



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO

FACULTAD DE ESTUDIOS SUPERIORES CUAUTITLÁN

**Estudio teórico-experimental de caída de presión
en un tubo empacado con efectos de pared a
temperatura variable**

T E S I S

**QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE:
INGENIERO QUÍMICO**

**P R E S E N T A :
MARÍA LILIA TREJO REYES**

Director de Tesis: Dr. Roberto Quintana Solórzano (IMP)

Co-Director: I.Q. Ismael Núñez Barrón

CUAUTITLÁN IZCALLI, ESTADO DE MÉXICO, 2017



Universidad Nacional
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

Biblioteca Central



UNAM – Dirección General de Bibliotecas
Tesis Digitales
Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS ©
PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.



UNIVERSIDAD NACIONAL
AUTÓNOMA DE
MÉXICO

FACULTAD DE ESTUDIOS SUPERIORES CUAUTITLÁN
UNIDAD DE ADMINISTRACIÓN ESCOLAR
DEPARTAMENTO DE EXÁMENES PROFESIONALES

U. N. A. M.
FACULTAD DE ESTUDIOS
DEPARTAMENTO DE EXÁMENES PROFESIONALES
ASUNTO: VOTO APROBATORIO



M. en C. JORGE ALFREDO CUÉLLAR ORDAZ
DIRECTOR DE LA FES CUAUTITLÁN
PRESENTE

ATN: I.A. LAURA MARGARITA CORTÁZAR FIGUEROA
Jefa del Departamento de Exámenes Profesionales
de la FES Cuautitlán.

Con base en el Reglamento General de Exámenes, y la Dirección de la Facultad, nos permitimos comunicar a usted que revisamos el: Trabajo de Tesis

Estudio teórico-experimental de caída de presión en un tubo empacado con efectos de pared a temperatura variable.

Que presenta la pasante: María Lilia Trejo Reyes

Con número de cuenta: 412002463 para obtener el Título de la carrera: Ingeniería Química

Considerando que dicho trabajo reúne los requisitos necesarios para ser discutido en el EXAMEN PROFESIONAL correspondiente, otorgamos nuestro VOTO APROBATORIO.

ATENTAMENTE

“POR MI RAZA HABLARÁ EL ESPÍRITU”

Cuautitlán Izcalli, Méx. a 27 de Septiembre de 2017.

PROFESORES QUE INTEGRAN EL JURADO

	NOMBRE	FIRMA
PRESIDENTE	I.Q. Margarita Castillo Agreda	
VOCAL	Dr. Ricardo Paramont Hernández García	
SECRETARIO	I.Q. Ismael Núñez Barrón	
1er. SUPLENTE	M. en C. Gilberto Atilano Amaya Ventura	
2do. SUPLENTE	I.Q. Paula Álvarez Fernández	

NOTA: los sinodales suplentes están obligados a presentarse el día y hora del Examen Profesional (art. 127).

AGRADECIMIENTOS

Durante la elaboración de esta tesis, diversas personas se encontraron conmigo en el camino, dejando enseñanzas y aprendizajes, otras ya permanecían inclusive en lo más profundo de mi corazón. Agradezco sumamente la atención, amor, comprensión y apoyo de cada una de ellas. Es por eso que doy gracias a Dios por permitirme llegar hasta donde estoy ahora, y por poner en mi vida a las personas correctas.

Principalmente, esta tesis está dedicada a mi hermano Paco y a mis padres Lili y Frank, los pilares de todo lo que soy, porque sin ustedes todo esto no sería posible. Gracias por enseñarme que el éxito requiere de sacrificios y perseverancia, y que cada lección aprendida, por más dura que fuera, me haría más fuerte. Los amo con todo mi corazón, ustedes son mi fortaleza y el principal motivo para ser mejor cada día. Además, este trabajo no hubiera sido posible sin el apoyo de mi tía Juany (QEPD) y de mi prima Neiby, gracias sin duda por todo el amor y la confianza depositada en mí.

De igual manera, agradezco a las demás personas que permanecieron junto a mí en esta maravillosa etapa de mi vida tanto en la universidad como en el Instituto Mexicano del Petróleo: Luis, Andrea, Lupita, Ismael, Adri, Alexys, Jair, Ofelia, Sahiret y Fernando; gracias por el amor, cariño y comprensión que me brindaron en todo momento, los llevo en mi corazón todo el tiempo.

Gracias al Instituto Mexicano del Petróleo, especialmente al Proyecto de Investigación D.61010, por todos los conocimientos que me brindó y por la gente maravillosa que me permitió conocer, sin duda se convirtió en otro hogar para mí. Agradezco las enseñanzas de la Maestra Andrea Rodríguez, el apoyo incondicional del personal técnico Jorge Acosta, la confianza recibida por parte del Dr. Hector Armendáriz, la Dra. María de Lourdes Guzmán y del Dr. Jaime Sánchez.

Quiero agradecer y dedicar este trabajo a mi asesor de tesis, autor intelectual de esta idea, el Dr. Roberto Quintana Solórzano, quien se ha convertido en un modelo a seguir, además de ser una persona a la que admiro profundamente. Gracias por toda la atención, la confianza, el conocimiento brindado, por estar presente en los momentos de altibajos y de triunfos, gracias por creer en mí para hacer posible la realización de esta tesis.

Agradezco al co-asesor de esta tesis, el I.Q. Ismael Núñez, por su colaboración en este trabajo, así como las múltiples y acertadas correcciones realizadas de su parte. A los profesores que me enseñaron a ser parte de una sociedad con valores y ética, y que más allá de compartir sus conocimientos me formaron como persona.

A la UNAM, en especial a la Facultad de Estudios Superiores Cuautitlán por todos los conocimientos adquiridos, por permitir convertirme en la mejor versión de mí y por hacer realidad mis sueños. Gracias FESC por erizarme la piel al escuchar un Goya, porque éste sale desde lo más profundo del corazón.

“Vivir es enfrentar un problema tras otro. La forma en que lo encarar hace la diferencia”

Benjamin Franklin

ÍNDICE GENERAL

	Pág.
Índice General.	i
Lista de Tablas.	iii
Lista de Figuras.	v
Hipótesis.	x
Resumen.	xi
Objetivos.	xv
Nomenclatura.	xvi
Capítulo 1. Aspectos teóricos de caída de presión.	1-1
1.1 Lechos empacados.	1-2
1.1.1 Lechos empacados de baja d_t/d_p	1-2
1.1.2 Efecto de la caída de presión en la eficiencia del reactor.	1-4
1.2 Factores que impactan la caída de presión en lechos empacados.	1-6
1.2.1 Velocidad superficial promedio del fluido.	1-7
1.2.2 Fracción hueca del lecho empacado (ϵ).	1-9
1.3 Correlaciones empíricas para predecir ΔP en lechos empacados.	1-12
1.3.1 Ecuaciones que no incorporan efectos de pared.	1-12
1.3.2 Ecuaciones que incorporan efecto de pared.	1-14
1.4 Modelos hidrodinámicos aplicados a tubos empacados de baja relación d_t/d_p	1-17
1.5 Referencias.	1-18
Capítulo 2. Procedimientos experimentales.	2-1
2.1 Materiales.	2-2
2.1.1 Soportes de catalizadores.	2-2
2.1.2 Muestreo de partículas.	2-3
2.2 Determinación experimental de propiedades promedio.	2-4
2.3 Sistema experimental para las mediciones de caída de presión.	2-8
2.4 Experimento en blanco: tubo vacío.	2-10
2.5 Experimentos formales: tubo empacado con soporte de catalizador.	2-11
2.5.1 Operación a temperatura ambiente.	2-12
2.5.2 Operación a temperatura por encima del ambiente.	2-13

2.6	Referencias.....	2-14
Capítulo 3. Resultados experimentales.....		3-1
3.1	Propiedades de los materiales.....	3-2
3.2	Condiciones experimentales para los ensayos de caída de presión.....	3-4
3.3	Resultados experimentales y discusión.....	3-8
3.3.1	ΔP^{rel} vs Re_p	3-8
3.3.2	ΔP^{rel} vs GHSV.....	3-11
3.3.3	Efecto de la presión en la caída de presión.....	3-12
3.3.4	Efecto de la temperatura en la caída de presión.....	3-14
3.4	Referencias.....	3-16
Capítulo 4. Evaluación de correlaciones para caída de presión.....		4-1
4.1	Selección de correlaciones de la literatura para predecir los datos experimentales de caída de presión.	4-2
4.2	Caída de presión experimental vs predicciones con correlaciones: valoración gráfica.	4-4
4.3	Caída de presión experimental vs predicciones con correlaciones: valoración analítica.	4-7
4.3.1	Cálculo de errores relativos porcentuales.	4-7
4.3.2	Discusión de resultados.	4-9
4.4	Reajuste de correlaciones para caída de presión vía regresión utilizando información experimental..	4-12
4.4.1	Función objetivo.	4-12
4.4.2	Correlaciones de caída de presión con parámetros reajustados.	4-15
4.4.3	Gráficos de paridad.	4-20
4.5	Referencias.	4-24
Capítulo 5. Conclusiones.....		5-1
Apéndice A. Medición experimental de las dimensiones de las partículas.....		A-1
Apéndice B. Correlaciones para el cálculo de fracción hueca.....		B-1
Apéndice C. Otras correlaciones para ΔP.		C-1
Apéndice D. Participación en Congresos.		D-1
D.1	Presentación en la modalidad Oral en la LVI Convención Nacional IMIQ, octubre 2016.....	D-1
D.2	Presentación en la modalidad Póster en el Congreso Internacional ISAHOF, junio 2017.....	D-3
Apéndice E. Derecho de Autor.		E-1

LISTA DE TABLAS

	Pág.
Tabla 1.1. Coeficientes corregidos de la ecuación de Reichelt reportados por Einfeld y Schnitzlein en la ref. [22].	1-16
Tabla 3.1. Propiedades físicas de los soportes comerciales de catalizador determinadas experimentalmente para realizar los ensayos de caída de presión en un tubo empacado de baja relación d_t/d_p o $d_t/d_{p,e}$	3-3
Tabla 3.2. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm ² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-A.	3-5
Tabla 3.3. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm ² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-B.	3-6
Tabla 3.4. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm ² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-C.	3-7
Tabla 3.5. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm ² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-D.	3-7
Tabla 3.6. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm ² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-E.	3-8
Tabla 4.1. Sumario de porcentaje de errores relativos promedio % MRPE y errores relativos globales % ORPE para cuatro diferentes combinaciones de temperatura y presión de entrada. Información para CAT-A, CAT-B y CAT-C.	4-10
Tabla 4.2. Sumario de porcentaje de errores relativos promedio % MRPE y errores relativos globales % ORPE para cuatro diferentes combinaciones de temperatura y presión de entrada. Información para CAT-D y CAT-E.	4-11
Tabla 4.3. Coeficientes reajustados, término viscoso (α) e inercial (β), asociados a la correlación de Ergun [7], para cada uno de los cinco para cada soporte de catalizador estudiados.	4-16

Tabla 4.4. Coeficientes reajustados, término viscoso (α) e inercial (β), asociados a la correlación de Tallmadge y col. [3] para cada uno de los cinco para cada soporte de catalizador estudiados.	4-17
Tabla 4.5. Coeficientes reajustados, término viscoso (α) e inercial (β), asociados a la correlación de Ergun-Liu y col. [4] para cada uno de los cinco para cada soporte de catalizador estudiados.	4-18
Tabla 4.6. Coeficientes reajustados, término viscoso (α) e inercial (β), asociados a la correlación de Harrison y col. [5] para cada uno de los cinco para cada soporte de catalizador estudiados.	4-19
Tabla 4.7. Coeficientes reajustados K_1 , k_1 y k_2 estimados con los respectivos datos experimentales de caída de presión, para cada soporte de catalizador aplicados a la correlación de Einfeld-Schnitzlein [6].	4-19
Tabla B.1. Correlaciones teóricas para el cálculo de fracción hueca en el lecho empacado [1].	B-1
Tabla B.2. Resultados comparativos del cálculo de fracción hueca en el lecho empacado.	B-2
Tabla C.1. Algunas correlaciones para f_k tomadas de la literatura, aplicables para predecir la caída de presión en lechos empacados.	C-1

LISTA DE FIGURAS

	Pág.
Figura 1.1. Representación de un reactor multi-tubular de lecho fijo con enfriamiento externo aplicado a reacciones químicas altamente exotérmicas. Adaptado de la referencia [11].....	1-4
Figura 1.2. Producción de metanol en un reactor de lecho empacado como una función de la longitud de tubo para diferentes diámetros de partícula [12].....	1-5
Figura 1.3. Caída de presión a la salida del reactor de lecho empacado como una función de la longitud del tubo y el diámetro de partícula. Gráfico tomado de la ref. [12].....	1-6
Figura 1.4. Modelo simple que muestra la distribución del fluido a través del lecho empacado, tomado de la ref. [21].....	1-7
Figura 1.5. Perfiles de velocidades a lo largo de un lecho empacado al azar. (a) Distribución de velocidades visto desde la parte superior del tubo, y (b) Distribución de velocidades a lo largo del lecho empacado tomado de la ref. [24].....	1-8
Figura 1.6. Fracción hueca promedio en lechos empacados para partículas con morfología esférica como función de la relación $d_v/d_{p,e}$. Gráfico tomado de la ref. [25].....	1-10
Figura 1.7. Fracción hueca promedio en lechos empacados para partículas de morfología cilíndricas como función de la relación $d_v/d_{p,e}$. Gráfico tomado de la ref. [25].....	1-10
Figura 1.8. Componente de velocidad axial adimensional en un lecho empacado como función del radio adimensional, calculados aplicando el modelo de la ec. 1.18 para un tubo de 50 mm de diámetro interno, empacado con esferas de 9.8 mm de diámetro y una porosidad promedio de 0.36. Tomado de la ref. [8].....	1-18
Figura 2.1 Fotografías de los cinco soportes de catalizador utilizados en las pruebas experimentales para medir caída de presión. Las imágenes corresponden a los materiales empacados en el tubo de proceso, este último con dimensiones 2.0 m, 1 pulg de OD ced 14 y 2.119 cm de diámetro interno.	2-2
Figura 2.2. Representación esquemática de la técnica de muestreo por cuarteos aplicado a las partículas sólidas que componen a los diferentes soportes de catalizador utilizados en los experimentos de caída de presión.	2-3
Figura 2.3 Algunas formas de soportes de catalizadores: esfera, cilindro, tetralóbulo y cilindro perforado por el centro, con dimensiones características asociadas. L_p corresponde a la longitud del material, d_p es el diámetro del cilindro, esfera o de extremos entre lóbulos, mientras que d_c es el diámetro de la perforación del tetralobular perforado.	2-5

Figura 2.4 Diagrama simplificado del sistema experimentan utilizado para evaluar la caída de presión asociada a los diferentes soportes de catalizador.	2-9
Figura 2.5. Imagen del sistema de control para el monitoreo y registro de caídas de presión experimentales.	2-10
Figura 3.1. Comparativo de la evolución de la caída de presión ΔP en el lecho empacado en función a Re_p de los soportes de catalizador CAT-A (\circ), CAT-B (\blacksquare), CAT-C (\blacktriangle), CAT-D (\bullet) y CAT-E (\blacklozenge) a las diferentes condiciones P y T: (a) 25 °C– 2.5 kg/cm ² man, (b) 200 °C-2.5 kg/cm ² man, y (c) 300 °C -2.5 kg/cm ² man.	3-10
Figura 3.2. Comparativo de la evolución de la caída de presión ΔP en el lecho empacado en función al GHSV de los soportes de catalizador CAT-A (\circ), CAT-B (\blacksquare), CAT-C (\blacktriangle), CAT-D (\bullet) y CAT-E (\blacklozenge) a tres diferentes condiciones de presión y temperatura. (a) 25 °C– 2.5 kg/cm ² man, (b) 200 °C-2.5 kg/cm ² man, y (c) 300 °C -2.5 kg/cm ² man.	3-12
Figura 3.3. Comparación de la caída de presión relativa en función de Re_p para un lecho empacado con diferentes soportes de catalizador CAT-A (\circ), CAT-B (\blacksquare), CAT-C (\blacktriangle), CAT-D (\bullet) y CAT-E (\blacklozenge) a dos condiciones P-T diferentes. (a) 400 °C– 2.5 kg/cm ² man., y (b) 400°C – 3.0 kg/cm ² man.	3-13
Figura 3.4. Comparación de la caída de presión relativa como función del GHSV para un lecho empacado con partículas de soportes de catalizador CAT-A (\circ), CAT-B (\blacksquare), CAT-C (\blacktriangle), CAT-D (\bullet) y CAT-E (\blacklozenge) a dos condiciones diferentes de presión de entrada. (a) 400 °C– 2.5 kg/cm ² man. y (b) 400 °C – 3.0 kg/cm ² man.	3-13
Figura 3.5. Caída de presión experimental en función de la temperatura para cuatro diferentes niveles de flujo de alimentación de aire al tubo empacado (\circ) 5,500 slph, (\blacklozenge) 5,000 slph, (\blacksquare) 4,000 slph, (\blacktriangle) 3,000 slph y (\bullet) 2,000 slph para los diferentes soportes de catalizador. (a) CAT-A, (b) CAT-B, (c) CAT-C, (d) CAT-D y (e) CAT-E.	3-15
Figura 4.1. Esquema caracterizando los términos de las correlaciones de Ergun [7] y Harrison y col. [5] para caída de presión en lechos empacados.	4-4
Figura 4.2. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Re_p . (\times) Experimentales, (\blacksquare) Ergun [7], (\circ) Tallmadge [3], (\blacktriangle) Liu-Ergun mod. [4], (\bullet) Harrison y col. [5] y (\blacklozenge) Einfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-A obtenida/calculada a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm ² y (b) 400 °C -2.5 kg/cm ²	4-5
Figura 4.3. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Re_p . (\times) Experimentales, (\blacksquare) Ergun [7], (\circ) Tallmadge [3], (\blacktriangle) Liu-Ergun mod. [4], (\bullet) Harrison y col. [5] y (\blacklozenge) Einfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-B obtenida/calculada a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm ² y (b) 400 °C -2.5 kg/cm ²	4-6
Figura 4.4. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Re_p . (\times) Experimentales, (\blacksquare) Ergun [7], (\circ) Tallmadge [3], (\blacktriangle) Liu-Ergun mod.	

