

COMPARACION DE METODOS NUMERICOS PARA LA RESOLUCION DE  
PROBLEMAS TRANSITORIOS EN EL PROCESAMIENTO DE POLIMEROS  
REACTIVOS

Norma Crespo

José Castro

José Romagnoli

Planta Piloto de Ingeniería Química

UNS - CONICET

Bahía Blanca - Argentina

RESUMEN

Se propone un estudio comparativo de distintas técnicas numéricas aplicadas a la solución de problemas transitorios en el procesamiento de polímeros reactivos. Fundamentalmente se analiza el flujo continuo a través de un tubo cilíndrico con una polimerización termorígida. Los métodos comparados son: diferencias finitas, colocación ortogonal, elementos finitos, diferencias finitas con un método de integración semi-implícito y diferencias finitas con grilla adaptable. El objetivo final es optimizar la simulación reduciendo a su vez el tiempo de cómputo.

ABSTRACT

We propose a comparative study of different numerical technics applied to the solution of transitory problems in reactive polymers's processing. Fundamentally we analyze the continuous flow through a cylindrical tube with a thermoset polymerization. The methods compared are: finite differences, orthogonal collocation, finite elements, finite differences with a semi-implicit integration method and finite differences with an adaptable grid. The purpose is to optimize the solution and decrease the computation's time.

## 1.0 INTRODUCCION

En la fabricación de artículos plásticos ha tomado gran importancia el procesamiento de polímeros reactivos, en especial el moldeo por inyección reactiva (RIM).

El interés de nuestra investigación radica en el análisis del flujo continuo a través de un tubo cilíndrico con una polimerización termorígida.

Lipshitz, Castro y Macosko [1] desarrollaron un modelo matemático para este problema basado en ecuaciones de balances, que luego resolvieron utilizando el método de diferencias finitas. Los resultados así obtenidos se cotejaron con datos experimentales, observándose que los valores de presión resultantes de la simulación se alejan de los valores empíricos, a partir del momento en que la mezcla polimerizante alcanza el punto de gelado.

Lo que se propone en este trabajo es resolver el modelo matemático mencionado utilizando los métodos de diferencias finitas, colocación ortogonal, elementos finitos, diferencias finitas con un método de integración semi-implícito, y diferencias finitas con grilla adaptable.

Se lleva a cabo una evaluación de las ventajas y desventajas de los métodos mencionados, con el fin de mejorar la simulación centrando la atención en la zona donde se alcanza el punto de gelado, y además se analiza la capacidad de cada método para resolver el problema utilizando el menor número de puntos posibles, de modo de minimizar el tiempo de cómputo.

## 2.0 MODELO MATEMATICO

Trabajaremos con un modelo matemático para describir el flujo a través de un tubo de una mezcla polimerizante, desarrollado por Lipshitz, Castro y Macosko [1]

Las ecuaciones resultantes de los balances molar y de energía son respectivamente:

$$\frac{\partial C^*}{\partial t^*} + \frac{\partial C^*}{\partial z^*} v_z^* = G k^* (1 - C^*)^n + \frac{1}{G z_m} \frac{1}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} \left( r^* \frac{\partial C^*}{\partial r^*} \right) \quad (1)$$

$$\frac{\partial T^*}{\partial t^*} + \frac{\partial T^*}{\partial z^*} v_z^* = G k^* (1 - C^*)^n + \frac{1}{G z} \frac{1}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} \left( r^* \frac{\partial T^*}{\partial r^*} \right) \quad (2)$$

donde  $G$ ,  $G_z$  y  $G_{zm}$  son el número de gelado, el número de Graetz y el número Graetz para transferencia de masa.

