 1993, "A model for slug length distribution in gas-liquid slug flow", *Int. J. Multiphase Flow*, vol. 19, pp. 829-838.
- Taitel Y. and Barnea D., 1998, "Effect of gas compressibility on slug trackin model", *Chem Engng Sci*, vol. 53 (11), pp. 2089-2097.
- Tronconi E., 1990, "Prediction of slug frequency in horizontal two-phase slug flow", *AIChE J.* vol. 36, n.5, pp. 701-709.
- Zeng G., Brill J.P, and Taitel Y., 1994, "Slug flow behavior in a hilly terrain pipeline", *Int. J. Multiphase Flow*, vol 20, pp 63-79.
- Wallis G.B., 1969, "One dimensional two-phase flow", McGraw Hill, NY.

## ALGEBRAIC MODEL FOR SLUG TRACKING IN HORIZONTAL GAS-LIQUID SLUG FLOW

Hendy T. Rodrigues

PPGEM / UTFPR, Av. Sete de Setembro 3165, CEP. 80230 – 901, Curitiba - PR  
hendytr@gmail.com

Rigoberto E. M. Morales

PPGEM / UTFPR, Av. Sete de Setembro 3165, CEP. 80230 – 901, Curitiba - PR  
rmorales@cefetpr.br

Eugênio S. Rosa

DE /FEM/ UNICAMP, Barão Geraldo, Cx. P. 6122, CEP. 13083-970, Campinas - SP  
erosa@fem.unicamp.br

Ricardo A. Mazza

DE /FEM/ UNICAMP, Barão Geraldo, Cx. P. 6122, CEP. 13083-970, Campinas - SP  
mazza@fem.unicamp.br

**Abstract.** *The present work develops an algebraic model for prediction of liquid slugs and gas bubbles evolution in horizontal gas-liquid slug flow. The motivation of this development is its simplicity, easiness of application and low computational cost. It is a useful tool of reference data generation in order to check the consistency of numerical slug tracking models, and it showed capable of good estimates in new scenarios. The potential of the model is demonstrated in an application which analyzes the viscosity variation in the liquid phase influence in slug flow. The application estimates gas bubbles and liquid slugs size, velocity, frequency and pressure drop for gas-liquid slug flow in a 20m length and 26mm diameter horizontal tube with Newtonian fluid from 1cP to 300cP.*

**Keywords:** *Gas-Liquid flow, Slug Flow, Algebraic Model.*