[4], (●) Harrison y col. [5] y (◆) Eisfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-C obtenida/calculada a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm ² y (b) 400 °C -2.5 kg/cm ² .	4-6
Figura 4.5. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Rep. (×) Experimentales, (■) Ergun [7], (○) Tallmadge [3], (▲) Liu-Ergun mod. [4], (●) Harrison y col. [5] y (◆) Eisfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-D obtenida/calculada a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm ² y (b) 400 °C -2.5 kg/cm ² .	4-7
Figura 4.6. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Rep. (×) Experimentales, (■) Ergun [7], (○) Tallmadge [3], (▲) Liu-Ergun mod. [4], (●) Harrison y col. [5] y (◆) Eisfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-E obtenida/calculada a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm ² y (b) 400 °C -2.5 kg/cm ² .	4-7
Figura 4.7. Pantalla del software DataFit versión 7.1 mostrando la pantalla en la que se ingresan los datos para la regresión en el cómputo de los coeficientes de las correlaciones de caída de presión reajustadas.	4-13
Figura 4.8. Pantalla del software DataFit versión 7.1 mostrando resultados y estadística para la regresión en el cómputo de los coeficientes de las correlaciones de caída de presión reajustadas.	4-14
Figura 4.9. Gráficos de paridad comparativos de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-A a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y (c) Eisfeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm ² , (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm ² , (○) 300 °C – 2.5 kg/cm ² , (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm ² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm ²	4-21
Figura 4.10. Gráficos de paridad comparativos de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-B a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y (c) Eisfeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm ² , (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm ² , (○) 300 °C – 2.5 kg/cm ² , (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm ² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm ²	4-21
Figura 4.11. Gráficos de paridad comparativos de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-C a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y (c) Eisfeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm ² , (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm ² , (○) 300 °C – 2.5 kg/cm ² , (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm ² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm ²	4-22
Figura 4.12. Gráficos de paridad comparativos de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-D a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y (c) Eisfeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm ² , (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm ² , (○) 300 °C – 2.5 kg/cm ² , (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm ² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm ²	4-23
Figura 4.13. Gráficos de paridad comparativos de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-E a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y (c) Eisfeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm ² , (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm ² , (○) 300 °C – 2.5 kg/cm ² , (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm ² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm ²	4-23

Figura A.1. Mediciones experimentales de propiedades físicas de partícula correspondientes al (a) diámetro de partícula y (b) longitud de partícula. Información mostrada para el CAT-B.	A-2
Figura A.2. Mediciones experimentales de propiedades físicas de partícula correspondientes al (a) diámetro de partícula, (b) longitud de partícula y (c) diámetro de orificio. Información mostrada para el CAT-C.	A-3
Figura A.3. Mediciones experimentales de propiedades físicas de partícula correspondientes al (a) diámetro de partícula. Información mostrada para el CAT-D.	A-4
Figura A.4. Mediciones experimentales de propiedades físicas de partícula correspondientes al (a) diámetro de partícula, (b) longitud de partícula y (c) diámetro de orificio. Información mostrada para el CAT-E.	A-4
Figura C.1. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Rep. (×) Experimental, (■) Brauer [1], (+) Carman [2], (○) Cheng [3], (●) Foumeny et al [4], (▲) Gibilaro et al [5], (◆) Handley-Heggs [6], (○) Hicks [7], (△) Jones-Krier [8], (□) KTA [9], (□) Kuerten[10], (◆) Kuo-Nydegger [11], (△) Lee-Ogawa[12], (○) Mac Donald et al [13], (◇) Montillet et al [14], (+) Morcom [15], (▲) Özahi et al [16], (◆) Rose [17], (■) Rose-Rizk [18], (●) Wentz-Thodos [19], (△) Yu et al [20]. (a) 25°C-2.5 kg/cm ² , (b) 400°C-2.5 kg/cm ² y (c) 400°C-3.0 kg/cm ² . Información para el CAT-A.	C-3
Figura C.2. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Rep. (×) Experimental, (■) Brauer [1], (+) Carman [2], (○) Cheng [3], (●) Foumeny et al [4], (▲) Gibilaro et al [5], (◆) Handley-Heggs [6], (○) Hicks [7], (△) Jones-Krier [8], (□) KTA [9], (□) Kuerten[10], (◆) Kuo-Nydegger [11], (△) Lee-Ogawa[12], (○) Mac Donald et al [13], (◇) Montillet et al [14], (+) Morcom [15], (▲) Özahi et al [16], (◆) Rose [17], (■) Rose-Rizk [18], (●) Wentz-Thodos [19], (△) Yu et al [20]. (a) 25°C-2.5 kg/cm ² , (b) 400°C-2.5 kg/cm ² y (c) 400°C-3.0 kg/cm ² . Información para el CAT-B.	C-4
Figura C.3. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Rep. (×) Experimental, (■) Brauer [1], (+) Carman [2], (○) Cheng [3], (●) Foumeny et al [4], (▲) Gibilaro et al [5], (◆) Handley-Heggs [6], (○) Hicks [7], (△) Jones-Krier [8], (□) KTA [9], (□) Kuerten[10], (◆) Kuo-Nydegger [11], (△) Lee-Ogawa[12], (○) Mac Donald et al [13], (◇) Montillet et al [14], (+) Morcom [15], (▲) Özahi et al [16], (◆) Rose [17], (■) Rose-Rizk [18], (●) Wentz-Thodos [19], (△) Yu et al [20]. (a) 25°C-2.5 kg/cm ² , (b) 400°C-2.5 kg/cm ² y (c) 400°C-3.0 kg/cm ² . Información para el CAT-C.	C-5
Figura C.4. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Rep. (×) Experimental, (■) Brauer [1], (+) Carman [2], (○) Cheng [3], (●) Foumeny et al [4], (▲) Gibilaro et al [5], (◆) Handley-Heggs [6], (○) Hicks [7], (△) Jones-Krier [8], (□) KTA [9], (□) Kuerten[10], (◆) Kuo-Nydegger [11], (△) Lee-Ogawa[12], (○) Mac Donald et al [13], (◇) Montillet et al [14], (+) Morcom [15], (▲) Özahi et al [16], (◆) Rose [17], (■) Rose-Rizk [18], (●) Wentz-	

Thodos [19], (Δ) Yu et al [20]. (a) 25°C-2.5 kg/cm², (b) 400°C-2.5 kg/cm² y (c) 400°C-3.0 kg/cm².
Información para el CAT-D. C-6

Figura C.5. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Rep. (\times) Experimental, (\blacksquare) Brauer [1], ($+$) Carman [2], (\circ) Cheng [3], (\bullet) Foumeny et al [4], (\blacktriangle) Gibilaro et al [5], (\blacklozenge) Handley-Heggs [6], (\odot) Hicks [7], (\triangle) Jones-Krier [8], (\square) KTA [9], (\square) Kuerten[10], (\blacklozenge) Kuo-Nydegger [11], (\triangle) Lee-Ogawa[12], (\circ) Mac Donald et al [13], (\diamond) Montillet et al [14], ($+$) Morcom [15], (\blacktriangle) Özahi et al [16], (\blacklozenge) Rose [17], (\blacksquare) Rose-Rizk [18], (\bullet) Wentz-Thodos [19], (Δ) Yu et al [20]. (a) 25°C-2.5 kg/cm², (b) 400°C-2.5 kg/cm² y (c) 400°C-3.0 kg/cm².
Información para el CAT-E. C-7

HIPÓTESIS

- Las partículas de mayor tamaño y/o forma irregular representan la mejor opción para controlar la caída de presión en lechos empacados al conformar un lecho empacado en el que existe una menor fricción entre el fluido circulante y las partículas del sólido.
- Al causar una expansión en el volumen de un fluido gaseoso generando una mayor fricción con las partículas del lecho empacado, el incremento en la temperatura tiene un efecto positivo en la caída de presión.
- Las correlaciones de caída de presión reportadas en la literatura que no consideran explícitamente los efectos de pared no deberán ser utilizadas en su forma original para simular lechos empacados en la región $d_t/d_{p,e} < 10$, al exhibir desviaciones superiores al 15%.
- Las correlaciones de caída de presión reportadas en la literatura que consideran explícitamente los efectos de pared podrán utilizarse con reservas en la región de $d_t/d_{p,e} < 10$, reportando mayores desviaciones en tanto dicha relación disminuya y la morfología de partícula sea más irregular.
- Las correlaciones de caída de presión en su forma reajustada tienen niveles de precisión por encima del 95%, representando una opción elegible para fines de simulación.

RESUMEN

Los lechos empacados son sistemas compactos de contacto sólido-fluido (líquido o gas), de amplio uso debido a la simplicidad de su configuración, con gran diversidad de aplicaciones en el ámbito industrial. Al ser aplicados para llevar a cabo reacciones químicas de naturaleza exotérmica, los reactores de lecho fijo son ofrecidos en una configuración de multi-tubos, usualmente embebidos en una coraza, a través de la cual se hace fluir un fluido de control térmico. Estos equipos se componen de un gran número de tubos largos, con una alta relación longitud a diámetro interno del tubo (L/d_i), con el fin de disminuir los gradientes radiales de temperatura y optimizar la relación entre el área de intercambio de calor y el volumen del reactor. El uso de tubos de diámetro pequeño puede resultar en velocidades superficiales del fluido relativamente altas, lo que podría incrementar de manera notable la caída de presión (ΔP). Para mantener el ΔP en el lecho en niveles aceptables sin afectar la productividad del proceso, el tamaño de las partículas para empacar los tubos debe definirse cuidadosamente, siendo recomendable el uso de partículas relativamente grandes lo que resulta en una relación de diámetro interno de tubo a diámetro de partícula (d_t/d_p) bajo. Desde un punto de vista técnico y económico, una predicción adecuada de la caída de presión es relevante para dimensionar adecuadamente el reactor y para establecer condiciones de proceso adecuadas que permitan alcanzar los niveles de productividad deseados. Con este propósito, diversos autores han propuesto ecuaciones semi-empíricas con las que se pretende extender la flexibilidad de las limitaciones en cuanto a la morfología de las partículas, el Re_p y la relación $d_t/d_{p,c}$. Sin embargo, tales correlaciones deben ser verificadas y calificadas antes de su aplicación en la simulación de reactores catalíticos.

Tomando en consideración lo anterior, el enfoque del presente trabajo se divide en dos partes. La primera parte incluye actividades para cuantificar experimentalmente la caída de presión en un tubo empacado con una baja relación $d_t/d_{p,c}$. Para lo cual fue necesario generar información experimental propia de caída de presión dentro de la región de alto efecto de pared ($d_t/d_{p,c} < 6$) y, con la finalidad de generar información experimental en una región amplia de condiciones de proceso y configuración de partícula. Pretendiendo aplicar los datos resultantes en el contexto comercial, se varió la temperatura, la presión y el flujo de alimentación de gas, empacando el tubo de proceso con cinco soportes comerciales de catalizador diferentes, con morfologías y tamaños diversos.

La segunda parte es realizada desde un punto de vista teórico, la cual consiste en evaluar a detalle un selecto grupo de correlaciones de ΔP de la literatura que involucran o no el efecto de pared en sus términos utilizando los datos experimentales de caída de presión obtenidos en la primera parte. Con el propósito de valorar la precisión con la que dichas correlaciones reproducen la información experimental disponible, se utilizan herramientas gráficas (cualitativas) y analíticas (cuantitativas). Debido a que las correlaciones seleccionadas exhibieron, en casi todos los casos, una pobre capacidad para reproducir la información experimental, dicha información es utilizada para realizar el reajuste de los parámetros correspondientes. En correspondencia a todo lo referido previamente, este trabajo de tesis ha sido estructurado de la siguiente manera:

El Capítulo 1 se encuentra enfocado en ubicar al lector en los aspectos teóricos clave para el estudio de la caída de presión que experimentan los lechos empacados en general al hacer pasar un fluido a través de ellos. El trabajo luego se direcciona al estudio del tipo de lechos empacados, aplicados a reacciones químicas exotérmicas, que se caracterizan por su baja relación d_t/d_p . De manera particular, dentro de los fundamentos teóricos de caída de presión, se hace referencia a las investigaciones de diversos autores que han realizado estudios relevantes aplicados a correlaciones de caída de presión con fines predictivos. Asimismo, en este capítulo se analizan a detalle las principales variables que afectan el estudio de caída de presión, así como una breve descripción de los modelos hidrodinámicos aplicados a tubos empacados de baja relación $d_t/d_{p,e}$.

En el Capítulo 2 se concentran los procedimientos experimentales seguidos para caracterizar, en términos de tamaño de partícula, a los soportes de catalizador utilizados para empacar el tubo de proceso y, posteriormente, los ensayos formales para cuantificar la caída de presión. En la parte de la caracterización de los materiales, se describen los aspectos del muestreo y se detallan el tipo de mediciones partícula a partícula para determinar longitudes, diámetros, etc. También se ofrecen ecuaciones para calcular algunas propiedades promedio de interés de los sólidos tales como densidades, esfericidad, fracción hueca, etc. Al final del capítulo se presenta información relativa al sistema experimental utilizado para generar los datos de caída de presión, además de ofrecer detalles de la metodología y el protocolo de operación de dicho sistema a diferentes condiciones de proceso.

En el Capítulo 3 se presentan y discuten los resultados experimentales derivados de la caracterización de las partículas que componen a los diferentes soportes de catalizador, y posteriormente aquellos asociados a los ensayos formales de caída de presión. A partir de la información relativa a las propiedades de partícula promedio, se hace una jerarquización de los materiales investigados en función a su diámetro (equivalente) de partícula (la relación $d_t/d_{p,e}$), fracción hueca. Los resultados de caída de presión son presentados en forma gráfica, mediante una serie de figuras en

las cuales se puede valorar la forma en la que el ΔP está influenciado por la configuración de la partícula y las condiciones de proceso (flujo de alimentación de aire, temperatura y presión).

En el Capítulo 4 se presenta y analiza a detalle la capacidad de cinco correlaciones tomadas de la literatura (Ergun, Tallmadge, Liu-Ergun, Harrison y col. y Einfeld-Schnitzlein) para reproducir la información experimental de caída de presión ofrecida en el Capítulo 3. La capacidad predictiva de las correlaciones es analizada utilizando herramientas tanto gráficas (cualitativas) como analíticas (cuantitativas). En este último rubro, se calcularon errores relativos porcentuales de tres tipos, %RPE, % MRPE y % ORPE, a través de los cuales se pudo determinar si las desviaciones en las predicciones dependen de las condiciones de proceso particulares o no. Debido a que las predicciones de caída de presión de la mayoría de las correlaciones seleccionadas no presentan resultados satisfactorios en cuanto a su capacidad para reproducir los datos experimentales disponibles, los parámetros asociados a dichas correlaciones se reestimaron mediante algoritmos de regresión. Un juego de parámetros por combinación correlación-catalizador, fue a final de cuentas estimado. En la segunda parte de este Capítulo 4 se describe la metodología utilizada para la estimación de tales parámetros y se reportan los resultados correspondientes incluyendo información estadística para la regresión y para los parámetros individuales. La capacidad de predicción de las correlaciones en su forma reajustada es valorada gráficamente, mediante gráficos de paridad, y analíticamente mediante el cálculo de errores porcentuales relativos, %RPE, % MRPE y % ORPE. En las correlaciones ajustadas, el mayor ORPE fue de 4 % mientras que en las correlaciones originales el máximo valor fue superior a 80 %.

Para finalizar, en el Capítulo 5, se ofrecen las conclusiones correspondientes a este trabajo de tesis, en donde se analizan los principales resultados obtenidos y se comparan con la hipótesis planteada. Es importante hacer mención que esta tesis tiene el objetivo de ser un fundamento para próximas investigaciones relacionadas al estudio detallado de la hidrodinámica de lechos empacados de baja relación $d_p/d_{p,c}$, a partir de simulaciones y modelamiento del comportamiento del fluido a través del lecho empacado.

Este trabajo de tesis incluye, al final, cinco Apéndices que incluye información de soporte a los diferentes capítulos. En particular, el Apéndice A presenta a detalle la medición experimental de las dimensiones de cada partícula, las cuales fueron muestreadas para determinar algunas propiedades promedio de las mismas para cada soporte de catalizador. El Apéndice B reúne el estudio de diversas correlaciones para el cálculo de la fracción hueca aplicadas a diferentes morfologías de soportes de catalizador, que son producto de estudios previos referidos en la literatura, tales ecuaciones se evaluaron y compararon con respecto a la fracción hueca obtenida experimentalmente. El Apéndice C representa un compendio de 20 correlaciones adicionales tomadas de la literatura, con las que se pretende demostrar de manera gráfica el comportamiento simultáneo de la caída de presión utilizando los resultados experimentales

correspondientes a cada soporte de catalizador así como la desviación con respecto a la obtenida de manera experimental. En el Apéndice D se refieren un par de trabajos que fueron presentados en congresos, y que sirvieron para difundir parte de la información que se incluye en esta tesis. En Octubre del 2016 se ofreció una presentación oral en la LVI Convención Nacional IMIQ (Instituto Mexicano de Ingenieros Químicos), mientras que en Junio de 2017 se presentó un póster en el congreso internacional ISAHOF (International Symposium of Advances in the Hydroprocessing of Oil Fuels) - 2017. En el Apéndice E, finalmente, se presenta una copia de la autorización de un Derecho de Autor otorgado al IMP en octubre del 2016 por el Registro Público de Derechos de Autor, en el cual se reportó sobre la metodología novedosa e implementada en los laboratorios del IMP, desarrollada para medir experimentalmente caídas de presión en tubos largos, de diámetro pequeño.

OBJETIVOS

General

Investigar de manera experimental y teórica la caída de presión (ΔP) en un tubo empacado con soportes de catalizador comerciales de diferentes morfologías y tamaños, de baja relación diámetro de tubo-diámetro de partícula ($d_t/d_{p,e}$), variando condiciones de temperatura, presión de entrada y número de Reynolds de partícula (Re_p).

Específicos

- Generar datos experimentales propios de caída de presión dentro de la región de efecto de pared, $d_t/d_{p,e}$ menor a 10, empacando el tubo de proceso con soportes de catalizador comerciales con diferentes morfologías y tamaños, variando condiciones proceso en términos de temperatura (25 a 400 °C), presión de entrada (2.5 – 3.0 kg/cm² y flujo de aire de entrada (1,000 a 6,000 slph).
- Verificar la precisión de al menos 10 correlaciones tomadas de la literatura, para reproducir los datos experimentales de caída de presión.
- Obtener correlaciones reajustadas recalculando los coeficientes respectivos asociados al término viscoso e inercial mediante un proceso de regresión, utilizando los datos experimentales de caída de presión.

NOMENCLATURA

Símbolos romanos

A	factor de frecuencia
a	primer parámetro utilizado en la ecuación de Peng Robinson
ABD	densidad aparente en el lecho
A_{flujo}	área del flujo
$A_{p,i}^{\text{ext}}$	área externa de cada partícula i
A_w	primer término de efecto de pared aplicado en la correlación de ΔP de Eisfeld-Schnitzlein
A_1	área lateral asociada a la forma geométrica de los lóbulos
A_2	área entre cada cilindro y cada uno de los lados de los lóbulos
b	segundo parámetro utilizado en la ecuación de Peng Robinson
B_w	segundo término de efecto de pared aplicado en la correlación de ΔP de Eisfeld-Schnitzlein
C_r	serie de variables dependientes de la función objetivo
$DEN_{m,p}$	densidad promedio de partícula
$d_{c,i}$	diámetro de perforación para cada partícula i.
$d_{p,i}$	diámetro de la partícula i
DPIC	indicador de celda de presión diferencial
$d_{m,p}$	diámetro promedio de partícula
d_p	diámetro de partícula de una morfología esférica
$d_{p,e}$	diámetro de partícula equivalente
d_t	diámetro de tubo interno
DRP	<i>dense random packing</i> - empaçado aleatorio denso
E	energía de activación
FIC	indicador y controlador de flujo
f_k	factor de fricción
F_{tab}	valor tabulado
F_{reg}	valor calculado de regresión mediante la prueba estadística de Fisher
$F_{v,\text{aire}}^0$	flujo volumétrico de aire a la entrada del tubo empaçado medido a condiciones estándar
g_z	componente axial de la gravedad
GHSV	<i>gas hourly space velocity</i> - velocidad espacial hora para fluidos en fase gaseosa
G_m	flujo másico o molar
G_v	caudal del fluido alimentado
K	primer parámetro de permeabilidad del modelo hidrodinámico
K_z	segundo parámetro de permeabilidad del modelo hidrodinámico
\bar{k}	vector de parámetros
$K_{L,\text{am}}$	término inercial
K_{turb}	término viscoso
K_1	coeficiente correspondiente al término viscoso en la correlación de ΔP de Eisfeld-Schnitzlein
k_1	primer coeficiente del término inercial en la correlación de ΔP de Eisfeld-Schnitzlein

k_2	segundo coeficiente del término inercial en la correlación de ΔP de Einfeld-Schnitzlein
L	longitud del tubo
$L_{m,p}$	longitud promedio de partícula
$L_{p,i}$	longitud de la partícula i
LRP	<i>loose random packing</i> - empaçado aleatorio libre
MFC	controlador de flujo másico térmico
MRPE	<i>mean relative percent error</i> -media de error relativo porcentual
M_w	peso molecular del gas
n_p	número de partículas muestreadas
OD	<i>outside diameter</i> -diámetro nominal
ORPE	<i>overall relative percent error</i> -porcentaje de error relativo global
p	número de parámetros por correlación
P_c	presión crítica
PI	indicador de presión
P_i^o	presión a la entrada del tubo empaçado del i -ésimo experimento
PRP	<i>pour random packing</i> -empaçado aleatorio vertiendo partículas
p_z	componente axial de presión
r	velocidad de reacción ó posición radial
R	constante de los gases ideales
$r_{c,t}$	radio del lóbulo
Re_p	número de Reynolds de partícula
Re'_p	número de Reynolds de Ergun
$RPE_{i,j}$	<i>relative percent error</i> – error relativo porcentual para cada experimento a una condición específica
slph	<i>standard liters per hour</i> - litros estándar por hora
T	temperatura
T_c	temperatura crítica
TIC	indicador y controlador de temperatura
TSS	suma de cuadrados de la regresión
T_r	temperatura reducida
P	presión total
P_c	presión crítica
P_i	presión parcial del componente i
RSS	suma de cuadrados residuales
t	tiempo
T_c	temperatura crítica
U_b	velocidad en el bulto
U_w	velocidad en la pared
V	volumen molar
v	velocidad superficial promedio del fluido
V_c	volumen crítico
$V_{p,i}$	volumen ocupado por cada partícula i
v_r	velocidad radial
$V_{i,p}$	volumen ocupado de las partículas i muestreadas
v_z	velocidad en la coordenada axial
w	factor acéntrico

WHSV	<i>weight hourly space velocity</i> - velocidad espacial hora base peso
$W_{p,i}$	masa de las partículas <i>i</i> muestreadas
y_i	composición del componente <i>i</i>
z	posición axial

Símbolos griegos

α	parámetro correspondiente al término viscoso ó valor asintótico de la fracción hueca ó nivel de significancia estadística
β	parámetro correspondiente al término inercial ó parámetro utilizado en el calculo de fracción hueca.
β_k	parámetro estimado a partir de la función objetivo
γ	parámetro de la ecuación de Benyahia para el cálculo de fracción hueca.
γ_r	vector de las respuestas experimentales
ΔP	caída de presión
$\Delta P_{i,j}$	caída de presión del experimento <i>i</i> medida en la condición <i>j</i> .ésima de $F_{v,aire}^0$
$\widehat{\Delta P}_{i,j}$	caída de presión calculada para el experimento <i>i</i> a la condición de flujo <i>j</i>
$\Delta P_{i,j}^{rel}$	caída de presión relativa
δ	vector que incluye a los dos coeficientes de caída de presión
ε	fracción hueca del lecho
ε_m	fracción hueca promedio del lecho
$\bar{\varepsilon}_r$	vector de errores
φ	esfericidad
φ_m	esfericidad promedio
$\bar{\eta}$	vector de respuestas calculadas
μ	viscosidad del fluido
ρ	densidad del fluido
σ_k	desviación estándar

CAPÍTULO 1.