A partir de los balances de masa y de momento lineal, y teniendo en cuenta la condición de no deslizamiento, surge la siguiente expresión para la velocidad:

$$v_z^* = \frac{\int_0^1 \frac{r^*}{\eta^*} dr^*}{\int_0^1 \frac{r^{*3}}{\eta^*} dr^*} \quad (3)$$

La caída de presión total a través del tubo puede ser obtenida mediante la expresión

$$\Delta p^* = \frac{1}{4} \int_0^1 \frac{dz^*}{\int_0^1 \frac{r^{*3}}{\eta^*} dr^*} \quad (4)$$

Se asumen las siguientes condiciones iniciales y de borde:

Condiciones iniciales

$$t = 0 \quad C^* = 0 \quad T^* = 0 \quad (5)$$

Condiciones de borde

$$z = 0 : \quad C^* = 0 \quad T^* = 0 \quad (6)$$

$$r = 0 : \quad (\partial C^*/\partial r^*) = 0 \quad (\partial T^*/\partial r^*) = 0 \quad (7)$$

$$r = R : \quad (\partial C^*/\partial r^*) = 0 \quad T^* = (T_w - T_0)/\Delta T_{ad} \quad (8)$$

Para mejores detalles acerca de este modelo matemático, referirse a [1].

### 3.0 SOLUCION NUMERICA

El modelo presentado anteriormente fue resuelto utilizando los métodos de diferencias finitas, colocación ortogonal, elementos finitos y diferencias finitas con grilla afaptable, con el objeto de comparar los resultados numéricos y el tiempo de cómputos. Presentamos a continuación la solución numérica en cada uno de los casos mencionados.

#### 3.1 Diferencias Finitas

Fueron resueltas las ecuaciones (1) y (2) utilizando diferencias hacia adelante en la dirección axial y diferencia central en la dirección radial.

Para el cálculo de la velocidad, se reescribió la ecuación (3) como sigue:

$$v_z^* = \frac{\int_0^1 \frac{r^*}{\eta^*} dr^* - \int_0^{r^*} \frac{r^*}{\eta^*} dr^*}{\int_0^1 \frac{r^{*3}}{\eta^*} dr^*} \quad (9)$$

Las integrales que aparecen en (9) fueron resueltas mediante la regla del trapecio, que también fue utilizada en la obtención de la caída de presión, a partir de la expresión (4).

La integración respecto del tiempo se llevó a cabo, en primer lugar, mediante el método de Euler y posteriormente se aplicó un método semi-implícito de direcciones alternadas.

### 3.3 Diferencias Finitas y Colocación Ortogonal

Con el fin de obtener valores de conversión y temperatura, fueron resueltas las ecuaciones (1) y (2) utilizando el método de colocación ortogonal en la dirección radial y diferencias finitas en la dirección axial. En lo que respecta a colocación ortogonal, se siguieron los lineamientos indicados por Finlayson [2]. La ecuación resulta entonces:

$$\frac{dC^*}{dt^*} \Big|_{ij} = -V_{ij}^* \frac{1}{\Delta z^*} (C_{ij}^* - C_{i-1,j}^*) + \frac{1}{Gz_m} \sum_{k=1}^{NR+2} BR_{jk} C_{ik}^* + \frac{1}{Gz_m} \frac{1}{r_j^*} \sum_{k=1}^{NR+2} AR_{jk} + k k^* (1 - C_{ij}^*)^n \quad (10)$$

$$2 \leq i \leq NR+2, \quad 2 \leq j \leq NR+1$$

donde AR y BR son las matrices que intervienen en el cálculo de las derivadas primera y segunda respectivamente, y NR y NZ son el número de puntos interiores utilizados en las direcciones radial y axial respectivamente.

Las condiciones de borde (7) y (8) pueden ser escritas como sigue:

$$\sum_{k=1}^{NR+2} AR_{1k} C_{ik}^* = 0 \quad (11)$$

$$\sum_{k=1}^{NR+2} AR_{NR+2,k} C_{ik}^* = 0 \quad (12)$$

Las ecuaciones (11) y (12) constituyen, para cada i, un sistema de dos ecuaciones lineales, de donde pueden ser despejados los valores de  $C_{i1}^*$  y  $C_{i,NR+2}^*$ , que posteriormente se introducen en (10). De esta manera se consigue expresar la solución en cualquier punto de la grilla, en función de los puntos interiores de colocación.