ASPECTOS TEÓRICOS DE CAÍDA DE PRESIÓN

Sumario del Capítulo:

En este Capítulo se ofrecen aspectos generales sobre la caída de presión que experimenta un fluido al atravesar un lecho empacado. Se presenta información relativa a lechos empacados, sistemas relativamente simples ampliamente utilizados en la industria para llevar a cabo operaciones unitarias y como parte central en procesos en los cuales existe reacción química catalizada por un material sólido. Particularmente, la atención se enfoca sobre lechos empacados en los cuales las reacciones químicas son exotérmicas, caracterizados por tener una baja relación de diámetro de tubo a diámetro (equivalente) de partícula, $d_t/d_{p,e}$, y cuya hidrodinámica no puede ser descrita mediante los aproximaciones convencionales debido a influencia de efectos de pared cuando la $d_t/d_{p,e}$ es inferior a 10. Desde la perspectiva del diseño de reactores es sabido que la hidrodinámica del lecho tiene influencia sobre el transporte de masa y calor y que, por lo tanto, deben ser abordados de manera concertada. A nivel macro, una predicción adecuada de la caída de presión es relevante para dimensionar adecuadamente el reactor y para establecer condiciones de proceso adecuadas que permitan alcanzar los niveles de productividad deseados. Se ofrecen en el Capítulo algunos de los fundamentos teóricos de la caída de presión, haciendo referencia a diversos estudios relevantes reportados en la literatura los cuales incluyen tanto aspectos experimentales como teóricos, dentro de estos últimos poniendo atención a correlaciones de caída de presión con fines predictivos. Se analizan posteriormente, las principales variables que tienen incidencia sobre la caída de presión, separando aquellas asociadas al proceso (e.g., velocidad superficial promedio del fluido y número de Reynolds de partícula Re_p), de las relacionadas con la partícula/lecho (e.g., fracción hueca promedio, diámetro equivalente de partícula, etc.).

1.1 Lechos empacados

Los lechos empacados son sistemas compactos de contacto sólido-fluido (líquido y/o gas) que han tenido mucho éxito debido a que son configuraciones relativamente simples, a los cuales se les ha encontrado una gran diversidad de aplicaciones en el contexto industrial. De manera particular, estos sistemas han sido ampliamente utilizados para efectuar operaciones unitarias que involucran transferencia de masa y/o calor (e.g., absorción, secado, etc.), así como reacciones químicas catalizadas por materiales sólidos. En la industria de la refinación del crudo y la petroquímica, son innumerables los ejemplos de aplicaciones de lechos fijos para llevar a cabo reacciones químicas heterogéneas y recientemente, el uso de estos sistemas se ha extendido a reacciones bioquímicas de tipo enzimático [1]. Una de las principales bondades que ofrecen los lechos empacados es que exhiben una alta superficie de contacto entre el sólido y el fluido circulante, lo cual promueve de manera adecuada los procesos de transferencia de masa y/o calor [2]. Dichos fenómenos, sin embargo, se encuentran usualmente influenciados por las propiedades hidrodinámicas del lecho, dentro de las cuales la caída de presión que experimenta el fluido al circular a lo largo del lecho empacado merece una especial atención.

1.1.1 Lechos empacados de baja d/d_p

En el caso particular de configuraciones de lecho empacado con una relación de diámetro de tubo a diámetro de partícula (d/d_p) relativamente baja, los efectos de pared empiezan a incidir de manera determinante en la hidrodinámica, requiriendo ser tratados de una manera adecuada para una descripción correcta del movimiento del fluido en los intersticios del lecho empacado, como será referido más adelante [3].

En algunos procesos catalíticos heterogéneos sólido-gas en los que las reacciones químicas involucradas son mediana o altamente exotérmicas, por ejemplo, la oxidación (parcial) de hidrocarburos, el uso de reactores de lecho fijo sigue siendo preferida en comparación con otras configuraciones de reactor como por ejemplo los reactores de lecho fluidizado confinado. Los reactores empacados suelen ser, en general, configuraciones más simples que han sido estudiadas de manera más extensiva, además de que su operación representa menores costos de operación y mantenimiento debido a que, a diferencia de los lechos fluidizados, no se genera erosión en las paredes del reactor por la circulación del catalizador, además de que no se experimentan mermas en el inventario catalítico debido a la atrición de las partículas sólidas debida al movimiento [4]. En la actualidad existen, de hecho, diversos procesos catalíticos a escala industrial en operación que emplean lechos fijos para llevar a cabo reacciones exotérmicas, como por ejemplo la oxidación parcial de etileno para producir óxido de etileno [5] o la conversión de o-xileno hacia anhídrido ftálico [6].

Cuando son aplicados en procesos que involucran reacciones de naturaleza exotérmica, los reactores de lecho fijo son ofrecidos en una configuración de multi-tubos, usualmente embebidos en una coraza, a través de la cual se hace fluir un fluido de control térmico, es decir, un medio de enfriamiento externo que remueve el calor generado por la transformación de los reactivos hacia productos. Los reactores de lecho fijo multi-tubulares con enfriamiento externo están compuestos de un gran número (cientos o incluso miles) de tubos largos con una alta relación longitud a diámetro interno del tubo (L/d_i), ver Figura 1.1. En la literatura se encuentra que este tipo de tubos tienen diámetros entre 1 y 1.5 pulgadas, lo que permite disminuir los gradientes radiales de temperatura a nivel intra-reactor así como optimizar la relación entre el área de intercambio de calor y el volumen del reactor [7]. Sin embargo, el uso de tubos de diámetros pequeños incrementa la velocidad superficial del fluido, lo que usualmente se traduce en una mayor caída de presión a través de cada tubo empacado. Para mantener la caída de presión en el lecho en niveles aceptables sin afectar la productividad del proceso, el tamaño de las partículas empacadas en los tubos debe definirse cuidadosamente, de hecho, se recomienda el uso de partículas relativamente grandes, lo que se traduce en una relación de diámetro interno de tubo a diámetro de partícula, d_i/d_p , relativamente bajo, típicamente menor a 5 [2], [8]. Con la finalidad de mantener la eficiencia del catalizador a nivel de partícula, considerando que se requiere de partículas relativamente voluminosas, es evidente que el tamaño de la partícula debe equilibrarse correctamente con la superficie externa de la partícula y su morfología, tanto como sea posible, con la finalidad de mantener los valores del factor de efectividad tan alto como sea posible [9]. Tomando en cuenta lo anterior, el uso de soportes catalíticos con alta conductividad térmica impregnados con fase activa en la superficie exterior, suele ser una práctica recomendable y conveniente para catalizar reacciones exotérmicas.

Un lecho empacado es un conjunto de partículas que constituyen la resistencia al paso de un fluido. El gas penetra el lecho y fluye a través de los intersticios entre las partículas. A la fracción del lecho que no se encuentra ocupada por partículas se le llama fracción hueca o porosidad del lecho, la cual aumenta de manera no lineal en relación al d_i/d_p del lecho empacado en la región en la que los efectos de pared son dominantes, convencionalmente cuando $d_i/d_p < 10$. Desde un punto de vista técnico y económico, es obvio que la cuantificación precisa de la pérdida de presión en los lechos empacados es de gran importancia para definir la inversión inicial y los costos relativos de operación y dimensionamiento del equipo de bombeo y compresión, así como detectar el malfuncionamiento del reactor durante su operación y tomar acciones correctivas [10].

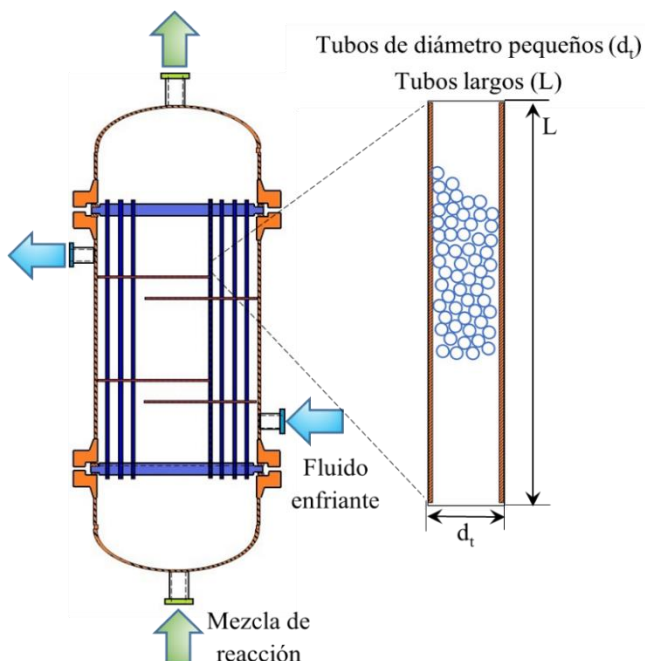


Figura 1.1. Representación de un reactor multi-tubular de lecho fijo con enfriamiento externo aplicado a reacciones químicas altamente exotérmicas. Adaptado de la referencia [11].

1.1.2 Efecto de la caída de presión en la eficiencia del reactor

La disminución en la energía del fluido mientras pasa a través del lecho empacado resulta en una pérdida gradual de presión a lo largo del tubo. Los cambios de presión a lo largo del reactor pueden tener también un efecto notable en las velocidades de reacción las cuales, en el caso particular de las reacciones químicas que involucran especies en fase gas, dependen de la presión parcial de los reactantes. La disminución en la velocidad de reacción en la dirección axial como consecuencia del consumo de los reactantes en los sitios activos del catalizador, puede verse magnificada como consecuencia de la caída de presión asociada al lecho catalítico. Para ejemplificar lo anterior apoyados de un caso práctico, se analiza brevemente el proceso de síntesis de metanol a partir de la reacción entre el CO_2 y el H_2 , un proceso exotérmico que tiene una entalpía de reacción estándar de aprox. 91 kJ/mol, que se reporta en la ref. [12]. La síntesis de metanol tiene lugar sobre un catalizador de cobre y óxido de zinc soportados en alúmina ($\text{CuO-ZnO-Al}_2\text{O}_3$) la cual, a escala industrial, se lleva a cabo en reactores multi-tubulares de lechos fijos provistos con enfriamiento externo, que son operados a “alta presión”, entre 50 y 80 bar, y temperatura moderada, entre 200 y 300 °C. La Figura 1.2 muestra un gráfico de la producción másica de metanol como una función de la longitud del tubo para diferentes diámetros de partícula de catalizador. Se observa, primeramente que, para una longitud de tubo de 8 metros, la producción de metanol disminuye a medida que el diámetro de partícula también lo hace. Por ejemplo, cuando el diámetro de partícula es de

1.3 mm, la productividad de metanol medida a la salida del reactor es de 510 kg/h, mientras que la operación con una partícula de 3 mm de diámetro dicho valor se incrementa a 530 kg/h, lo que representa un aumento relativo de casi 4 %. Se nota también que la reducción en el diámetro de partícula empieza a tener un efecto negativo sobre la producción de metanol a partir de los 4 m de longitud de tubo, condición a la cual la caída de presión del lecho comienza a ser más importante en el proceso. Esta disminución en la producción de metanol puede ser explicada en términos de una reducción en la presión parcial de los reactivos lo cual, desde la perspectiva cinética y tomando en consideración que se trata de una reacción en fase gas, tiene un impacto negativo en la velocidad de reacción, ver ec. 1.1a y 1.1b. Notar que la ec. 1.1c muestra que la velocidad de reacción depende de la presión total del sistema elevada a la suma de los órdenes parciales correspondientes los cuales se denotan por alfa y beta; un incremento en la caída de presión tendrá, consecuentemente, un efecto negativo en el rendimiento del producto principal. Este efecto sería más evidente en tanto los órdenes de reacción sean mayores [13].

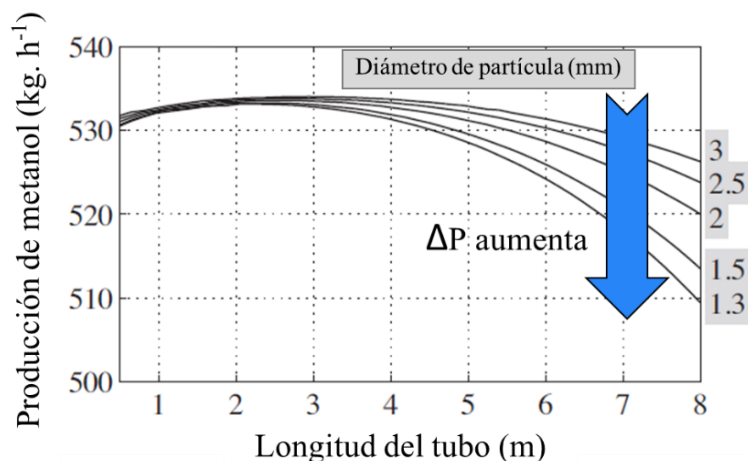


Figura 1.2. Producción de metanol en un reactor de lecho empacado como una función de la longitud de tubo para diferentes diámetros de partícula [12].

$$r_{\text{CO}_2(\text{g}) + \text{H}_2(\text{g}) \rightarrow \text{MeOH}(\text{g})} = A \exp\left[-\frac{E}{RT}\right] P_{\text{CO}_2}^\alpha P_{\text{H}_2}^\beta \quad \text{ec. 1.1a}$$

$$P_i = P y_i \quad \text{ec. 1.1b}$$

$$r_{\text{CO}_2(\text{g}) + \text{H}_2(\text{g}) \rightarrow \text{MeOH}(\text{g})} = A \exp\left[-\frac{E}{RT}\right] P^{(\alpha+\beta)} y_{\text{CO}_2}^\alpha y_{\text{H}_2}^\beta \quad \text{ec. 1.1c}$$

Por otro lado, la Figura 1.3 muestra un gráfico en el que se puede visualizar las variaciones de la caída de presión del reactor de lecho empacado con respecto a la variación simultánea de la longitud de tubo y el diámetro de partícula de catalizador. Se observa que la caída de presión aumenta de manera notable al incrementar la longitud de tubo y a

menor diámetro de partícula. Esto permite demostrar la importancia de tener una buena definición de la relación d_t/d_p con el fin de modular la caída de presión en el sistema y minimizar su efecto sobre la eficiencia del proceso. Tomando como referencia la información presentada en la Figura 1.3, un diámetro de partícula de 1.5 mm, y una longitud de tubo de 4 m, la caída de presión corresponde a 0.7 bar, sin embargo, si la longitud del tubo se incrementa al doble, la caída de presión se incrementa hasta 7 veces.

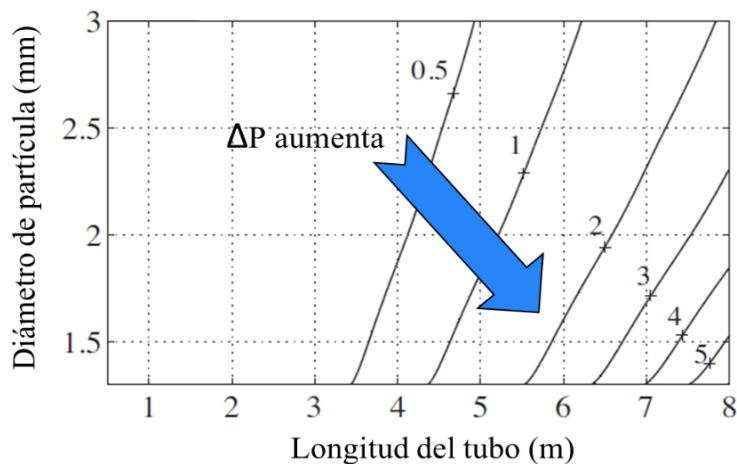


Figura 1.3. Caída de presión a la salida del reactor de lecho empacado como una función de la longitud del tubo y el diámetro de partícula. Gráfico tomado de la ref. [12].

1.2 Factores que impactan la caída de presión en lechos empacados

La caída de presión global representa al gradiente de presión (ΔP) medido entre la entrada y la salida del tubo empacado, es decir, a lo largo de la longitud del tubo cuya longitud estaría definida por L . El ΔP , de manera particular, está influenciado por factores asociados con el proceso (longitud y diámetro interno de tubo, caudal alimentado, propiedades físicas del fluido, etc.), la naturaleza de las partículas en el tubo (tamaño, forma y tipo de superficie y orientación), y la combinación de ambos como es el caso de las variables diámetro interno de tubo a diámetro de la partícula así como la porosidad del lecho. Diversos autores han aportado valiosa información al respecto, tanto experimental como teórica, siendo algunos ejemplos de publicaciones recomendables las ofrecidas por Nemeč y Levec [14], Lindholm [15], Liu y col. [16], Macdonald y col. [17], Dullien [18] y Li y Ma [19].

La caída de presión que experimenta un fluido al atravesar un lecho empacado se origina por la fricción que existe entre el fluido circulante y las partículas que constituyen al lecho, y generalmente se evalúa utilizando la ec. 1.2. Dicha ecuación debe incorporar una expresión semi-empírica apropiada para el cálculo del factor de fricción denotado por f_k [20]. Es importante hacer mención de que para extender la aplicación del cálculo de caída de presión a partículas

de morfología no esférica, el diámetro de partícula (d_p) es reemplazado por el diámetro de partícula equivalente denotado por $d_{p,e}$.

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{(1-\varepsilon)v^2\rho}{d_{p,e}\varepsilon^3} f_k \quad \text{ec. 1.2}$$

1.2.1 Velocidad superficial promedio del fluido

La velocidad superficial promedio, v , depende del caudal de fluido alimentado (G_v) y del área de la sección transversal del tubo que corresponde al área de flujo (A_{flujio}), tal y como lo representa la ec. 1.3. El fluido de proceso, correspondiendo a un gas o vapor, se alimenta al tubo a un flujo másico (G_m) o molar constante, mientras que el G_v es una función de la densidad del fluido (ρ), la cual a su vez depende de las condiciones de presión y temperatura de la alimentación. En particular, la densidad disminuye con la temperatura teniendo un efecto positivo en el valor del caudal volumétrico y, en consecuencia, en la velocidad superficial promedio v .

$$v = \frac{G_v}{A_{\text{flujio}}} = \frac{G_m/\rho}{A_{\text{flujio}}} \quad \text{ec. 1.3}$$

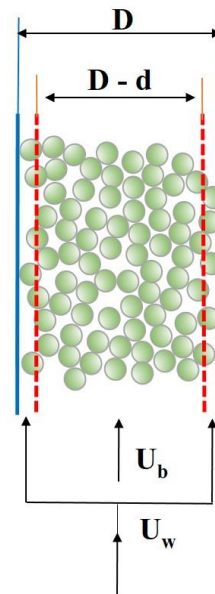


Figura 1.4. Modelo simple que muestra la distribución del fluido a través del lecho empacado, tomado de la ref. [21].

Las propiedades hidrodinámicas del lecho empacado, es decir la distribución de velocidades, se encuentran fuertemente influenciadas por la fracción hueca promedio del lecho empacado (ε_m) la cual, a su vez tiene relación con las propiedades de la partícula utilizada como empaque, de manera particular, su tamaño y morfología. Notar que la ec. 1.3 denota una dependencia cúbica del ΔP con la fracción hueca del lecho empacado. Con relación a lo anterior,

un parámetro de alta importancia en la operación de lecho empacados por su efecto en el valor de la fracción hueca y por consiguiente en la caída de presión, es la relación $d_t/d_{p,c}$. El uso de partículas grandes incrementa la fracción hueca en el lecho, generando perfiles de velocidad no uniformes con respecto a la coordenada radial [8]. Dichos perfiles también están influenciados por los efectos de pared, fenómeno que ocurre en las paredes del tubo en donde las partículas sólidas se encuentran acomodadas de manera diferente a como se encuentran en el bulto del lecho, lo que significa un aumento en la fracción hueca que se traduce en un incremento “local” de la velocidad superficial promedio (“velocidad local”). Eisfeld y Schnitzlein [22] mencionan que la región en donde se presenta la mayor fracción hueca equivale aproximadamente a medio diámetro de partícula de la pared al lecho [23], ver Figura 1.4, en donde la velocidad en la pared se expresa como U_w y la velocidad en el bulto como U_b . Conforme la posición radial se aproxima al centro del lecho la velocidad superficial promedio disminuye de manera apreciable [24] como puede ser visto en el gráfico de la Figura 1.5.