La ecuación (2) se trabaja en forma análoga, las condiciones de borde (7) y (8) se combinan en una sola:

$$\sum_{k=1}^{NR+1} AR_{ik} T_{ik}^* + AR_{1,NR+2} \frac{T_w - T_o}{\Delta T_{ad}} = 0 \quad (13)$$

En (1) y (2) surge la necesidad de conocer los valores de la velocidad, los cuales pueden ser obtenidos a partir de la ecuación (3).

En dicha ecuación aparecen dos integrales, que fueron resueltas utilizando el método de cuadratura Gaussiana. Para ello debió realizarse un cambio de escala en la integral del numerador, debido a que su intervalo de integración no es el intervalo unitario. De esta manera se tiene, para cada  $z_j$ :

$$\int_{r_j}^1 \frac{s^4}{\eta^4} ds = \sum_{k=1}^{NR+2} \frac{[r_j^4 - r_k^4 (r_j^4 - 1)]}{\eta^4 (2r_j^4 - r_k^4 - r_j^4 - 1)} (1 - r_j^4) w_k \quad (14)$$

$$\int_0^1 \frac{r^4}{\eta^4} dr = \sum_{k=1}^{NR+2} \frac{r_k^4}{\eta^4 (2r_j^4 - r_k^4 - r_j^4 - 1)} w_k \quad (15)$$

donde  $r_k$  son los puntos de colocación y  $w_k$  son los pesos correspondientes. El cociente entre (14) y (15) determina la velocidad en un punto de coordenadas  $(z_j^*, r_j^*)$ .

Para obtener la caída de presión, se resolvió la ecuación (4), donde es necesario realizar dos integrales numéricas, una de las cuales acaba de ser analizada. En la restante, la variable de integración toma valores sobre el eje axial. Debido a que en esa dirección se trabaja con diferencias finitas con base igualmente espaciada, no puede aplicarse cuadratura Gaussiana. En consecuencia, dicha integral fue resuelta por medio de la regla del trapecio, tal como se hizo en el caso de diferencias finitas.

### 3.3 Elementos Finitos

Fueron resueltas las ecuaciones (1) y (2) utilizando el método de elementos finitos en la dirección radial y diferencias finitas en la dirección axial. En lo que respecta a elementos finitos, se aplicó el criterio de Galerkin, siguiendo las ideas de Huebner [3].

El número de nodos utilizados en cada elemento fue 2 para el primer elemento y 3 para los restantes. Por este motivo se presenta el análisis en dos pasos.

#### 3.3.1 Primer elemento

Se asume que la conversión allí toma la forma:

$$C(z_1, r) = \alpha_1 + \alpha_2 r^2 = \sum_{k=1}^2 N_k^{(1)}(z_1, r) C_k^{(1)}(t) \quad (16)$$

donde  $N_k^{(1)}$  son las funciones de interpolación en el elemento 1, y  $C_k$  son los valores de la conversión en el primer y segundo nodo del elemento para  $k = 1$  y  $2$ , respectivamente.

Aplicando el criterio de Galerkin a la ecuación (1) resulta:

$$\int_{r_1}^{r_2} \left[ \frac{\partial C^*}{\partial t^*} + v_2^* \frac{\partial C^*}{\partial z^*} - \frac{1}{Gr_{2,1}} \frac{1}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} \left( r^* \frac{\partial C^*}{\partial r^*} \right) - \bar{k} k^* (1 - C^*)^n \right] N_j^{(1)} dr^* = 0 \quad (17)$$

$j = 1, 2$

Analizamos cada término en particular, para arribar a una ecuación matricial.