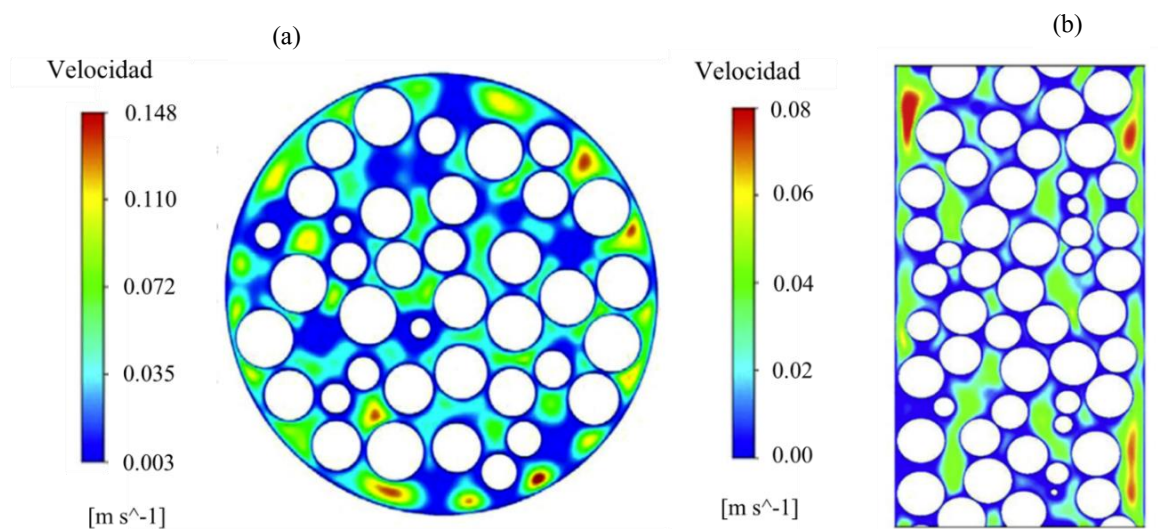


Figura 1.5. Perfiles de velocidades a lo largo de un lecho empacado al azar. (a) Distribución de velocidades visto desde la parte superior del tubo, y (b) Distribución de velocidades a lo largo del lecho empacado, tomado de la ref. [24].

Para propósitos de simulación del reactor, es sumamente importante una descripción correcta de los perfiles de velocidad donde algunos parámetros utilizados en la transferencia de masa y de calor son, por naturaleza, sensibles a los cambios en la magnitud de la velocidad superficial promedio del fluido. Vale la pena mencionar que la confiabilidad de los modelos pseudo-homogéneos de hidrodinámica compleja suelen exhibir una alta dependencia del nivel de precisión de la correlación implementada para la caída de presión [22]. Es por tanto de suma importancia, contar con

una expresión de caída de presión adecuada, al menos con un buen nivel de precisión en la región de operación de interés.

1.2.2 *Fracción hueca del lecho empacado (ϵ)*

Los reactores de lecho empacado son extensamente utilizados, como ya se mencionó anteriormente, en operaciones unitarias de transferencia de calor y masa así como en reacciones catalíticas. Sin embargo, las ventajas ofrecidas por la gran área superficial disponible para la transferencia de calor y de masa a menudo puede verse disminuidas al pretender mantener la caída de presión a lo largo del lecho empacado mediante el uso de partículas relativamente grandes, lo que traducen en valores de $d_t/d_{p,e}$ pequeños y una fracción hueca promedio de lecho mayor. El uso de este tipo de configuración de tubos tiene un impacto inevitable en la hidrodinámica el lecho, produciendo perfiles de caída de velocidad atípicos, i.e., no uniformes en la coordenada radial, que inciden de manera indirecta sobre los parámetros de transporte de calor y masa [25]. En la literatura, son diversos los estudios que se han enfocado a estudiar la conexión entre la fracción hueca y la relación $d_t/d_{p,e}$ en lechos empacados, como es el caso de Benyahia [25] y Arno de Klerk [26]. En ambos reportes se han realizado experimentos en donde comparan datos de fracción hueca promedio experimental y su contraparte calculada con correlaciones empíricas, pudiéndose cuantificar de manera aproximada la relación entre el $d_t/d_{p,e}$ del tubo empacado y su fracción hueca promedio correspondiente para diferentes tipos de partículas.

Las Figuras 1.6 y 1.7 muestran información experimental y teórica de la fracción hueca como función de la relación $d_t/d_{p,e}$ para lechos empacados con partículas esféricas y cilíndricas, respectivamente. En ambos casos, es evidente que la fracción hueca es extremadamente sensible a la relación $d_t/d_{p,e}$ cuando esta última se ubica por debajo de 10. Bajo tales condiciones los llamados “efectos de pared” incrementan su importancia relativa a los “efectos de bulto” notándose que la fracción hueca promedio aumenta exponencialmente conforme $d_t/d_{p,e}$ decrece [25]. Mientras que a $d_t/d_{p,e}$ mayor a 10, la fracción hueca puede considerarse como prácticamente como un valor constante [27]. En términos de la caída de presión asociada a un lecho empacado, considerando su dependencia con la fracción hueca, es evidente que la cantidad de sólido en contacto con el fluido circulante en el lecho empacado, tiene un impacto determinante. La cuantificación de esta interacción sólido – fluido, que tiene una componente asociada a las resistencias viscosas y otra a las inerciales, es uno de los aspectos importantes en el desarrollo de los modelos hidrodinámicos de lechos empacados [8]. Dicha interacción es básicamente función del número de Reynolds de partícula y de la superficie del sólido en el lecho empacado; cuando el número de Reynolds es relativamente grande (> 10) los esfuerzos de corte inercial comienzan a tener más relevancia.

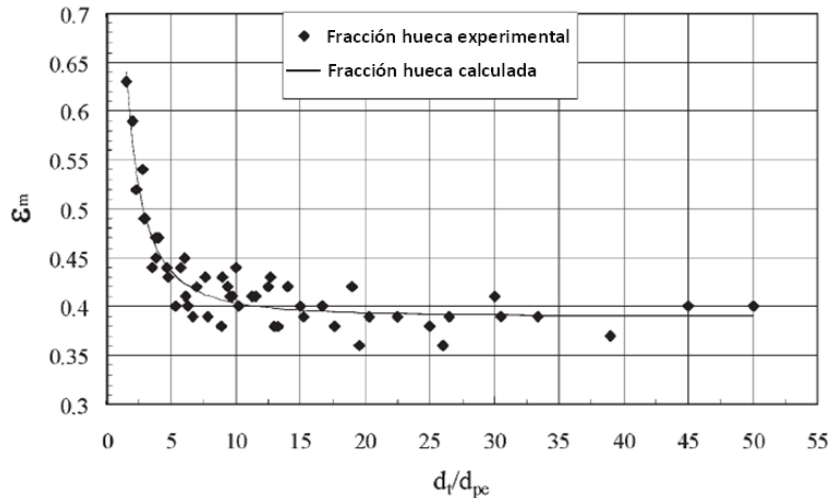


Figura 1.6. Fracción hueca promedio en lechos empacados para partículas con morfología esférica como función de la relación d_t/d_{pe} . Gráfico tomado de la ref. [25].

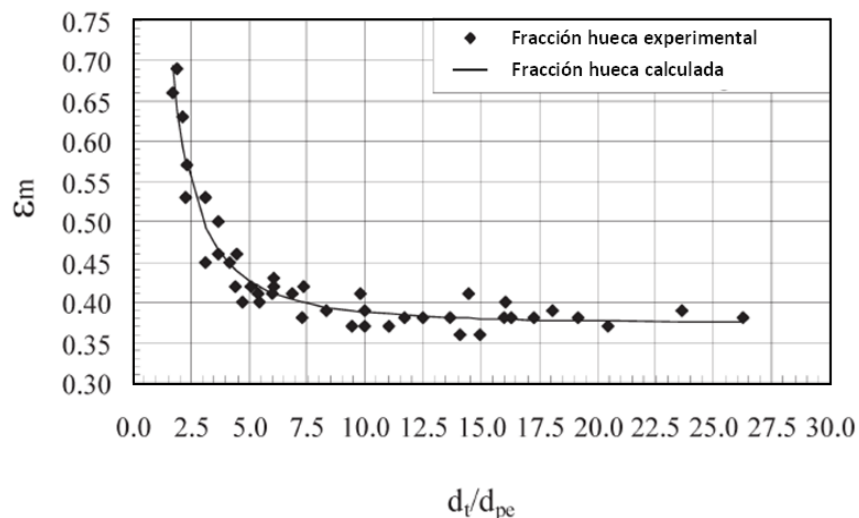


Figura 1.7. Fracción hueca promedio en lechos empacados para partículas de morfología cilíndricas como función de la relación d_t/d_{pe} . Gráfico tomado de la ref. [25].

De acuerdo con lo reportado por Leva [28] y A. Ribeiro et al [23] quienes realizaron estudios experimentales en lechos empacados al azar, utilizando partículas diferentes esféricas y no esféricas, existen otros factores que afectan los cantidad de espacios vacíos en el lecho, destacando la morfología del material y el tipo de superficie, la distribución de la partícula debido al tamaño además de la gravedad específica de las partículas empacadas, así como el método de cargado de las partículas al tubo. Con respecto a este último punto, es importante hacer mención que a nivel industrial se reconocen tres métodos de cargado de partículas en lechos empacados importantes que permiten predecir la fracción

hueca al momento de empacar el tubo. El método conocido como LRP (por sus siglas en inglés *Loose Random Packing* – empacado aleatorio libre) consiste en apilar de forma individual los elementos a empacar, sin embargo, ésta técnica suele utilizarse cuando se dispone de partículas relativamente grandes ($d_t/d_{p,e} < 3$) y de morfología homogénea debido a que el número de partículas empacadas suele ser cuantificada de manera individual, situación que resulta impráctica para el caso de reactores empacados. Este método, además, conduce a una medición muy precisa del porcentaje de espacios vacíos en el lecho debido a que el número de piezas se conoce con exactitud, con un valor de fracción hueca asociada típicamente entre 0.40 y 0.41. El segundo método se denota como PRP (*Poured Random Packing* – empacado aleatorio vertiendo partículas), el cual consiste en verter el contenido de sólidos a empacar directamente al contenedor sin asentar el recipiente, exhibiendo una fracción hueca de aproximadamente 0.375-0.391. Finalmente, el método conocido como DRP (*Dense Random Packing* – empacado aleatorio denso) es una tercera opción, muy similar al PRP, con la única diferencia de que el recipiente que contiene el material empacado se agita o asienta con el fin reducir los espacios vacíos del lecho, reportando valores de fracción hueca de lecho promedio entre 0.359-0.375.

A pesar de los estudios realizados, actualmente no existe una correlación única capaz de predecir con suficiente precisión los valores de fracción hueca promedio para diferentes morfologías de partícula, en un intervalo amplio de relaciones de $d_t/d_{p,e}$. Las correlaciones más confiables son, de hecho, aquellas que han sido desarrolladas para partículas esféricas y, en menor grado, cilíndricas, con tamaños relativamente homogéneos. Ante tal incertidumbre es recomendable determinar experimentalmente la fracción hueca promedio del lecho. Más recomendable aún es recurrir a la experimentación, en el caso de lechos empacados con partículas de tamaño no homogéneo y en escenarios en los cuales los tubos son empacados con más de un tipo de partícula (lechos híbridos),

Existen algunas correlaciones para morfologías de partícula relativamente complejas como cilindros huecos las cuales han sido desarrolladas incorporando aspectos teóricos y geométricos y, de estar disponibles, información experimental [25]. Algunas correlaciones, con formas distintas en parámetros y variables independientes, reportadas en la literatura para el cómputo de la fracción hueca se incluyen en trabajos de las refs. [29] a [32]. La mayoría de estas correlaciones tienen dos o tres parámetros e incluyen una relación $d_t/d_{p,e}$ [27] como variable independiente, tal como lo muestra la ec. 1.4.

$$\varepsilon = \alpha + \frac{\beta}{(d_t/d_{p,e} + \gamma)^2} \quad \text{ec. 1.4}$$

Los parámetros α , β , y γ mostrados en la ec. 1.4, que son obtenidos a partir de una regresión no lineal utilizando mediciones experimentales realizadas en un laboratorio [25], varían dependiendo del tipo de la morfología de las partículas utilizadas para empacar el tubo. De manera particular, el parámetro α representa el valor asintótico de la

fracción hueca cuando la relación $d_t/d_{p,e}$ tiende a ser muy grande, es decir, cuando los efectos de pared son despreciables y los de bulto dominan la caída de presión. Se ha notado que el valor de α se incrementa con el uso de “morfologías de partículas más complejas” como ha sido observado en el caso particular de cilindros huecos o sólidos con morfologías provistas de tri- o tetra- lóbulos. Es una desventaja que las ecuaciones empíricas utilizadas para calcular la fracción hueca promedio, además de depender de la configuración de la partícula, suelen tener validez para cierto intervalo de $d_t/d_{p,e}$. En la literatura, se han identificado ecuaciones que aplican para morfologías esféricas con d_t/d_p de 1.5 hasta 50, y 1.9 a 14.5 para cilindros perforados [25].

Con el fin de obtener una ecuación aplicable para cualquier tipo de morfología de partícula, Benyahia [25] agregó el término de esfericidad de partícula al cálculo del parámetro α como se muestra en la ec. 1.5. La esfericidad ϕ se define como la relación del área superficial de una esfera de diámetro equivalente al área superficial de la partícula a estudiar.

$$\alpha = 0.1504 + \frac{0.2024}{\phi} \quad \text{ec. 1.5}$$

Por lo tanto, la correlación que predice la fracción hueca promedio en el lecho empacado sin importar el tipo de morfología de partícula utilizada (siendo válida para $1.5 d_t/d_{p,e} < 50$ y $0.42 < \phi < 1.0$) [25] queda de la siguiente manera, ver ec. 1.6.

$$\alpha = \left(0.1504 + \frac{0.2024}{\phi} \right) + \frac{1.0814}{\left(\frac{d_t}{d_{p,e}} + 0.1226 \right)^2} \quad \text{ec. 1.6}$$

1.3 Correlaciones empíricas para predecir ΔP en lechos empacados

1.3.1 Ecuaciones que no incorporan efectos de pared

La correlación más ampliamente utilizada para evaluar el factor de fricción en lechos empacados fue propuesta en 1952 por Ergun [33] y corresponde a la expresión de la ec. 1.7, presentada abajo. En esta expresión v , ϵ_m , ρ , $d_{p,e}$ y Re_p denotan la velocidad superficial promedio del fluido, la fracción hueca promedio del lecho, la densidad del fluido, el diámetro de partícula equivalente y el número de Reynolds de partícula, respectivamente. Esta expresión aplica, de manera específica, para lechos empacados con una relación $d_t/d_{p,e} > 10$ [23] región en donde no se considera el efecto de pared de acuerdo a las referencias [34],[35],[20]. Nótese que la ec. 1.7 tiene dos sumandos, el primero llamado término viscoso y el segundo inercial.

$$f_k = 150 \frac{(1-\epsilon) \mu}{\rho v d_{p,e}} + 1.75 = 150 \frac{(1-\epsilon)}{Re_p} + 1.75 \quad \text{ec. 1.7}$$

El factor de fricción, como ya se mencionó anteriormente, depende del número de Reynolds de partícula (Re_p), de la densidad del gas que fluye a través del lecho empacado, de la velocidad superficial promedio del gas, de la viscosidad (que es también función de P y T) y del tamaño de partícula incluido como el diámetro equivalente de partícula $d_{p,e}$, como se puede observar en la ec. 1.8.

$$Re_p = \frac{\rho v d_{p,e}}{\mu} \quad \text{ec. 1.8}$$

Ziolkowska y Ziolkowski (1988) [36] sugirieron asociar el régimen de flujo para un fluido que atraviesa el lecho empacado con el número de Reynolds de partícula (Re_p) clasificándolo en laminar cuando $Re_p < 10$, de transición para $10 < Re_p < 300$, y turbulento cuando $Re_p > 300$. En algunas publicaciones, por ejemplo la ref. [11], el número de Reynolds de partícula ha sido, de manera alternativa, reemplazado por el llamado número de Reynolds de Ergun representado por Re_{Erg} o Re'_p , el cual añade al término $1 - \varepsilon$ correspondiente a la fracción de sólido que ocupa el lecho empacado, resultando finalmente en la ec. 1.9. Apegado a lo anterior, la ecuación de Ergun es aplicable en el intervalo de número de Reynolds de Ergun de 1 a 2400, tanto para partículas esféricas como no esféricas [35].

$$Re_{Ergun} = \frac{\rho v d_{p,e}}{\mu(1-\varepsilon)} = \frac{Re_p}{(1-\varepsilon)} = Re'_p \quad \text{ec. 1.9}$$

Al combinar la ec. 1.2 y la ec. 1.7 se obtiene una expresión explícita de Ergun para caída de presión, vide ec. 1.10, en la cual el primer término se conoce como término viscoso que es proporcional a la velocidad superficial promedio del fluido, y el segundo corresponde al término inercial que es proporcional al cuadrado de la velocidad superficial promedio del fluido [19]. La viscosidad aumenta con la temperatura, contrario a lo que sucede con la densidad, y tiene un efecto lineal sobre la caída de presión. Los coeficientes 150 y 1.75 son conocidos como constantes de Ergun y son los que típicamente se reportan en los libros de ingeniería química.

$$\frac{\Delta P}{L} = 150 \frac{(1-\varepsilon)^2 \mu}{d_{p,e}^2 \varepsilon^3} v + 1.75 \frac{(1-\varepsilon) \rho}{d_{p,e} \varepsilon^3} v^2 \quad \text{ec. 1.10}$$

Estando conscientes de que la ecuación de Ergun tiene limitaciones en cuanto a la morfología de las partículas, el Re_p y la relación $d_t/d_{p,e}$, diversos grupos de investigación en el mundo han enfocado parte de sus esfuerzos en modificarla o bien desarrollar correlaciones nuevas para predecir la caída de presión. La idea fue, básicamente, ofrecer expresiones que aplicaran para intervalos más amplios de Re_p y una relación de $d_t/d_{p,e}$ pequeña (menor a 10), en la cual los efectos de pared tienen influencia en la caída de presión [20]. Por ejemplo, Tallmadge [37] extendió el rango de

Re_{Ergun} de 0.1 a 100,000 modificando el término turbulento de la ecuación de Ergun original y hacerla una función de Re_p y de ε , obteniendo una correlación modificada que tiene la forma de la ec. 1.11.

$$f_k = \frac{150(1-\varepsilon)}{Re_p} + \frac{4.2}{\left(\frac{Re_p}{1-\varepsilon}\right)^{1/6}} \quad \text{ec. 1.11}$$

Recientemente, E. Erdim y colaboradores [38] publicaron un artículo sumamente útil en el que proporcionan información acerca de 37 correlaciones disponibles en la literatura para predecir la caída de presión en lechos empacados en donde incluyen el factor de fricción (f_k), incluyendo alrededor de 8 correlaciones que incorporan el régimen de los efectos de pared, algunas de ellas mediante la incorporación explícita del término $d_t/d_{p,e} < 10$. Dentro de esta publicación, los autores proponen una nueva ecuación que predice la caída de presión basada en experimentos usando agua y esferas de 9 diferentes tamaños, ec. 1.12. Dicha ecuación no considera los efectos de pared a pesar de tener un intervalo de aplicación de $0.37 < \varepsilon < 0.47$, $4 < d_t/d_{p,e} < 34$ y $2 < Re_{Ergun} < 3600$. En su trabajo, su ecuación presenta la menor desviación de los datos experimentales en comparación con las otras correlaciones mencionadas, es importante notar que la ecuación no se evaluó para condiciones e intervalos diferentes a los usados durante la experimentación.

$$f_k = \frac{(1-\varepsilon)}{Re_p} (160 + 2.81 Re_{Ergun}^{0.904}) \quad \text{ec. 1.12}$$

1.3.2 Ecuaciones que incorporan efecto de pared

Como ya fue referido anteriormente, aparte del Re_p , otra de las limitaciones de la correlación de Ergun se asocia con las predicciones a relaciones $d_t/d_{p,e}$ bajas, inferiores a 20, y más particularmente por debajo de 10, región en la cual los efectos de pared tienen una influencia relevante en la caída de presión en tubos empacados. De acuerdo a Nield [39] existen dos efectos esenciales asociados a las paredes del sistema, uno de ellos es el incremento en el rango de flujo local debido al aumento de fracción hueca en los alrededores [40] y el otro corresponde a cuando se reduce la velocidad local a cero debido a la fricción [22].

Se observó que un número considerable de correlaciones citadas por Erdim [38] se derivan de experimentos a partir de partículas esféricas, líquidos (comúnmente agua) como fluido de proceso y temperatura constante. Por lo que es difícil encontrar una correlación que incluya escenarios de operación drásticos que consideren una relación $d_t/d_{p,e}$ muy pequeña, partículas empacadas no esféricas, alta temperatura y un rango relativamente amplio de número de Reynolds de partícula. Montillet y colaboradores [41] mencionan las dificultades de generar una correlación para caída de presión que sea convincente, a pesar de los diversos reportes de investigación teórica y experimental.

Liu y col. [16], por ejemplo, realizaron una modificación a la ecuación de Ergun en los términos laminar y turbulento resultando en una expresión (ver ec. 1.13) con predicciones bastante razonables, según refieren, para una relación $d_t/d_{p,e} < 10$. Cuando la relación $d_t/d_{p,e}$ es menor a 10, la interacción del fluido con la pared del tubo y la canalización inciden de manera más importante en la hidrodinámica del lecho, aparte de la interacción del fluido con la partícula, ocasionando desviaciones en la caída de presión.

$$f_k = 150 \frac{(1-\varepsilon)}{Re_p} \left[1 + \frac{\pi}{6(1-\varepsilon)} \frac{d_{p,e}}{d_t} \right]^2 + 1.75 \left[1 - \frac{\pi^2 d_p}{24 d_t} \left(1 - 0.5 \frac{d_{p,e}}{d_t} \right) \right] \quad \text{ec. 1.13}$$

Dando continuidad al trabajo de Tallmadge y Liu, y teniendo en mente obtener una expresión con un amplio intervalo de aplicación tanto en Re_p como en $d_t/d_{p,e}$, Harrison y col. [20] propusieron una nueva correlación aplicable de manera confiable en la región $0.32 < Re_p < 7,700$; $0.33 < \varepsilon < 0.88$ y $8.3 < d_t/d_{p,e} < 50$. Esta ecuación, ec. 1.14 para los fines de este reporte de tesis, tiene como característica notable el incorporar dos términos que estrictamente hablando son ajustables dependiendo de la morfología del material del empaque, representados como K_{turb} y K_{lam} , para denotar los parámetros de los términos inercial y viscoso. Se reporta que valores igual a 119.8 y 4.63 reproducían de manera razonable un amplio espectro de datos experimentales de caída de presión.

$$f_k = K_{Lam} \frac{(1-\varepsilon)}{Re_p} \left[1 + \frac{\pi}{6(1-\varepsilon)} \frac{d_{p,e}}{d_t} \right]^2 + \frac{K_{turb}}{\left(\frac{Re_p}{1-\varepsilon} \right)^{1/6}} \left[1 - \frac{\pi^2 d_{p,e}}{24 d_t} \left(1 - 0.5 \frac{d_{p,e}}{d_t} \right) \right] \quad \text{ec. 1.14}$$

Previo a los trabajos de Tallmadge [37], Liu [16] e incluso Harrison [20], y teniendo como objetivo central el detectar las mejores correlaciones para predecir caídas de presión en la región conocida como de “efecto de pared”, en donde $d_t/d_{p,e}$ es menor a 10, Eisfeld y Schnitzlein [22] sugirieron la conveniencia del uso de la correlación de Reichelt [42] modificada, una expresión también derivada de la ec. de Ergun aplicable en la región Re_p de 0.01 a 17,635, $0.330 < \varepsilon < 0.882$ y para relaciones $d_t/d_{p,e}$ de 1.624-250. Esta correlación incluye tres parámetros denotados como K_1 , k_1 y k_2 , estos dos últimos incorporados a B_w , los cuales deben ser ajustados utilizando información experimental [22]. El uso de tres parámetros tiene el objetivo de extender la aplicación de la correlación para partículas con morfologías diferentes a una esfera (ver ec. 1.15a). Las constantes K_1 , k_1 y k_2 dependen, estrictamente hablando, del tipo de morfología del material tal y como se muestra en la información vertida en la Tabla 1.1, existiendo un vector de valores que los autores encontraron apropiados para reproducir caídas de presión experimentales utilizando diversas morfologías de partícula.

$$f_k = K_1 \frac{A_w^2 (1-\varepsilon)}{Re_p} + \frac{A_w}{B_w} \quad \text{ec. 1.15a}$$

$$A_w = 1 + \frac{2}{3 \left(\frac{d_t}{d_{p,e}} \right) (1-\varepsilon)} \quad \text{ec. 1.15b}$$

$$B_w = \left[k_1 \left(\frac{d_{p,e}}{d_t} \right)^2 + k_2 \right]^2 \quad \text{ec. 1.15c}$$

Tabla 1.1. Coeficientes corregidos de la ecuación de Reichelt reportados por Eisfeld y Schnitzlein en la ref. [22].

	K_1	k_1	k_2
Esferas	154	1.15	0.87
Cilindros	190	2.00	0.77
Todas las morfologías	155	1.42	0.83

Un aspecto adicional relativo a las correlaciones existentes para predecir la caída de presión se refiere al efecto de la temperatura, en particular, cuando se utilizan gases como fluidos de proceso. De hecho, muchos de los procesos existentes que involucran reacciones químicas son llevados a cabo a temperaturas relativamente alejadas de la ambiente, por lo que el efecto de la temperatura en la caída de presión ha sido escasamente estudiado. Radojica et al. referenciado en [35], por ejemplo, muestra resultados de caída de presión experimental a través de un tubo empacado alimentando como fluido de proceso y variando la temperatura entre 25°C y 350°C. Sus experimentos, sin embargo, sólo aplican para partículas esféricas con un $d_t/d_{p,e}$ de 12 a 108, es decir, una región en la cual los efectos de pared no son tan importantes [20]. Después de evaluar la precisión de alrededor de 14 correlaciones de la literatura para reproducir la caída de presión con sus datos experimentales, Radojica y col. encontraron que las ecuaciones de Reichelt [42], Eisfeld-Schnitzlein [22], e incluso Ergun [33] son las mejores alternativas para reproducir su información de caída de presión experimental con valores de error porcentual global iguales a 10.8, 11.6 y 12.4, respectivamente. Radojica et al. [35] además, puntualizan que las correlaciones evaluadas fueron menos precisas en escenarios de temperatura elevada, conclusión que no parece estar completamente fundamentada por los resultados correspondientes, tal y como se demostrará en los capítulos subsecuentes de este trabajo de tesis.

Lo anterior es parte de la justificación del hecho de que, las correlaciones que predicen la caída de presión en lechos empacados mostradas en la literatura para escenarios que requieren una combinación de temperatura alta, relación $d_t/d_{p,e}$ pequeña, el uso de partículas no esféricas y un rango amplio de Re_p , deben verificarse y validarse para fines de simulación de reactores catalíticos. El contar con correlaciones adecuadas es de alta importancia para el balance de momento y la hidrodinámica del lecho. Esto último será comentado brevemente en la siguiente sección.

1.4 Modelos hidrodinámicos aplicados a tubos empacados de baja relación d_t/d_p

En los trabajos teóricos y experimentales de la literatura dedicados a caracterizar los perfiles de velocidad en lechos empacados con una baja relación $d_t/d_{p,e}$ se ha detectado un comportamiento peculiar de los perfiles radiales de velocidad, lo cual está asociado a la distribución irregular de la fracción hueca en la coordenada radial, fracción que típicamente es mayor cerca de las paredes del reactor. Una representación rigurosa de la distribución espacial de la velocidad del fluido que pasa por los espacios vacíos es, de hecho, una tarea difícil debido a que, estrictamente hablando, se requiere la descripción en tres dimensiones de la distribución de los espacios vacíos en el lecho asociado a la baja relación $d_t/d_{p,e}$. En la literatura abierta, se han propuesto diferentes ecuaciones empíricas para describir los perfiles de fracción hueca en lechos empacados. La velocidad del fluido, a su vez, es convenientemente descrita mediante una serie de ecuaciones modificadas de Navier-Stokes que incorporan las interacciones fluido-sólido con un par de términos adicionales como se ilustra, a manera de ejemplo, en las ecuaciones ec. 1.16 para la coordenada radial, y la ec. 1.17 para la coordenada axial [8].

Velocidad radial:

$$\rho \varepsilon \left[\frac{\delta v_r}{\delta t} + v_r \frac{\delta v_r}{\delta r} + v_z \frac{\delta v_r}{\delta z} \right] = -\varepsilon \frac{\delta p_r}{\delta z} + \varepsilon \mu \nabla^2 v_r - \varepsilon \frac{\mu}{K} v_r - \varepsilon^2 \frac{\rho}{K_z} v_r^2 \quad \text{ec. 1.16}$$

Velocidad axial:

$$\rho \varepsilon \left[\frac{\delta v_z}{\delta t} + v_r \frac{\delta v_z}{\delta r} + v_z \frac{\delta v_z}{\delta z} \right] = -\varepsilon \frac{\delta p_z}{\delta z} + \varepsilon \mu \nabla^2 v_z - \varepsilon \frac{\mu}{K} v_z - \varepsilon^2 \frac{\rho}{K_z} v_z^2 + \varepsilon \rho g_z \quad \text{ec. 1.17}$$

Nótese que el par de términos adicionales mostrados del lado derecho de las ecuaciones 1.17 y 1.18, y que incluyen a K y K_z proviene de la combinación de los modelos hidrodinámicos y una expresión de caída de presión con contribuciones viscosa e inercial, por ejemplo, Ergun [33], tal y como se muestra en las expresiones denotadas por ec. 1.18 y ec. 1.19.

$$K = \frac{\varepsilon^3 d_p^2}{\alpha(1-\varepsilon)^2} \quad \text{ec. 1.18}$$

$$K_z = \frac{\varepsilon^3 d_p}{\beta(1-\varepsilon)} \quad \text{ec. 1.19}$$

Siendo α y β los valores de los parámetros en la ecuación de Ergun (150 y 1.75, respectivamente como fue presentado anteriormente en la ec. 1.10), los cuales se han usado para predecir los perfiles de velocidad en lechos empacados con baja relación $d_t/d_{p,e}$. La Figura 1.8 permite visualizar un ejemplo de un perfil de velocidad en la dirección

axial, es decir v_z , como función del radio del tubo adimensionalizado al aplicar el modelo hidrodinámico mostrado en la ec. 1.17. Es posible utilizar otras ecuaciones empíricas de caída de presión, sin embargo, cuando dichas correlaciones no representen fielmente los valores de caída de presión obtenidos experimentalmente, los parámetros respectivos, es decir, aquellos asociados a los términos viscoso e inercial tienen, que ser reajustados mediante regresión [8], [22]. La forma en la cual es posible obtener correlaciones con parámetros reajustados utilizando datos de caída de presión experimental, es abordado con cierto detalle en el Capítulo 4 de este trabajo de tesis.

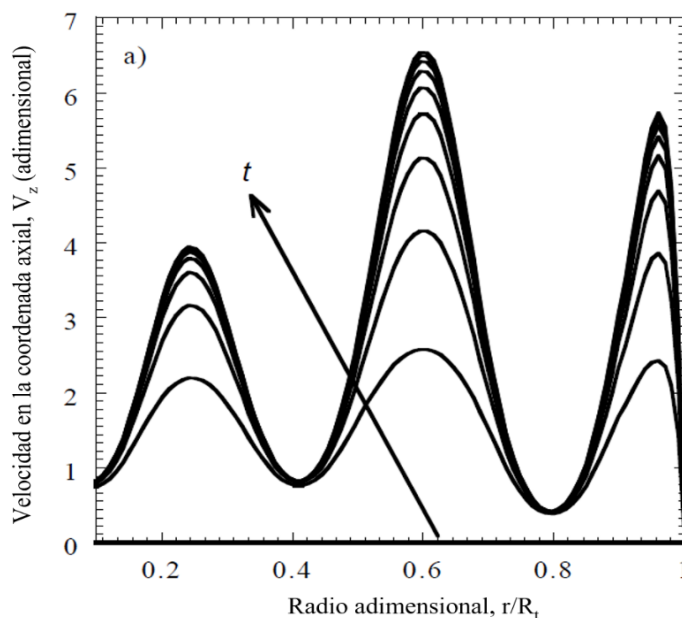


Figura 1.8. Componente de velocidad axial adimensional en un lecho empacado como función del radio adimensional, calculados aplicando el modelo de la ec. 1.18 para un tubo de 50 mm de diámetro interno, empacado con esferas de 9.8 mm de diámetro y una porosidad promedio de 0.36. Tomado de la ref. [8].

1.5 Referencias

- [1] S. Afandizadeh, E. A. Foumeny, Design of packed bed reactors: guides to catalyst shape, size, and loading selection, Appl. Thermal Eng., 21 (2001) 669.
- [2] Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Vol B4, G. Eigenberger, VCH Publishers Inc., 1992.
- [3] B. Eisfeld and K. Schnitzlein, A pseudo-continuous model for the fluid flow in packed beds, Chem. Eng. Sci., 60 (2005) 4105.
- [4] Chemical Reactor Analysis and Design 3rd Edition G. F. Froment, K. B. Bischoff, J. De Wilde, John Wiley & Sons, Inc. 2011.
- [5] Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, John Wiley and Sons, 2012.

-
- [6] A. I. Anastasov. An investigation of the kinetic parameters of the o-xylene oxidation process carried out in a fixed bed of high-productive vanadia–titania catalyst, *Chem. Eng. Sci.* 58 (2003) 89.
- [7] E. López, E. Heracleous, A. A. Lemonidou, D. O. Borio. Study of a multitubular fixed-bed reactor for ethylene production via ethane oxidative dehydrogenation, *Chem. Eng. J.* 145 (2008) 308.
- [8] C. O. Castillo and H. F. López-Isunza, Hydrodynamic Models for Packed Beds with Low Tube-to-Particle Diameter Ratio, *Int. J. Chem. Reactor Eng.*, 6 (2008) 1
- [9] Modeling of Chemical Kinetics and Reactor Design, A. Kayode Coker, Gulf Professional Publishing, U.S.A. 2001.
- [10] K.G. Allen, T.W. von Backström, D.G. Kröger, Packed bed pressure drop dependence on particle shape, size distribution, packing arrangement and roughness, *Powder Technology*, 246 (2013) 590.
- [11] Handbook of Heterogeneous Catalysis, G. Ertl, H. Knözinger, F. Schüth, K. Weitkamp, Wiley-VCH, 2008.
- [12] S. Arab y col, Methanol synthesis from CO₂ and H₂ in multi-tubular fixed-bed reactor and multi-tubular reactor filled with monoliths, *Chemical Engineering Research and Design.* 92 (2014)2598
- [13] Ingeniería de las Reacciones Químicas, O. Levenspiel, Reverté, México, 1986.
- [14] D. Nemeč, J. Levec, Flow through packed bed reactors: 1. Single-phase flow, *Chemical Engineering Science* 60 (2005) 6947
- [15] I. Lindholm, S. Holmström, J. Miettinen, et al, Dryout heat flux experiments with deep heterogeneous particle bed, *Nucl. Eng. Des.* 236 (2006) 2060.
- [16] S. Liu, A. Afacan, J.H. Masliyah, Steady incompressible laminar flow in porous media, *Chemical Engineering Science* 49 - 21(1994) 3565.
- [17] F. Macdonald, M.S. El-Sayed, K. Mow, F.A.L Dullien, Flow through porous media-the Ergun equation revisited, *Ind. Eng. Chem. Fundam.* 18 (1979) 199.
- [18] F. A. L. Dullien, Single phase flow through porous media and pore structure. *Chemical Engineering J.* 10 (1975) 1
- [19] L. Li, W. Ma, Experimental study on the effective particle diameter of a packed bed with non-spherical particles, Springer Science.1 (2011)
- [20] L. D. Harrison, K. M. Brunner, W. C. Hecker, A combined packed-bed friction factor equation: extension to higher Reynolds number with wall effects, *AIChE Journal*, 59 - 3 (2013) 703
- [21] L. G. Gibilaro, R. Di Felice, Wall effects for the pressure drop in fixed beds, *Chemical Engineering Science* 59 (2004) 3037

- [22] B. Eisfeld, K. Schnitzlein. The influence of confining walls on the pressure drop in packed beds. *Chem. Eng Sci*, 56 (2001) 4321.
- [23] A.M.Ribeiro, P.Neto, C.Pinho, Mean porosity and pressure drop measurements in packed beds of monosized spheres: side wall effects, *International Review of Chemical Engineering* 2 - 1 (2010) 40-46.
- [24] T. Atmakidis, E. Kenig. CFD-Based analysis of the Wall effect on the pressure drop in packed beds with moderate tube/particle diameter ratios in the laminar flow regime. *Chemical Engineering Journal* 155 (2009)
- [25] F.Benyahia, K.E. O'Neill. Enhanced voidage correlations for packed beds of various particle shapes and sizes. *Particulate Science and Technology* (2005).169
- [26] A. de Klerk, Voidage variation in packed beds at small column to particle diameter ratio, *AIChE J.*, 49 – 8 (2003) 2022.
- [27] E.A. Foumeny, F.Benyahia. Predictive characterization of mean voidage in packed beds. *Heat Recovery Systems* 11 (1991) 127-130
- [28] Fluid flow through packed and fluidized systems, *Bulletin (United States Bureau of Mines)*, M.Leva, M.Weintraub, M. Pollchik, H.H.Storch, vol. 504, U.S., 1951
- [29] D. P. Haughey, S. G. Beveridge, *Can. J. Chem. Eng.* 47 (1969) 130.
- [30] A. G. Dixon, Correlations for wall and particle shape effects on fixed bed bulk voidage, *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 66 (1988) 705.
- [31] G. S. Beavers, E. M. Sparrow, D. E. Rodenz, Influence of bed size on the flow characteristics and porosity of randomly packed beds of spheres, *J. Appl. Mech.* 40 (1973) 655.
- [32] E. A. Foumeny, S. Roshani, Mean voidage of packed beds of cylindrical particles *Chem. Eng. Sci.* 46 - 9 (1991) 2363
- [33] S. Ergun, Fluid flow through packed columns, *Chemical Engineering Progress* 45 (1952) 1179.
- [34] N. Cheng, Wall effect on pressure drop in packed beds, *Powder Technology*, 30 (2011) 1-7
- [35] T. Radojica, N. Kaliderovic. Pressure drop in packed beds of spherical particles at ambient and elevated air temperatures. *AIChE*, 21 – 3 (2014) 419
- [36] I. Ziolkowska, D. Ziolkowski, Fluid flow inside packed beds, *Chemical Engineering Process* 23 (1988) 137.
- [37] J. A. Tallmadge, Packed bed pressure drop-an extension to higher Reynolds number, *AIChE J.* 16 - 6 (1970) 1092
- [38] E. Erdim, O. Akgiray, I. Demir, A revisit of pressure drop-flow rate correlations for packed beds of spheres, *Powder Technology*, 283 (2015) 488

- [39] D.A. Nield. Alternative model for wall effect in laminar flow of a fluid through a packed column. A.I.Ch.E. Journal 29 (1983) 688-689
- [40] R. F. Benati, C.B. Borosilow. Void fraction distribution in beds of spheres. A.I.Ch.E. J. 8 (1962) 359-361
- [41] A. Montillet, E. Akkari, J. Comiti. About a correlating equation for predicting pressure drops through packed beds of spheres in a large range of Reynolds numbers. Chemical Engineering Process 46 (2007) 329
- [42] W. Reichelt, Zur Berechnung des Druckverlustes einphasig durchströmter Kugel- und Zylinderschüttungen, Chemical Engineering Technology 44 - 8 (1972) 1068

CAPÍTULO 2.