$$I) \int_{r_1}^{r_2} \frac{\partial C^*}{\partial t^*} N_j^{(1)} dr^* = \int_{r_1}^{r_2} \left( \sum_{k=1}^2 N_k^{(1)} \frac{dC_k}{dt} \right) N_j^{(1)} dr \quad (18)$$

$j = 1, 2$

Definiendo

$$\alpha_{jk}^{(1)} = \int_{r_1}^{r_2} N_j^{(1)} N_k^{(1)} dr^* \quad (19)$$

la expresión anterior se transforma en

$$\alpha_{jk}^{(1)} \frac{dC_k^{(1)}}{dt} \quad (20)$$

II) Para resolver la integral

$$\int_{r_1}^{r_2} \frac{1}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} \left( r^* \frac{\partial C^*}{\partial r^*} \right) N_j^{(1)} dr^* \quad (21)$$

aplicamos integración por partes. Definiendo

$$Y_{jk}^{(1)} = \int_{r_1}^{r_2} \left( \frac{dN_j^{(1)}}{dr^*} - \frac{1}{r^*} N_j^{(1)} \right) \frac{dN_k^{(1)}}{dr^*} dr^* \quad (22)$$

se obtiene

$$\int_{r_1}^{r_2} \frac{1}{r^*} \frac{\partial}{\partial r^*} \left( r^* \frac{\partial C^*}{\partial r^*} \right) N_j^{(1)} dr^* = \frac{\partial C^*}{\partial r^*} N_j^{(1)} \Big|_{r_1}^{r_2} - Y_{jk}^{(1)} C_k^{(1)} \quad (23)$$

III)

$$\int_{r_1}^{r_2} v_2^* \frac{\partial C^*}{\partial z^*} N_j^{(1)} dr^* \quad , \quad j = 1, 2 \quad (24)$$

$$v_2^*(z_1, r^*, t^*) = \sum_{k=1}^2 N_k^{(1)}(r) v_{2k}(t) \quad (25)$$

Teniendo en cuenta la aproximación a la derivada primera por diferencias finitas, se tiene:

$$b(z_1, r, t) = \frac{1}{\Delta z^*} [C^*(z_1, r) - C^*(z_{1-1}, r)] \cong \left. \frac{\partial C^*}{\partial z^*} \right|_{z_1, r} \quad (26)$$

Con estas consideraciones resulta:

$$\int_{r_1}^{r_2} v_2^* \frac{\partial C^*}{\partial z^*} N_j^{(1)} dr^* = \sum_{k=1}^2 \sum_{l=1}^2 \int_{r_1}^{r_2} v_2^* N_l^{(1)} N_j^{(1)} N_k^{(1)} \Delta_k dr^* \quad (27)$$

Definiendo

$$\beta_{ljk}^{(1)} = \int_{r_1}^{r_2} N_l^{(1)} N_j^{(1)} N_k^{(1)} dr \quad (28)$$

la expresión anterior se escribe como  $v_2 \beta_{\equiv} \Delta_{\equiv}$  (29)

$$IV) \int_{r_1}^{r_2} \bar{k} k^* (1-C^*)^n N_j^{(1)} dr^* \quad (30)$$

$$\text{Sea } F(z_1, r, t) = \bar{k} k^* (1-C^*)^n \cong \sum_{k=1}^2 N_k^{(1)}(z_1, r) \bar{F}_k(t) \quad (31)$$

$$\int_{r_1}^{r_2} \bar{k} k^* (1-C^*)^n N_j^{(1)} dr^* = \alpha \bar{F}_j \quad (32)$$

Con este desarrollo, la ecuación (1) se transforma en

$$\begin{aligned} \cong \frac{\alpha^{(1)} d\bar{F}_j^{(1)}}{dt^*} &= -v_2^* \beta_{\equiv} \Delta_{\equiv} - \frac{1}{Gz_m} \gamma^{(1)} C^{(1)} + \\ &+ \alpha^{(1)} \bar{F}_j + \frac{1}{Gz_m} \frac{\partial C^{(1)}}{\partial r^*} N_k^{(1)} \Big|_{r_1}^{r_2} \hat{z}_k \end{aligned} \quad (33)$$