PROCEDIMIENTOS EXPERIMENTALES

Sumario de Capítulo:

En este Capítulo se ofrece información relativa a los materiales utilizados en la experimentación y los procedimientos experimentales aplicados durante el desarrollo del presente trabajo de tesis. Primeramente, se detallan los materiales sobre los cuales se obtuvieron datos propios y novedosos de caída de presión en un tubo empacado caracterizado por su baja relación de diámetro de tubo a diámetro de partícula (d_t/d_p o $d_t/d_{p,e}$). Dicha configuración de tubo-partícula es típica de reactores multi-tubulares con enfriamiento externo, utilizados para llevar a cabo procesos catalíticos heterogéneos de naturaleza exotérmica. Con la finalidad de generar información experimental en una región amplia de condiciones de proceso y configuración de partícula, pretendiendo aplicar los datos resultantes en el contexto comercial, se varió la temperatura, la presión y el flujo de alimentación de gas, empacando el tubo de proceso con cinco soportes comerciales de catalizador diferentes, con morfologías y tamaños diversos. Para definir en forma precisa las condiciones de proceso en la experimentación relativa a los flujos de entrada de gas de proceso, los sólidos referidos fueron muestreados y luego caracterizados en el laboratorio. En este tenor, se realizaron mediciones directas e indirectas de las propiedades de partícula promedio de interés, a saber, longitud, diámetro, diámetro equivalente, esfericidad, densidad del sólido empacado, densidad de partícula, fracción hueca y área externa de partícula, etc. En la parte final del Capítulo se presenta información relativa al sistema experimental utilizado para generar los datos de caída de presión, además de ofrecer detalles de la metodología y el protocolo de operación de dicho sistema.

2.1 Materiales

2.1.1 Soportes de catalizadores

Se investigó, de manera experimental, la caída de presión asociada a 5 materiales correspondiendo a soportes de catalizadores comerciales, constituidos de partículas con diferentes morfologías y tamaños, y que para los fines de este trabajo de tesis han sido referidos como CAT-A, CAT-B, CAT-C, CAT-D y CAT-E. En la Figura 2.1 se muestran fotografías de los materiales cinco referidos ya empacados en el tubo de proceso. Notar que el soporte de catalizador CAT-A corresponde a una esfera de 1/8" de diámetro nominal, el CAT-B es un extruido cilíndrico de 1/8" de diámetro nominal, el CAT-C es un material tetra-lobular de 45 ° perforado en el centro utilizado como abatidor de caída de presión diferencial en reactores catalíticos, el CAT-D es una esfera de 1/4" de diámetro nominal, mientras que el CAT-E corresponde a un cilindro perforado por el centro de 1/4" de diámetro nominal.



Figura 2.1 Fotografías de los cinco soportes de catalizador utilizados en las pruebas experimentales para medir caída de presión. Las imágenes corresponden a los materiales empacados en el tubo de proceso, este último con dimensiones 2.0 m, 1 pulg de OD ced 14 y 2.119 cm de diámetro interno.

2.1.2 Muestreo de partículas

Tratándose de muestras comerciales de soportes de catalizadores, no debe sorprender que las partículas que las constituyen no sean homogéneas en tamaño. Por esta razón y con la finalidad de tener los materiales deben ser muestreados de manera cuidadosa y sistemática. En otras palabras, la muestra incorporada al estudio debe ser, tanto como sea posible, representativa de la población que se desea estudiar con la finalidad de que refleje las características promedio de los elementos que la componen [1]. Cuando la cantidad de muestra por analizar es relativamente grande, por ejemplo, la manera más conveniente de realizar el muestreo es mediante una toma de muestra estratificada debido a que el material puede separarse en grupos o unidades lógicas de muestreo, o bien estratificada. En este caso particular se dispone de dos alternativas para tomar la muestra, a saber (i) elegir totalmente al azar un determinado número de muestras de entre todo el material disponible o, en su defecto, (ii) definir las unidades lógicas de muestreo y tomar aleatoriamente la muestra en los distintos estratos, como lo propone Mongay-Fernández en la ref. [2]. La segunda estrategia fue aplicada al muestreo de los materiales investigados en este trabajo debido a que éstos, de manera invariable, se encontraban resguardados en cubetas de plástico de 19 litros. Teniendo una muestra estratificada de partículas tomada diagonalmente, con un tubo de muestreo, en cuatro puntos diferentes se extrajo una cantidad finita de material. De “estas cuatro” tomas de material se extrajo, posteriormente, un número finito de partículas aplicando el Método de Cuarteos, el cual se representa esquemáticamente en la Figura 2.2. A este número finito de partículas fue sometido a mediciones de tamaño y peso.

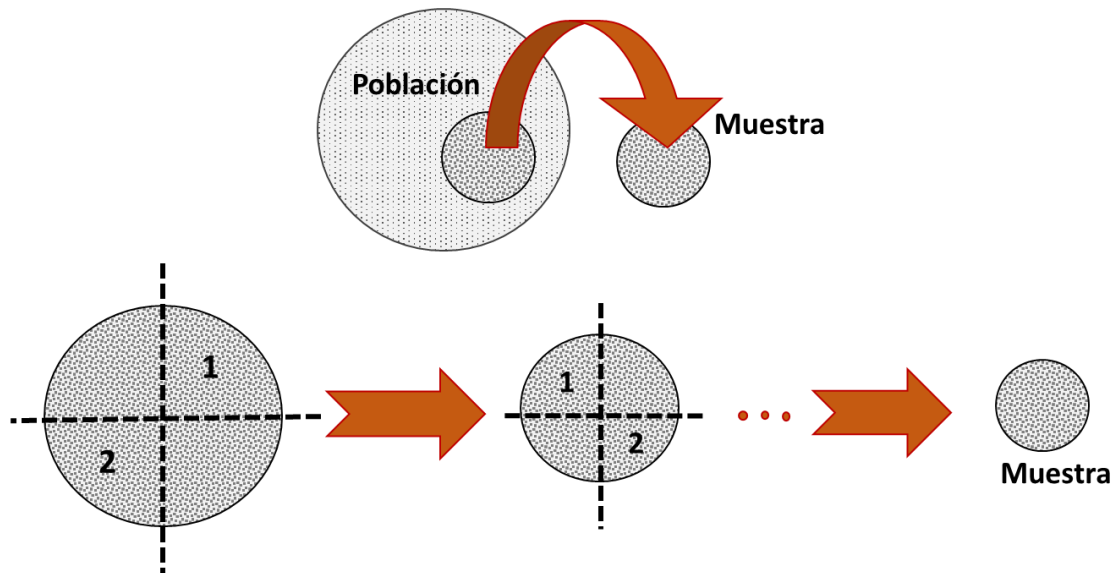


Figura 2.2. Representación esquemática de la técnica de muestreo por cuarteos aplicado a las partículas sólidas que componen a los diferentes soportes de catalizador utilizados en los experimentos de caída de presión.

Considerando que pudiera ser de interés para algunos de los lectores de este trabajo, el Método de Cuarteos citado arriba consiste, de manera muy concreta, en las siguientes etapas acotadas específicamente a nuestros materiales:

- Vaciar las partículas de material extraídas del muestreo estratificado en una superficie preferentemente plana para formar un montón de material.
- Homogenizar el material mediante un mezclado completo y amontonar dándole forma circular.
- Dividir el montón en formando cuatro partes o cuadrantes y escoger dos cuadrantes opuestos para formar una segundo montón más pequeño, teóricamente la mitad del previo, como el descrito en el punto anterior.
- Volver a mezclar el montón del paso anterior y volver a dividir en cuatro partes o cuadrantes para integrar un tercer montón más pequeño (la mitad del previo). Repetir este procedimiento hasta tener un montón pequeño que contenga aproximadamente 100 partículas.

2.2 Determinación experimental de propiedades promedio

Previo al inicio de los ensayos de caída de presión, se determinó para cada soporte de catalizador, según aplique y dependiendo de su morfología, la longitud promedio de partícula ($L_{m,p}$), el diámetro promedio de partícula ($d_{m,p}$), el diámetro equivalente de partícula ($d_{p,e}$), la densidad del material en forma empacada (ABD), la densidad promedio de partícula ($DEN_{m,p}$) y la fracción hueca promedio (ϵ_m). Esta información es necesaria para caracterizar cada material y, de manera muy importante, para definir de manera específica las condiciones de flujo volumétrico de gas proceso para los diferentes experimentos de caída de presión.

Para cada material, las 100 partículas obtenidas del muestreo por cuarteos, fueron sometidas a mediciones partícula por partícula, utilizando un Vernier Digital modelo Fowe & NSK, de longitud ($L_{p,i}$) para el caso de las partículas no esféricas, y diámetro ($d_{p,i}$) para partículas esféricas y no esféricas. Notar que las partículas con morfología tetralobular, tienen una perforación circular en el centro cuyo diámetro se denota como $d_{c,i}$, mientras que $d_{p,i}$ corresponde a la distancia entre extremos de lóbulos, siendo el subíndice i utilizado para referir la medición por partícula. Adicionalmente, en el caso de partículas no esféricas, los valores promedio de diámetro equivalente o diámetro esférico efectivo se calcularon usando los valores correspondientes de $d_{p,i}$ y $L_{p,i}$. La información correspondiente a las mediciones de partícula $d_{c,i}$, $d_{p,i}$ y $L_{p,i}$ es representada de manera gráfica en el Apéndice A considerando cuatro materiales de los cinco utilizados en los experimentos de caída de presión con el propósito de complementar y observar la desviación de las mediciones de las partículas muestreadas. Algunos tipos de morfologías de partículas y dimensiones características asociadas pueden ser vistos en la Figura 2.3.

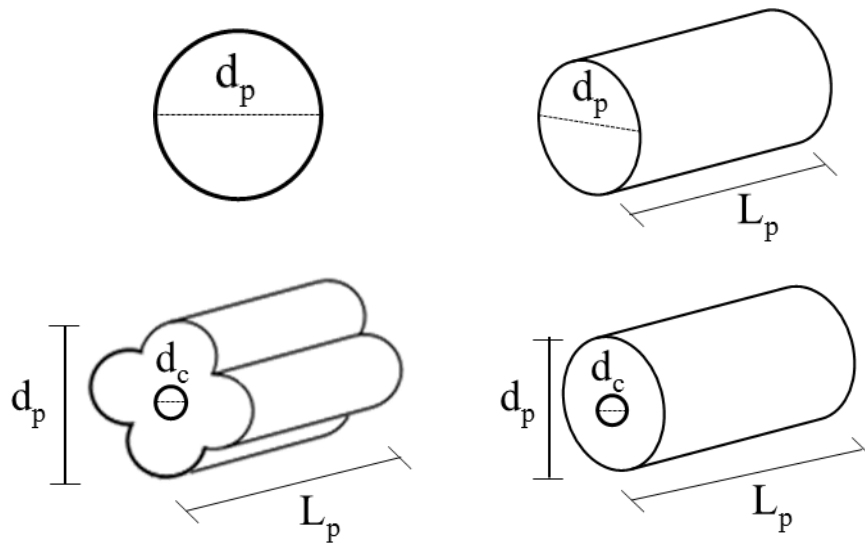


Figura 2.3 Algunas formas de soportes de catalizadores: esfera, cilindro, tetralóbulo y cilindro perforado por el centro, con dimensiones características asociadas. L_p corresponde a la longitud del material, d_p es el diámetro del cilindro, esfera o de extremos entre lóbulos, mientras que d_c es el diámetro de la perforación del tetralobular perforado.

Es importante hacer referencia a que los valores de ABD, que corresponden a la relación de la masa de una muestra de partículas y su volumen en forma empacada, se obtuvieron empacando con partículas un tramo de 70 cm de longitud del mismo diámetro y características que el tubo donde se realizaron las mediciones experimentales. La masa necesaria para llenar dicho tramo de tubo fue medida en una balanza analítica resultando en un valor denotado como $W_{70,L}$. El volumen del tramo de tubo de 70 cm ($V_{70,L}$) es igual a 246.9 cm^3 . De este modo, el valor del ABD está dado por la relación de la ec. 2.1. Generalizando y para fines prácticos, notar que el ABD está referido al volumen del reactor.

$$\text{ABD} = \frac{W_{70,L}}{V_{70,L}} \quad \text{ec. 2.1}$$

Para poder determinar los valores de $L_{m,p}$, $d_{m,p}$ y $\text{DEN}_{m,p}$, las mediciones respectivas fueron realizadas, como ya fue referido con anterioridad, partiendo de una muestra de 100 partículas tomadas de manera aleatoria. Las mediciones individuales de longitud y diámetro fueron referidas como $L_{p,i}$ y $d_{p,i}$ respectivamente. Las 100 partículas medidas, posteriormente, se pesaron ($W_{100,p}$) en una balanza analítica. Con los valores individuales de longitud y diámetro se calcularon los valores de longitud promedio ($L_{m,p}$) y diámetro promedio de partícula ($d_{m,p}$) utilizando las ecs. 2.2 y 2.3 y correspondiendo a la media aritmética de los valores medidos de manera individual, en donde n_p representa el número de partículas usadas en la medición.

$$L_{m,p} = \frac{\sum_{i=1}^{n_p} L_{p,i}}{n_p} \quad \text{ec. 2.2}$$

$$d_{m,p} = \frac{\sum_{i=1}^{n_p} d_{p,i}}{n_p} \quad \text{ec. 2.3}$$

Cabe destacar que para partículas diferentes a una esfera, se utiliza un diámetro equivalente de partícula representado como $d_{p,e}$, que reemplaza a d_p , y corresponde a un factor de corrección que extiende la aplicación de las correlaciones para caída de presión reportadas en la literatura, para morfologías diferentes a la de una esfera como lo citan Benyahia (2005) y de Klerk en las referencias [3] y [4]. Para una muestra de n_p partículas, $d_{p,e}$ se calculó como se muestra en la ec. 2.4, en donde $V_{p,i}$ representa el volumen cada partícula i :

$$d_{p,e} = \left(\frac{6 \sum_i^{n_p} V_{p,i}}{\pi n_p} \right)^{1/3} \quad \text{ec. 2.4}$$

Para calcular la densidad de partícula promedio representada por $DEN_{m,p}$, en tanto, se necesita relacionar la masa y el volumen de las 100 partículas tomadas al azar, que están representadas por $W_{100,p}$ y $V_{100,p}$ respectivamente. El volumen ocupado por cada partícula i medida, referido como $V_{p,i}$, depende de la morfología específica de cada tipo de material pudiendo ser, para las muestras de soporte de catalizador estudiadas en esta tesis, de tipo esférica, cilíndrica o tetralobular, y se calcula aplicando las ecs. 2.5 – 2.9, respectivamente.

Para morfología de partícula esférica:

$$V_{p,i} = \frac{\pi d_{p,i}^3 L_{p,i}}{6} \quad \text{ec. 2.5}$$

Para morfología de partícula cilíndrica:

$$V_{p,i} = \frac{\pi d_{p,i}^2 L_{p,i}}{4} \quad \text{ec. 2.6}$$

Para morfología de partícula tetralobular perforada por el centro aplican las ecs. 2.7 a 2.9, debiendo notar que $r_{c,t}$ corresponde al radio del lóbulo. A_1 es el área lateral asociada a la forma geométrica de los lóbulos.

$$A_1 = d_{p,i}^2 \left[\frac{2\cos\theta - 1}{1 + 2\cos\theta} \right]^2 \quad \text{ec. 2.7}$$

$$r_{c,t} = \frac{d_{p,i}}{4.8284} \quad \text{ec. 2.8}$$

$$V_{p,i} = 4(\pi r_{c,t}^2 L_{p,i}) - (A_1 L_{p,i}) - \frac{\pi}{4} d_c^2 L_{p,i} \quad \text{ec. 2.9}$$

Cuando $n_p = 100$, el volumen de las 100 partículas tomadas al azar corresponde a lo mostrado en la ec. 2.10.

$$V_{100,p} = \sum_{i=1}^{n_p} V_{p,i} \quad \text{ec. 2.10}$$

El valor de $DEN_{m,p}$ finalmente está dado por el cociente entre $W_{100,p}$ y $V_{100,p}$ como lo considera de manera explícita la ec. 2.11. Notar que, a diferencia del ABD referido arriba, la $DEN_{m,p}$ está referida al volumen de la partícula y no al volumen del reactor.

$$DEN_{m,p} = \frac{W_{100,p}}{V_{100,p}} \quad \text{ec. 2.11}$$

Los valores de fracción hueca promedio denotado como ε_m se obtuvieron mediante la ec. 2.12, un expresión que relaciona los valores de densidad acotados previamente. Tal expresión fue seleccionada de las demás correlaciones mostradas en la sección 1.2.2 del Capítulo 1 para la predicción de la fracción hueca debido a que los resultados obtenidos con dichas ecuaciones mostraron resultados inconsistentes entre sí como puede comprobarse en el Apéndice B de esta tesis.

$$\varepsilon_m = 1 - \frac{ABD}{DEN_{m,p}} \quad \text{ec. 2.12}$$

Una propiedad adicional determinada a los soportes comerciales de catalizador utilizados en la experimentación correspondió a la esfericidad. Esta propiedad, de manera específica, toma en consideración, en términos relativos, la irregularidad en la morfología de una partícula determinada con respecto a la de una esfera ideal, cuyo valor de esfericidad es la unidad [5]. La esfericidad de una partícula es adimensional y se define como la relación entre la superficie de una esfera con un diámetro igual al diámetro equivalente ($d_{p,e}$) que la partícula a analizar, y con una misma superficie externa [4]. Los valores de esfericidad experimentales se obtuvieron para una muestra compuesta de n_p partículas de cada material, de acuerdo a la expresión mostrada en la ec. 2.13.

$$\varphi = \pi \frac{d_{p,e}^2}{\sum_i^{n_p} A_{p,i}^{ext}} \quad \text{ec. 2.13}$$

El área externa de cada partícula i medida, referida como $A_{p,i}^{ext}$, al igual que el volumen $V_{p,i}$, depende de la morfología específica de cada tipo de material [3], por lo que se calcula utilizando las ecs. 2.14 – 2.17, según sea el caso.

Para morfología esférica:

$$A_{p,i}^{ext} = \frac{2\pi d_{p,i}^2}{4} \quad \text{ec. 2.14}$$

Para morfología de partícula cilíndrica:

$$A_{p,i}^{ext} = \pi L_{p,i} d_{p,i} + \frac{2\pi d_{p,i}^2}{4} \quad \text{ec. 2.15}$$

Para morfología de partícula tetralobular perforada por el centro:

$$A_2 = \frac{1}{2} \pi r_{c,t} L_{p,i} \quad \text{ec. 2.16}$$

$$A_{p,i}^{ext} = 4[(2\pi r_{c,t}^2) + (2\pi r_{c,t} L_{p,i})] + 2A_1 + d_c L_{p,i} - 4A_2 - \frac{2\pi d_c^2}{4} \quad \text{ec. 2.17}$$

A_2 es el área común entre cada cilindro y cada uno de los lados de las formas lobulares.

Para una morfología de partícula cilíndrica perforada por el centro, el cálculo del área externa correspondiente es similar al de la partícula tetralobular, debido a que en ambas se considera el área externa de la perforación.

2.3 Sistema experimental para las mediciones de caída de presión

El sistema experimental empleado para investigar la caída de presión asociada a los cinco materiales referidos previamente fue armado en el Laboratorio de Plantas Piloto, en la sede del Instituto Mexicano del Petróleo, en la Ciudad de México. En la Figura 2.4 se muestra un diagrama simplificado de este sistema, en el cual se ha incluido, para mayor referencia, información básica relativa al control de flujos, presión, y temperatura, que corresponden a variables clave asociadas a la experimentación. La parte central de este sistema es un tubo fabricado en acero inoxidable 304, con una longitud de 2.0 m y un diámetro nominal (*OD – Outside Diameter*) de 1.0 pulg. Cédula 14, correspondiendo a un diámetro interno de 2.119 cm lo que resulta en un volumen interno de tubo (y de material empacado) de 705 cm³.

El tubo de proceso fue alimentado por la parte superior con aire comprimido generado en un compresor industrial, midiendo-controlando los caudales respectivos por medio de controladores de flujo másico térmicos (MFC) de la marca Brooks. Dos MFCs identificados como FIC-101 y FIC-102 en el diagrama de la Figura 2.4, con capacidad de 3,000 litros estándar por hora (slph) cada uno, fueron habilitados al sistema experimental permitiendo suministrar

asociadas al tubo empacado fueron denotadas como TIC-101A, TIC-102A, TIC-103A, TIC-104A y TIC-105A, en orden descendiente respecto a la entrada del fluido en el tubo empacado, como puede ser visto en la Figura 2.4. Esta configuración permitirá asegurar la isothermicidad del lecho empacado mediante el calentamiento y medición de temperatura en cinco bloques independientes. Adicionalmente, antes de entrar al tubo empacado, el aire comprimido puede ser pre-calentado al pasar a través de un serpentín hecho de acero inoxidable, el cual también tiene instalada una cinta de calentamiento. Este pre-calentador tiene asociado el controlador-indicador de temperatura referido como TIC-106A, que permite incrementar la temperatura del aire comprimido por encima de los 400 °C.

Los información asociada a los diferentes instrumentos de medición referidos en el párrafo anterior fueron incorporados a un sistema de control (vide Figura 2.5) a través del cual fue posible monitorear y/o registrar los valores actuales e históricos de las variables de proceso clave como es el caso del flujo volumétrico de gas, la temperatura, la presión a la entrada y la salida del tubo, así como la presión diferencial.

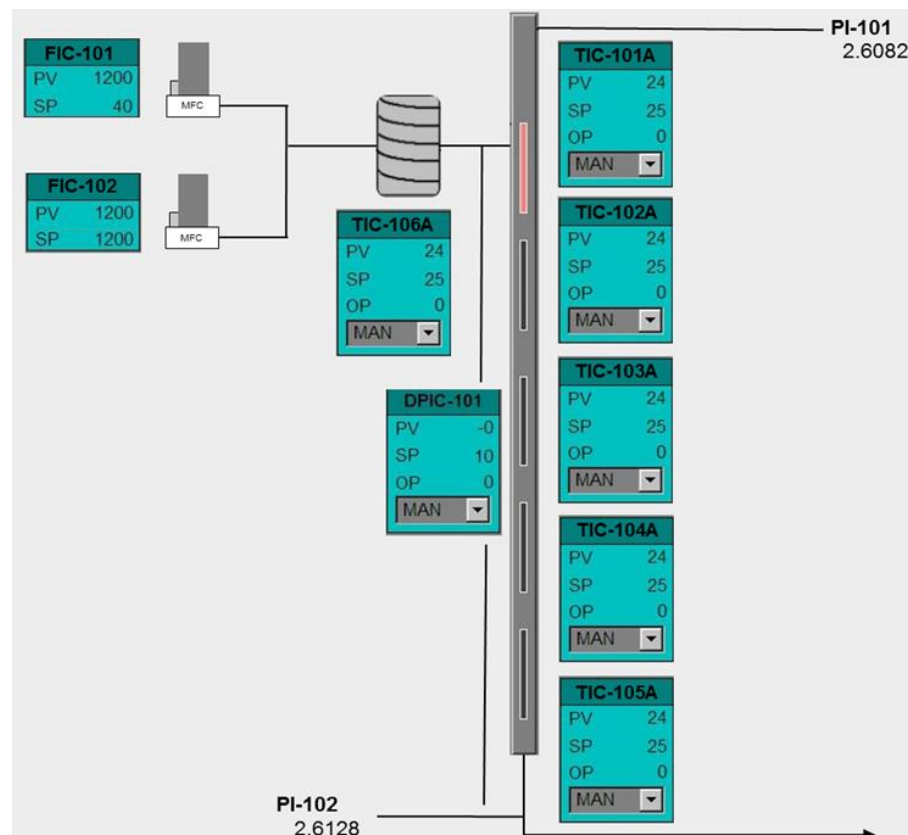


Figura 2.5. Imagen del sistema de control para el monitoreo y registro de caídas de presión experimentales.

2.4 Experimento en blanco: tubo vacío

Previo a realizar cualquier medición formal caída de presión habiendo empacado el tubo de proceso con los materiales sólidos ya referidos, se realizó una prueba en blanco utilizando el tubo vacío. Este ensayo permitió verificar

y cuantificar una posible caída de presión asociada a la rugosidad del tubo, a la malla que soporta al soporte de catalizador en la parte inferior del tubo y a los instrumentos de medición. Convenientemente, este ensayo fue realizado a las condiciones de operación más severas en términos de flujo de alimentación de gas de proceso y temperatura de acuerdo con las condiciones de los experimentos formales, como será indicado más adelante en este Capítulo. Notar que las condiciones específicas de flujo de alimentación de gas, temperatura y presión de los diferentes experimentos se ofrecen en el Capítulo 3, Sección 3. 2.

Después de verificar la hermeticidad del tubo de proceso, presurizándolo a 5.0 kg/cm^2 , y de conectar los instrumentos de medición correspondientes, el sistema fue alimentado con 5,800 slph de aire comprimido. Recordar que el aire es dosificado al sistema mediante los controladores de flujo másico térmicos FIC-101 y FIC-102. Inmediatamente después de empezar a alimentar aire, se inicia el calentamiento, en forma gradual, del tubo de proceso con las resistencias asociadas a los elementos de temperatura TIC-101A, TIC-102A, TIC-103A, TIC-104A y TIC-105A, con incrementos de temperatura moderados de aproximadamente $10 \text{ }^\circ\text{C}$, hasta llegar a la temperatura requerida, $400 \text{ }^\circ\text{C}$ en este caso. Una vez estabilizada tanto la temperatura de precalentamiento del gas de proceso así como la temperatura del tubo, se ajusta la posición de la válvula de contra-presión o *back pressure* colocado a la salida del tubo empacado para garantizar que la presión de entrada (PI-101) al mismo sea de 2.5 kg/cm^2 . Cuando la presión de entrada al tubo y la temperatura permanezcan estables durante un lapso de unos 15 minutos, se registra, cada minuto y durante un periodo de 15 minutos, la lectura de los indicadores de presión PI-101 y PI-102, así de la celda de presión diferencial DPIC-101.

Después de procesar los datos correspondientes y evaluando los promedios respectivos, la DPIC reportó una caída de presión de 2.860 mm de agua equivalente a 0.0003 kg/cm^2 , un valor despreciable considerando los valores de caída de presión de los experimentos formales, los cuales serán presentados y discutidos a detalle en el Capítulo 3 de este trabajo de tesis. Como consecuencia de lo anterior, los valores de caída de presión de los experimentos formales, es decir, utilizando el tubo empacado, no deberán de ser corregidos.

2.5 Experimentos formales: tubo empacado con soporte de catalizador

Los experimentos de caída de presión comienzan con el pesado, en una balanza analítica, de la masa del material correspondiente para empacar los 2.0 m de tubo. La cantidad de material depende esencialmente del ABD, en otras palabras, la masa de sólido para empacar el tubo se incrementa con el ABD considerando que el volumen del tubo de proceso es fijo. El material es cargado por la parte superior del tubo con ayuda de un embudo, siendo vertido a lo largo del contenedor, resultando en un empacado aleatorio o al azar, referido específicamente en la literatura internacional

como *Poured Random Packing* (empacado aleatorio por vertido) [6]. Notar que después de incorporar el material al tubo, éste no fue golpeado ni sujeto a vibración para asentar el material con la finalidad de evitar una compactación del lecho catalítico que puede resultar en una disminución de la fracción hueca, y generar una mayor caída de presión. En la parte inferior del tubo se ha instalado una malla de con una apertura de poro de 50 micrones, tamaño suficiente para contener cualquiera de los materiales sujetos a estudio sin causar, en principio, una caída de presión que pueda afectar las mediciones formales de esta respuesta. Posteriormente, el reactor se cierra y se conectan los instrumentos respectivos. Cerrado el reactor, se realiza una prueba de hermeticidad a temperatura ambiente presurizando el tubo empacado con aire comprimido a 4.0 – 5.0 kg/cm² man. La presión interna del tubo no debe caer más de 0.025 kg/cm² en una hora para poder asegurar la ausencia de fugas en el sistema. Habiendo verificado la hermeticidad del reactor, se libera la presión y se conectan el resto de los instrumentos de medición y luego la línea de alimentación de aire al reactor.

Como será detallado posteriormente en el Capítulo 3, a cada condición de presión (P) y temperatura (T) experimental, se alimentaron al tubo empacado entre ocho y diez niveles diferentes de flujo de aire. A cada condición de flujo volumétrico de entrada, a P y T determinadas, a su vez, se tomaron unas 8 lecturas de presión a la salida y a la entrada del reactor que luego fueron utilizadas para el cómputo de la caída de presión a través del tubo empacado, o bien de presión diferencial. Con esta información, habiendo calculado los promedios correspondientes, será posible construir de gráficos de caída de presión como función de variables independientes diversas asociadas al flujo volumétrico alimentado de aire, como por ejemplo el número de Reynolds, la velocidad superficial promedio del gas, el GHSV, etc. Tomar en cuenta que la velocidad superficial promedio del fluido es proporcional con el flujo volumétrico para una sección transversal fija, siendo ésta última una variable independiente de alto impacto en la caída de presión como puede verse, a manera de ejemplo, en la ec. 1.11, en la Sección 1.3.1. del Capítulo 1. El número de Reynolds de partícula (Re_p) es también proporcional con la velocidad superficial promedio.

2.5.1 Operación a temperatura ambiente

Para los experimentos de caída de presión a temperatura ambiente, las resistencias asociadas al TIC-106A (pre-calentador) así como los TIC-101A, TIC-102A, TIC-103A, TIC-104A y TIC-105A (5 zonas de calentamiento del lecho catalítico) permanecieron apagadas. La alimentación de aire al reactor se inició de forma gradual con los controladores de flujo másico referidos como FIC-101 y FIC-102, dosificando el caudal específico asignado a cada experimento. En el arranque y para facilitar el ajuste de la presión a la entrada del reactor, la experiencia indica que hay que iniciar la experimentación con el primer (menor) nivel de flujo, de manera que los experimentos comenzaron con el nivel más

bajo del bloque experimental respectivo. Para garantizar que la presión de entrada al reactor (lectura del PI-101) corresponde al valor indicado en el programa experimental (2.5 o 3.0 kg/cm², como será referido en el Capítulo 3), la posición de la válvula de contra-presión o *back pressure* colocada a la salida del reactor fue ajustada. Cuando la presión de entrada permanezca estable durante 10 min, se tomaron unas 8 lecturas, una cada minuto, de los valores desplegados por los instrumentos DPIC-101, PI-101 y P1-102 hasta alcanzar condiciones estables.

Concluido el experimento al menor flujo volumétrico de aire, el caudal de gas de proceso fue incrementado al siguiente nivel ajustando, de ser necesario la posición de la válvula de contra-presión o *back pressure* que se encuentra colocado a la salida del reactor, para garantizar que la presión de entrada al tubo de empacado sea la solicitada (2.5 o 3.0 kg/cm²). Alcanzando condiciones estables, tomar las lecturas asociadas a los instrumentos DPIC-101, PI-101 y P1-102 con la frecuencia ya referida arriba. Continuar con la experimentación hasta completar los n niveles de flujo solicitados en el programa experimental correspondiente. A la entrada del tubo empacado (lectura del PI-101), nuevamente, se aseguró en todo momento que el valor de presión se mantuviera en 2.5 o 3.0 kg/cm².

2.5.2 Operación a temperatura por encima del ambiente

Relativo a los experimentos a temperatura por encima de la ambiente, el lecho tiene que ser calentado en la presencia de flujo de gas de proceso. En el arranque, el calentamiento del tubo se llevó a cabo ingresando el flujo más bajo de aire relativo a los n niveles de flujo utilizados para un material determinado a las condiciones específicas de presión y temperatura requeridas por el experimento. Antes de su ingreso al reactor, el gas se precalienta en el precalentador que tiene asociado el TIC-106, ver Figura 2.4. De manera simultánea se comienza con el calentamiento del lecho catalítico con las resistencias asociadas a los instrumentos TIC-101A, TIC-102A, TIC-103A, TIC-104A y TIC-105A. El incremento de temperatura tanto del precalentador y de las resistencias colocadas a lo largo del tubo se realizaron de forma gradual hasta alcanzar el valor de la temperatura solicitada en el ensayo. Después de estabilizarse la temperatura del precalentamiento y del lecho catalítico, la presión de entrada (PI-101) fue ajustada al valor adecuado manipulando la válvula de contra-presión o *back pressure*. Una vez que la presión de entrada permanece estable durante unos 15 min, se tomaron unas 8 lecturas, una cada minuto, de los valores desplegados por los instrumentos DPIC-101, PI-101 y P1-102 así como TIC-101A - TIC-105A. Finalizado el ensayo realizado al menor flujo volumétrico de aire, se incrementa el flujo de aire al tubo empacado al siguiente nivel solicitado en el programa experimental y, en caso de ser necesario, ajustar la posición de la válvula de contra-presión o *back pressure* a la salida del reactor, para asegurar que la presión de entrada al tubo de empacado sea la adecuada (2.5 o 3.0 kg/cm²). Alcanzando condiciones estables, registrar los valores desplegados por los DPIC-101, PI-101 y P1-102 así como TIC-101A - TIC-105A con la frecuencia

ya mencionada con anterioridad. Seguir con la experimentación hasta completar los n niveles de flujo asociados al programa experimental respectivo.

2.6 Referencias

- [1] Fundamentos y técnicas de investigación comercial, 10ª Edición, E. Ildfonso-Grande, E. Abascal-Fernández, ESIC, 2009
- [2] Quimiometría, C. Mongay-Fernández, Universidad de Valencia, 2005
- [3] F. Benyahia, K.E. O'Neill. Enhanced voidage correlations for packed beds of various particle shapes and sizes. *Particulate Science and Technology* 23 (2005)169
- [4] A. de Klerk, Voidage variation in packed beds at small column to particle diameter ratio, *AIChE Journal.*, 49 – 8 (2003)
- [5] Flujo de fluidos e intercambio de calor, O. Levenspiel, Reverté, 1993
- [6] K.G. Allen, T.W. von Backström, D.G. Kröger, Packed-bed pressure drop dependence on particle shape, size distribution, packing arrangement and roughness, *Powder Technology*, 246 (2013) 590

CAPÍTULO 3.

RESULTADOS EXPERIMENTALES

Sumario de Capítulo:

En este capítulo se reportan y discuten los resultados experimentales del presente trabajo de tesis. En una primera sección de texto se reportan las propiedades de partícula promedio, i.e., longitud, diámetro, diámetro equivalente, esfericidad, densidad del sólido en forma empacada, densidad de partícula y fracción hueca, asociadas a los cinco soportes de catalizador utilizados para empacar el tubo de proceso en los experimentos de caída de presión. Sobre la base de esta información se realiza una jerarquización de los materiales en términos de dichas propiedades, poniendo particular atención en la propiedades que tienen el impacto más relevante en la caída de presión de lecho como es el caso del diámetro (equivalente) de partícula (relación diámetro interno de tubo a diámetro de partícula ($d_t/d_{p,e}$), la fracción hueca y la esfericidad. Esta información confirma que los materiales referidos exhiben una $d_t/d_{p,e}$ entre 3.2 y 5.8, correspondiendo claramente a una configuración de tubo empacado con marcados efectos de pared. A partir de los valores de ABD de los diferentes materiales, se definieron las condiciones específicas de flujo de alimentación experimentales, constanding de 8 – 10 niveles diferentes para variar la velocidad superficial promedio del fluido y el número de Reynolds de partícula, como ya fue señalado en el Capítulo 2, para completar los ensayos de caída de presión. En la parte medular del Capítulo se expone una selección de los resultados experimentales de caída de presión para los cinco soportes de catalizador, información que es presentada en forma gráfica con la finalidad de poder visualizar el efecto que tiene el flujo de alimentación de aire, WHSV, GHSV y Re_p , la temperatura, y la presión de entrada en la pérdida de presión que experimenta el lecho catalítico. Los resultados de caída de presión experimental son también discutidos en relación a las propiedades de partícula promedio, poniendo especial atención en el tamaño de partícula y la fracción porosa asociada.

3.1 Propiedades de los materiales

En el Capítulo 2 se expuso de manera detallada la metodología experimental que fue aplicada para caracterizar las partículas de los cinco soportes de catalizador seleccionados para empacar el tubo de proceso que se utilizó en los experimentos de caída de presión. En el Apéndice A, en tanto, se ofrecen una serie de gráficos de los valores puntuales de las mediciones individuales diámetro y longitud de partícula, así como diámetro de orificio, según aplique, utilizadas para calcular los promedios respectivos de dichas propiedades. La Tabla 3.1 despliega un resumen de los resultados de dicha caracterización en términos de los valores promedio de diámetro de partícula ($d_{m,p}$) y longitud ($L_{m,p}$), diámetro equivalente de partícula ($d_{p,e}$), ABD, densidad promedio de partícula ($DEN_{m,p}$), área externa y fracción hueca del lecho (ϵ_m). De manera adicional, se ofrece información de la relación entre el diámetro interno de tubo empacado (d_t) y el diámetro de partícula equivalente referido ($d_{p,e}$) acotado en la Tabla 3.1 como $d_t/d_{p,e}$.

De acuerdo con la información mostrada en la Tabla 3.1, se observa que los valores de la densidad promedio de partícula ($DEN_{m,p}$) se mantuvo entre 1.05 para el material CAT-C, y 2.15 g/cm³ en el caso del soporte de catalizador codificado como CAT-A. El valor de ABD de los soportes de catalizador investigados, en tanto, varió entre 0.41 y 1.33 g/cm³. El ABD es necesario para poder conocer la masa nominal necesaria a empacar el tubo de 2.0 m y 2.54 cm de OD así como el intervalo de flujo de alimentación de gas de proceso. Es entendible que los dos materiales provistos con perforaciones, i.e., CAT-C y CAT-E, sean los más ligeros.

La fracción hueca promedio asociada a los diferentes materiales, en tanto, varió en un amplio intervalo, 0.38 - 0.61, CAT-A (esfera de 1/4" de diámetro nominal) exhibiendo el menor valor, y CAT-C (el tetralobular perforado en el centro mostrando, que corresponde a una morfología de partícula irregular) reportando el valor más alto. Por el contrario, el soporte que genera menos espacios vacíos en el lecho es el CAT-A por ser un material esférico regular, de tamaño relativamente pequeño, como se mencionó anteriormente. Con respecto a las dimensiones de los materiales, se observa que el soporte comercial de catalizador CAT-D corresponde al material con la menor relación $d_t/d_{p,e}$ al presentar un valor de 3.2. Notar que el CAT-D fue el sólido de partícula más grande con $d_{p,e}$ igual a 6.6 mm. Por el contrario, la esfera denotada como CAT-A es la que presenta una mayor relación $d_t/d_{p,e}$ mostrando un valor de 5.8, debido a que presenta un $d_{p,e}$ de 3.6 mm, es decir, 1.8 veces más pequeño. Los materiales perforados por el centro (CAT-C y CAT-E) presentan una relación $d_t/d_{p,e}$ similar, debido a que son materiales de dimensiones ($L_{m,p}$ y $d_{p,e}$) muy parecidas entre sí. El CAT-E presentó un mayor tamaño de $d_{p,e}$ con respecto al cilindro (CAT-B), 6.0 mm en comparación con 5.2 mm, sin embargo, fue de casi el mismo tamaño que el CAT-C (5.7 mm). Una vez mencionada la relación $d_t/d_{p,e}$ que existe en los soportes utilizados y de acuerdo con lo mencionado por Benyahia y O' Neill en la ref. [1], es importante resaltar que los experimentos de caída de presión se realizaron dentro de un alto régimen de efecto de pared.

Tabla 3.1. Propiedades físicas de los soportes comerciales de catalizador determinadas experimentalmente para realizar los ensayos de caída de presión en un tubo empacado de baja relación d_i/d_p o $d_i/d_{p,e}$.

Morfología	CAT-A	CAT-B	CAT-C	CAT-D	CAT E
	Esfera	Cilindro	Tetralóbulo perforado	Esfera	Cilindro perforado
$L_{m,p}$, mm	-	6.7	8.6	-	7.3
$d_{m,p}$, mm	3.6	3.7	5.0	6.6	4.8
$DEN_{m,p}$, g/cm ³	2.15	1.75	1.05	1.50	1.09
$d_{p,es}$, mm	3.6	5.2	5.7	6.6	6.0
ABD, g/cm ³	1.33	0.96	0.41	0.66	0.51
ϵ_m	0.38	0.45	0.61	0.56	0.53
$d_i/d_{p,e}$	5.8	4.1	3.7	3.2	3.5
ϕ_m	1.0	0.84	0.45	1.0	0.61
Área externa, cm ²	0.21	1.02	2.19	0.68	1.79

Con relación a la esfericidad promedio (ϕ_m) de los materiales de morfología no esférica, este valor se movió entre 0.45 y 0.84, siendo el CAT-B (*pellet* cilíndrico no perforado) el que presentó el valor mayor, mientras que el CAT-C (*pellet* tetralobular perforado en el centro) el menor. De acuerdo con lo anterior, sería posible relacionar en términos semi-cuantitativos la esfericidad con la morfología de la partícula utilizada, es decir, conforme la partícula se vuelve más irregular en su configuración, la esfericidad disminuye. Por ejemplo, el CAT-C, al cual le corresponde el valor más pequeño de esfericidad presenta una morfología irregular al ser un material conformado por tetralóbulos y perforación central, como puede constatarse en la Figura 2.1 de la Sección 2.1.1, en el Capítulo 2.