### 3.3.2 Análisis a partir del segundo elemento

Asumimos que la conversión en un elemento  $i$  se expresa como sigue:

$$C^*(z_1, r) = \alpha_1 + \alpha_2 r + \alpha_3 r^2 \cong \sum_{k=1}^3 N_k^{(i)}(z_1, r) C_k^{(i)}(t) \quad (34)$$

donde cada elemento  $i$  tiene la forma

(i)

$$\overline{r_{2i-2} \quad r_{2i-1} \quad r_{2i}} \quad (35)$$

Mediante un análisis análogo al realizado en el caso del primer elemento, es posible calcular las funciones de interpolación  $N^{(i)}$ .

La ecuación (1) tiene una expresión análoga a la ecuación (24).

Las condiciones de borde (10) y (11) son utilizadas al ensamblar la ecuación (33) con aquellas que surgen a partir del 2° elemento, para  $i=2,3,\dots,NE$ , siendo NE el número de elementos con que se trabaja. Luego de ensamblar dichas ecuaciones, se obtiene un sistema del tipo

$$A \frac{dC}{dt} = B$$

donde A es una matriz de dimensión  $(2NE) \times (2NE)$ , C es un vector que contiene los valores de la conversión en los 2NE nodos. y B es un vector de dimensión 2NE.

Un análisis análogo debe realizarse para resolver la temperatura, y en este caso la dimensión de la matriz del sistema final será  $(2NE-1) \times (2NE-1)$ .

### 3.4 ADI: método de integración semi-implícito de direcciones alternadas

Este método aproxima la solución de un problema del tipo  $dy/dt = f(t,y)$ , con  $y = y(z,r)$ , considerando dos etapas entre dos tiempos consecutivos. Esto es, dado un paso de integración h y un determinado tiempo  $t_k$ , se obtiene un valor correspondiente  $t_k + h/2$ , resolviendo el problema en forma implícita en una dirección, por ejemplo r, y en forma explícita en la dirección restante.

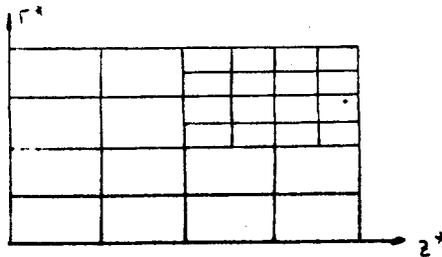
El paso siguiente consiste en considerar una aproximación implícita en z y explícita en r obteniéndose así un valor de y correspondiente al tiempo  $t_{k+1}$ .

De esta forma se obtiene, en cada caso, un sistema de ecuaciones cuya matriz es tridiagonal.

Este método no presenta problemas de estabilidad, y en consecuencia admite pasos de integración grandes, lo que se refleja en una notable disminución en el tiempo de cómputos.

### 3.5 Diferencias Finitas con Grilla Adaptable

Con el objeto de disminuir el tiempo de cómputos, se resolvió el problema mediante diferencias finitas, pero con una grilla variable. La idea es comenzar con un determinado número de puntos, y luego de una cantidad de iteraciones establecida, refinar la grilla cerca de la pared, reduciendo a la mitad la distancia entre dos puntos consecutivos. Así, la zona de grilla refinada se va trasladando hacia el centro del reactor, y toma la forma siguiente:



Es claro, observando la figura anterior, que en la zona donde se produce el cambio en la grilla, debe aplicarse una fórmula para aproximar las derivadas que considere una base no igualmente espaciada, opuestamente a lo que se hace en los puntos restantes. La aproximación obtenida para la derivada segunda es del orden de  $h$ , mientras que si se considera base igualmente espaciada, tal aproximación es del orden de  $h^2$ .

Las integrales (3) y (4) fueron resueltas como suma de dos integrales, una de ellas considerando la variable de integración entre 0 y el punto donde cambia la grilla, y la restante entre dicho punto y 1.

La integración respecto del tiempo fue realizada mediante un método semi-implícito de direcciones alternadas.

#### 4.0 RESULTADOS Y DISCUSION

Con anterioridad a la aplicación de los métodos de colocación ortogonal y diferencias finitas en forma conjunta, se resolvió el problema utilizando colocación ortogonal en ambas direcciones, sin conseguirse resultados satisfactorios. Esto se debe a que en la dirección axial no hay dispersión. Aunque físicamente no afecta agregar a las ecuaciones el término de dispersión, no se soluciona el problema, ya que ese coeficiente es muy pequeño comparado con el coeficiente del término convectivo.

Un análisis especial requiere el cálculo de la velocidad, el cual presenta dificultades numéricas, debido a que después de transcurrido cierto período de tiempo, la mezcla polimerizante se solidifica desde la pared del reactor hacia el centro del mismo, o sea, alcanza el punto de gelado. Esto se traduce en un cambio brusco en la viscosidad (Fig. 1).

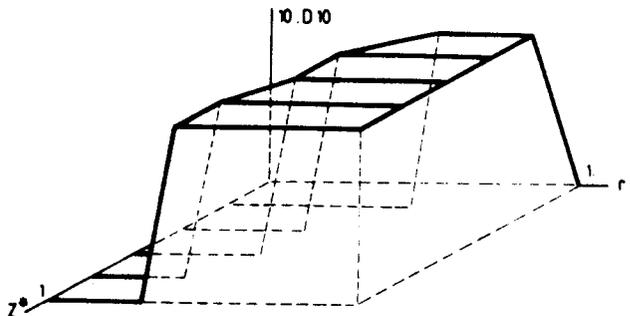


Fig. 1

Con el objeto de analizar los resultados que surgen de los programas desarrollados, se utilizó un gráfico para la caída de presión, debido a Lipshitz, Castro y Macosko, donde aparecen las curvas correspondientes a datos experimentales y a simulaciones realizadas mediante el método de diferencias finitas. Puede observarse en dicho gráfico (Fig. 2) que los problemas aparecen, en la simulación, a partir del cuarto minuto de reacción, tiempo en el cual se alcanza el punto de gelado.

En la figura 2 se muestran, además, los resultados correspondientes a distintos casos analizados.

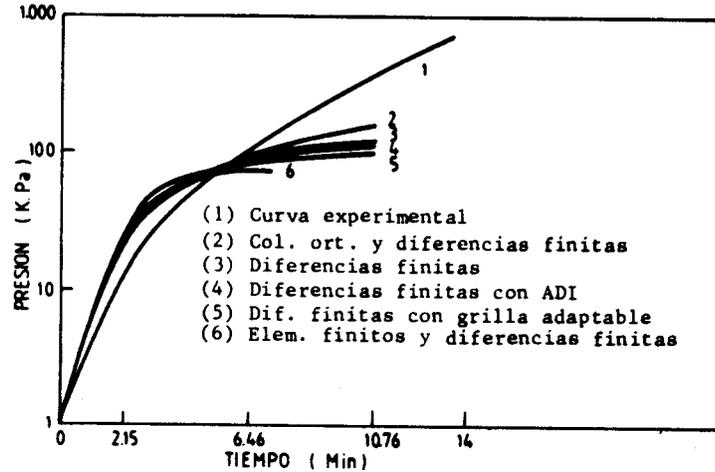


Fig. 2

El número de puntos utilizados, los diferentes pasos de integración y el tiempo de cómputos insumido se presentan en la Tabla 1.

Método	M	N	$\Delta t$	tipo de com. por min. de reacción
Dif. fin.	6	21	1.D-4	4.66 min.
Col. ortog.	6	8	1.D-4	2.45 min.
Elem. fin.	6	6 el.	1.D-4	30. min.
Dif. fin. ADI	6	21	2.D-2	0.09 min.
Grilla adap.	6	11	2.D-3	1.47 min.

N: número de puntos en la dirección radial.

M: número de puntos en la dirección axial.

TABLA 1

De los resultados obtenidos surge claramente que el método de elementos finitos no es conveniente en este caso, ya que insume mucho tiempo de cómputos y el dominio no tiene una forma irregular que justifique su aplicación.

Evidentemente el método que mejor aproxima la solución es colocación ortogonal combinado con diferencias finitas, que además permite trabajar con pocos puntos.

En lo que respecta a la integración respecto del tiempo, sin duda ADI ofrece grandes ventajas ya que asegura estabilidad, admite pasos de integración grandes, y sólo requiere manejo de matrices tridiagonales. Todo esto se refleja en una notable disminución en el tiempo de cómputos.

A continuación se muestran, en las figuras 3, 4 y 5 respectivamente, los perfiles de conversión, temperatura y velocidad.

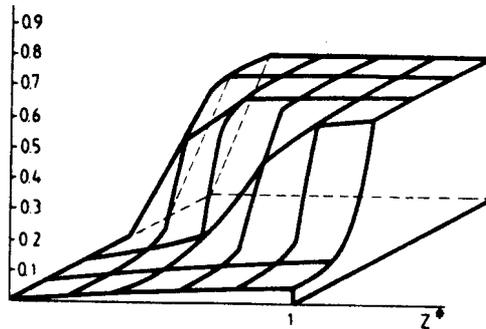


Fig. 3

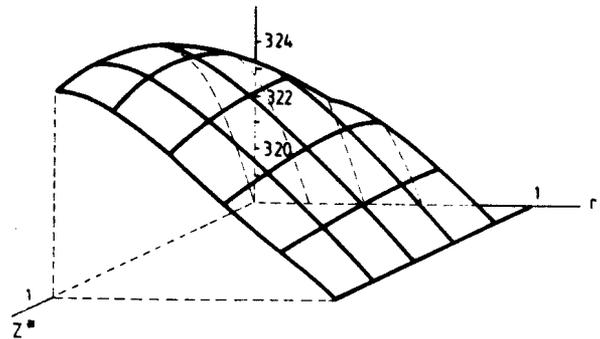


Fig. 4

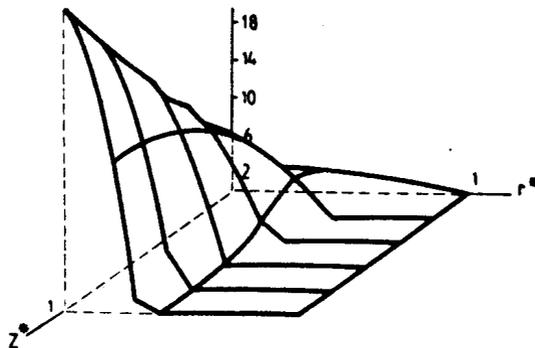


Fig. 5

#### NOMENCLATURA

- $C^*$  conversión de la reacción  
 $k$  conductividad térmica  
 $k^*$  velocidad de reacción adimensional  
 $L$  longitud del reactor  
 $n$  orden de reacción  
 $\Delta P^*$  incremento de presión adimensional  
 $r^*$  radio adimensional  
 $T_0$  temperatura inicial del material  
 $T_w$  temperatura en la pared  
 $T^*$  temperatura adimensional  
 $v_z^*$  velocidad adimensional  
 $z^*$  dirección transversal adimensional.

#### BIBLIOGRAFIA

- [1] Castro, J. M., Lipschitz, S. D., Macosko, C. W., AIChE J. 28, 973 (1982)
- [2] Finlayson, B., Non-linear analysis of weighted residuals and variational principles, Mc. Graw Hill Intern., 1980.
- [3] Huebner Keneth, The finite element method for engineers. Wiley, Inc., 1975