El área externa promedio de los materiales ($A_{p,i}^{ext}$), como fue presentado en la Sección 2.2, ec. 2.13 del Capítulo 2, está incorporado en el cálculo de la esfericidad, en el denominador, por lo que partículas con diámetros equivalentes comparables y menores valores de esfericidad reportarían una mayor área externa. El material CAT-C y CAT-E exhiben una notable mayor área externa comparada con el resto de los materiales, mientras que el sólido CAT-A, en contraste, destaca por su baja área externa. Esta característica es de relevancia desde el punto de vista catalítico, de acuerdo con el concepto de factor de efectividad, siendo deseable tener materiales con dimensiones características (relación volumen a área externa de partícula) menores de acuerdo con la definición del módulo de Thiele [2].

3.2 Condiciones experimentales para los ensayos de caída de presión

A partir de los valores de ABD reportados en la Tabla 3.1, se determinó la masa nominal de cada material, para ser empacada en el tubo 2.0 m de longitud y 1.0 pulg de OD ced. 14, es decir, 2.119 cm de diámetro interno referido como d_i . Estos valores correspondieron específicamente a los siguientes:

CAT-A (esfera, 1/8"): 938 g

CAT-B (cilindro, 1/8"): 678 g

CAT-C (tetralobular perforado): 286 g

CAT-D (esfera, 1/4"): 463 g

CAT E (cilindro perforado, 1/4"): 358 g

Como ya fue referido con anterioridad, en todos los experimentos de caída de presión se empleó aire comprimido como gas de proceso, cuyo flujo volumétrico fue dosificado en forma precisa mediante el uso de controladores de flujo másico como ya fue comentado previamente en la Sección 2.3 del Capítulo 2. Es importante destacar que, para cada material, los valores específicos de flujo volumétrico de aire alimentado al tubo empacado fueron definidos en términos del WHSV (*weight hourly space velocity* - velocidad espacial hora base peso) y el GHSV (*gas hourly space velocity* - velocidad espacial hora para fluidos en fase gaseosa). Tanto el WHSV como el GHSV son parámetros operativos de alto significado en el contexto de reactores catalíticos heterogéneos de lecho fijo. El primero se define, para este caso particular, como la relación entre el flujo másico total de gas alimentado al tubo empacado y la masa de soporte de catalizador utilizado para empacar dicho tubo, tal y como lo expresa la ec. 3.1.

$$\text{WHSV} = \frac{\text{Flujo másico de gas alimentado al tubo empacado}}{\text{Masa de catalizador empacado}} \quad \text{ec. 3.1}$$

El GHSV se concibe como la relación entre el gas de alimentación a la entrada, el cual se mide a condiciones estándar (25 °C y 1 atm), y el volumen del tubo empacado, como lo expresa la ec. 3.2, y se define como la relación entre el gas de alimentación a la entrada, el cual se mide a condiciones estándar (25 °C y 1 atm), y el volumen del tubo empacado.

$$\text{GHSV} = \frac{\text{Flujo volumétrico de gas (a condiciones estándar) al tubo empacado}}{\text{Volumen del tubo empacado}} \quad \text{ec. 3.2}$$

Con la finalidad de abarcar una región amplia de WHSV y GHSV, específicamente comprendida entre 2.8 – 14.5 h⁻¹ y 950 - 8,400 h⁻¹, respectivamente, el flujo volumétrico de aire a la entrada del tubo empacado medido a

condiciones estándar ($F_{v,aire}^0$) aplicado a los experimentos de caída de presión se ubicó entre 670 y 5,900 slph (*standard liters per hour* – litros estándar por hora). Evidentemente según lo representado por las ecs. 3.1 y 3.2, tanto WHSV como GHSV varían proporcionalmente con el $F_{v,aire}^0$ que es dirigido al lecho empacado.

Tabla 3.2. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-A.

Variable / Medición	1	3	5	7	8
GHSV, h ⁻¹	3,101	3,797	4,768	6,414	7,752
WHSV, h ⁻¹	2.8	3.4	4.3	5.8	7.0
$F_{v,aire}^0$, slph	2,185	2,675	3,360	4,520	5,463
Re _p @ 25 °C	397	487	620	832	1,005
Re _p @ 400 °C	225	275	346	465	561
v (@ 20 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	0.54	0.67	0.82	1.10	1.34
v (@ 400 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	1.22	1.49	1.88	2.53	3.05

Otras dos variables de importancia en la caída de presión que experimenta un lecho empacado, como ya fue referido con cierto detalle en el Capítulo 1, son la velocidad superficial promedio del fluido (v) y el número de Reynolds de partícula (Re_p). Estas dos variables también se incrementan proporcionalmente con $F_{v,aire}^0$, aunque también dependen de las condiciones de presión y temperatura o bien de la configuración de partícula. En particular v es función de la temperatura y la presión como puede inferirse de la ec. 1.3, Sección 1.1.1 del Capítulo 1, toda vez que varía con la densidad del fluido. El Re_p , como puede ser constatado en la ec. 1.8 de la Sección 1.3.1. del Capítulo 1, depende del tamaño de la partícula incorporado como d_p en el caso de esferas y $d_{p,e}$ en el caso de partículas no esféricas y de la viscosidad, esta última es una propiedad que también depende de la temperatura. Considerando lo comentado en el párrafo anterior y teniendo en cuenta los tamaños de partícula referidos en la Tabla 3.1, el intervalo de Re_p de los experimentos se ubicó entre 190 – 1900, es decir, abarcando una región de régimen de flujo de transición (10 a 300) y turbulento (mayor a 300) de acuerdo con la clasificación sugerida por Ziokowska en la ref. [3].

Tabla 3.3. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-B.

Variable / Medición	1	3	5	7	8
GHSV, h ⁻¹	2,235	2,916	3,945	6,097	8,383
WHSV, h ⁻¹	2.8	3.6	4.9	7.6	10.5
F _{v,aire} ^o , slph	1,576	2,055	2,781	4,298	5,909
Re _p @ 25 °C	431	562	761	1,176	1,617
Re _p @ 400 °C	255	333	450	696	901
v (@ 20 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	0.39	0.51	0.69	1.06	1.46
v (@ 400 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	0.88	1.15	1.54	2.39	3.11

Con respecto a la temperatura, los experimentos de caída de presión fueron efectuados a cuatro diferentes condiciones, a saber, temperatura ambiente, 200 °C, 300 °C y 400 °C. La presión de entrada al tubo empacado fue ajustada en la mayoría de los ensayos en 2.5 kg/cm² man. Sólo un bloque de experimentos fue efectuado a 3.0 kg/cm², en el cual, la temperatura del lecho empacado se mantuvo en 400 °C, el valor más alto de la serie de “baja presión”. Por consiguiente y para mayor referencia, las siguientes cinco combinaciones de condiciones experimentales fueron implementadas: (i) 25 °C – 2.5 kg/cm² man., (ii) 200 °C – 2.5 kg/cm² man., (iii) 300 °C – 2.5 kg/cm² man., (iv) 400 °C – 2.5 kg/cm² man. y (v) 400 °C – 3.0 kg/cm² man. Es importante recordar que, con el objetivo de poder construir gráficos de ΔP como función de variables independientes de interés como es el caso de WHSV, GHSV, Re_p, y velocidad superficial promedio, cada experimento a condiciones P y T definidas, incluyó entre ocho y diez diferentes valores de F_{v,aire}^o. Adicionalmente, ese tipo de gráficos permitirá valorar de manera semi-cuantitativa el efecto de la temperatura y la presión en la caída de presión, a condiciones de flujo específicas.

Para visualizar las condiciones de operación específicas de algunos experimentos efectuados, las Tablas 3.2 a 3.6 incluyen información resumida relativa a los valores de WHSV y GHSV de referencia, así como flujos volumétricos nominales de aire alimentado medidos a condiciones estándar utilizados en ensayos empacando el tubo de proceso con los diferentes soportes comerciales de catalizador. Como información complementaria, estas tablas incluyen los valores del Re_p y la velocidad superficial promedio del gas, ambos evaluados tanto a temperatura ambiente como a 400 °C. Es importante observar de las Tablas 3.2 – 3.6 que a un valor determinado de F_{v,aire}^o, al incrementar la temperatura de 25 a 400 °C, la velocidad superficial promedio del gas aumentó casi 2.3 veces. Los valores de Re_p, en tanto, se mueven en sentido contrario como resultado del efecto positivo que la temperatura tiene en la viscosidad, propiedad que va en el

denominador de la expresión para el cálculo de Re_p (ver ec. 1.8, Sección 1.3.1 del Capítulo 1). Para este mismo incremento de temperatura, de hecho, el Re_p disminuye aproximadamente 1.7 veces, lo cual está asociado al incremento en la viscosidad del fluido de proceso.

Tabla 3.4. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-C.

Variable / Medición	1	3	5	7	8
GHSV, h ⁻¹	954	1,188	1,581	2,839	4,728
WHSV, h ⁻¹	2.8	3.5	4.7	8.4	14.0
$F_{v,aire}^o$, slph	672	837	1,114	2,000	3,332
Re_p @ 25 °C	196	244	325	579	962
Re_p @ 400 °C	109	135	180	324	539
v (@ 20 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	0.16	0.20	0.27	0.49	0.82
v (@ 400 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	0.38	0.47	0.62	1.12	1.86

Tabla 3.5. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-D.

Variable / Medición	1	3	5	7	8
GHSV, h ⁻¹	1,532	1,915	2,554	4,597	7,661
WHSV, h ⁻¹	2.9	3.7	4.9	8.7	14.5
$F_{v,aire}^o$, slph	1,121	1,401	1,868	3,363	5,605
Re_p @ 25 °C	371	463	618	1,112	2,022
Re_p @ 400 °C	208	259	345	622	1,035
v (@ 20 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	0.27	0.34	0.45	0.81	1.36
v (@ 400 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	0.63	0.78	1.04	1.87	3.13

Notar que, de acuerdo con la información incluida en las Tablas 3.2 y 3.6, el intervalo de WHSV y GHSV asociado a los materiales con mayor valor de ABD (CAT-A y CAT-B), es un poco más cerrado debido a que se requiere más masa de material para empacar el tubo y de este modo mayor flujo de alimentación de aire, sobrepasando en algunos casos el límite de flujo de los controladores de flujo másico respectivos.

Tabla 3.6. Condiciones de flujo volumétrico de alimentación de aire para los experimentos a 20 °C y 2.5 kg/cm² man efectuados para medir caída de presión en un tubo empacado con el material CAT-E.

Variable / Medición	1	3	5	7	8
GHSV, h ⁻¹	1,180	1,475	1,968	3,536	5,905
WHSV, h ⁻¹	2.8	3.5	4.6	8.4	14.0
F _{v,aire} ^o , slph	831	1,039	1,387	2,492	4,161
Re _p @ 20 °C	253	317	421	755	1,259
Re _p @ 400 °C	139	173	231	416	693
v (@ 20 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	0.19	0.25	0.33	0.59	0.99
v (@ 400 °C y 2.5 kg/cm ² man), m/s	0.40	0.50	0.67	1.21	2.0

3.3 Resultados experimentales y discusión

Con la finalidad de mostrar un compendio de la información experimental obtenida, en esta sección se incluyen una serie de gráficos que muestran la evolución de la caída de presión experimentada por los soportes de catalizador como función de variables dependientes como el Re_p y GHSV, a diferentes condiciones de temperatura y presión. Nótese que, para fines prácticos, el eje “y” de todos los gráficos desplegados presenta valores de caída de presión relativos, denotados como ΔP_{ij}^{rel} , los cuales se define de acuerdo a la ec. 3.1.

$$\Delta P_{ij}^{rel} = \frac{\Delta P_{ij}}{P_i^o} \quad \text{ec. 3.1}$$

P_i^o representa la presión a la entrada del tubo empacado del i-ésimo experimento, ya sea 2.5 o 3.0 kg/cm² man. para cada uno de los experimentos realizados a diferente temperatura (25 a 400 °C), de acuerdo con el protocolo experimental mostrado en la Sección 2.4, mientras que ΔP_{ij} corresponde a la caída de presión del experimento i medida en la condición j-ésima de F_{v,aire}^o. Considerar que, en caso de ser requeridos, los valores explícitos de $\Delta P/L$, relación que es utilizada en diversas publicaciones sobre el tema, puede ser fácilmente calculado tomando en cuenta que la longitud del tubo empacado es de 2.0 m e incorporando el valor de presión a la entrada del tubo en el i-ésimo experimento.

3.3.1 ΔP^{rel} vs Re_p

La Figura 3.1 contiene una serie de gráficos contruidos a partir de los valores de la caída de presión experimental relativos como una función del Re_p para las cinco muestras de soportes de catalizador. De manera

particular, los tres gráficos de la Figura 3.1 consideran datos experimentales a tres condiciones P-T diferentes, a saber, 25 °C, 200 °C y 300 °C, manteniendo en todos los casos la presión del reactor en 2.5 kg/cm² man. El Re_p es una variable independiente proporcional a la velocidad superficial promedio la cual depende del caudal de gas de proceso alimentado, del tamaño de partícula promedio (d_p o $d_{p,e}$) y la temperatura que tiene incidencia en el valor de la viscosidad del fluido. Se observa en primera instancia que, independientemente del tipo de material usado para empacar el tubo, en correspondencia con lo reportado en la literatura [4]-[10], la caída de presión se incrementa de manera no lineal con el Re_p a condiciones definidas de P y T, como resultado del incremento en el flujo de alimentación de gas al tubo empacado. También se puede visualizar claramente que la caída de presión aumenta con la temperatura a condiciones de flujo y presión determinadas. Considerando la pendiente de las curvas de la Figura 3.1, la caída de presión se incrementa de manera más pronunciada conforme aumenta la temperatura del lecho empacado. A partir de una inspección visual de estos gráficos, resulta difícil cuantificar el efecto de la temperatura sobre la caída de presión, es por eso que, tal efecto es analizado a detalle en la Sección 3.3.3.

Comparando la caída de presión asociada a los diferentes materiales investigados, notar que el lecho empacado con CAT-A reporta los mayores valores de caída de presión mientras que CAT-D exhibe los menores independientemente de las condiciones de temperatura, presión de entrada y Re_p seleccionadas para la comparación. Recordar que CAT-A corresponde al soporte de catalizador que reportó la menor fracción hueca ($=0.38$) y la mayor relación $d_r/d_{p,e}$ ($=5.8$), lo que ocasiona que la fricción entre el gas que atraviesa el tubo empacado y el material de empaque sea la mayor. Los materiales perforados en el centro, CAT-C (tetralobular) y CAT-E (cilindro) también exhiben caídas de presión relativamente bajas, aunque ligeramente por encima que las asociadas al CAT-D.

Generalizando, a un determinado valor de Re_p y temperatura, la caída de presión asociada a los cinco soportes de catalizador investigados evolucionó de acuerdo con al siguiente orden:

$$\text{CAT A} > \text{CAT-B} > \text{CAT-C} > \text{CAT-E} > \text{CAT-D}$$

A manera de ejemplo y pretendiendo comparar el comportamiento de los dos materiales con forma esférica, la información desplegada en la Figura 3.1 indica que, a condiciones de 200 °C, 2.5 kg/cm² de presión de entrada y Re_p de 800, la caída de presión relativa fue del orden de 0.55 empacando el tubo con el soporte de catalizador CAT-A, mientras que utilizando el material CAT-D fue de 0.044. Esto indica que, a las condiciones referidas, CAT-A genera once veces más caída de presión que el CAT-D.

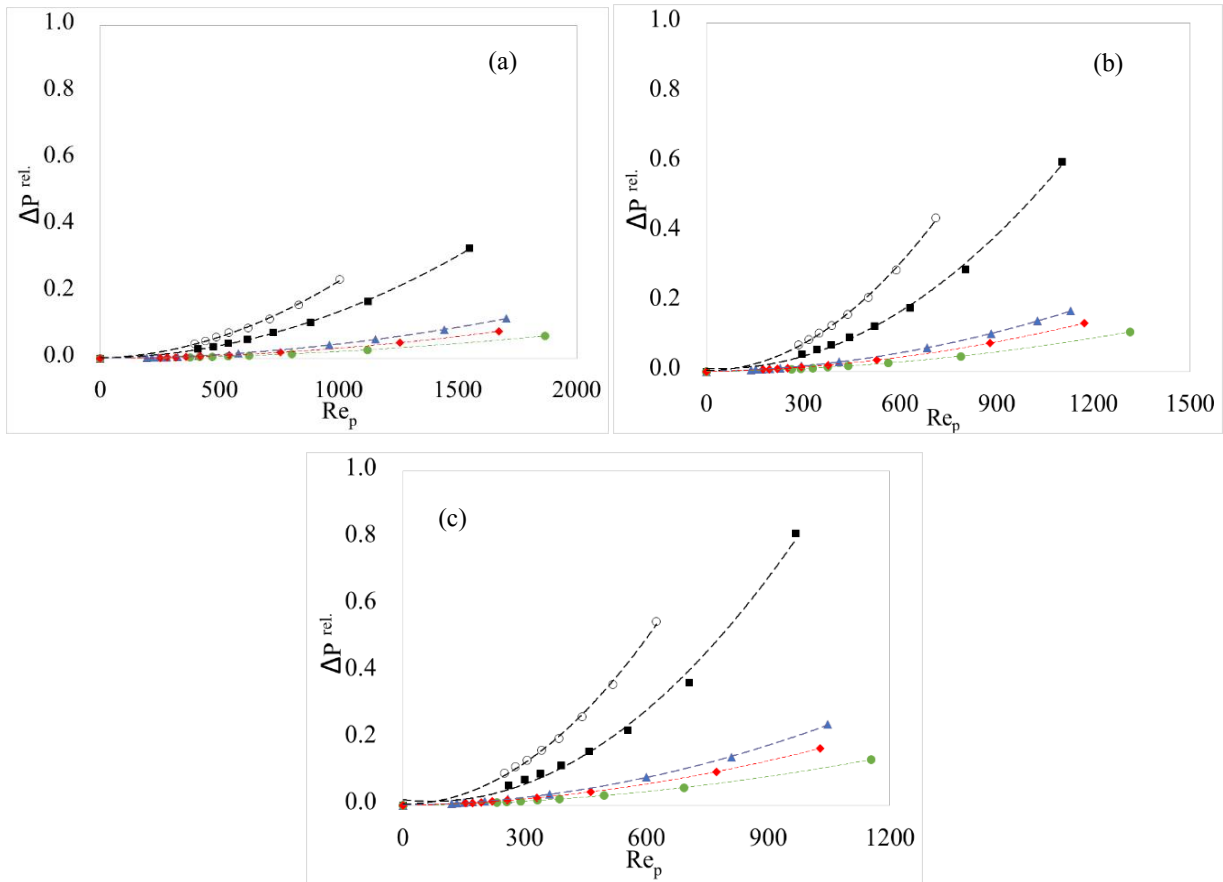


Figura 3.1. Comparativo de la evolución de la caída de presión ΔP en el lecho empacado en función a Re_p de los soportes de catalizador CAT-A (○), CAT-B (■), CAT-C (▲), CAT-D (●) y CAT-E (◆), a las diferentes condiciones P y T: (a) 25 °C– 2.5 kg/cm² man, (b) 200 °C-2.5 kg/cm² man, y (c) 300 °C -2.5 kg/cm² man.

Contrastando ahora el comportamiento del pellet cilíndrico no perforado CAT-B, contra el del cilindro perforado CAT-E, también a 200 °C, 2.5 kg/cm² de presión de entrada y Re_p de 1,100, la caída de presión asociada al lecho empacado con el primer material fue de 0.60 mientras que con el segundo alcanzó apenas un valor de 0.14. Esto significa que, a las condiciones de proceso mencionadas, el material CAT-B exhibe 4 veces más caída de presión respecto al soporte de catalizador CAT-E. Sobre la base de estos resultados, se puede confirmar que la inducción de porosidad adicional a la partícula mediante la incorporación de perforaciones, ayudan a abatir la caída de presión en lecho empacados.

3.3.2 ΔP^{rel} vs GHSV

La Figura 3.2 muestra ahora la evolución de la caída de presión relativa como función del GSHV para los cinco soportes de catalizador utilizados para tres series de experimentos a las condiciones 25, 200 y 300 °C, ajustando la presión de entrada al tubo empacado a 2.5 kg/cm² man. La caída de presión se incrementa de manera no lineal con respecto al GSHV, siendo este aumento más pronunciado conforme la temperatura del experimento es mayor. Para una condición específica de GSHV, temperatura y presión de entrada, la caída de presión se comporta de la siguiente manera:

$$\text{CAT-B} > \text{CAT-A} > \text{CAT-C} > \text{CAT-E} > \text{CAT-D}$$

Notar que la posición de CAT-A y CAT-B en la secuencia anterior se invierte respecto a lo presentado arriba en la Sección 3.3.2 debido a que la comparación en base a los valores de GSHV a diferencia de lo que aplica en el caso del Re_p , excluye el diámetro (equivalente) promedio de partícula, 3.6 mm vs 5.2 mm respectivamente, de acuerdo con la información incluida en la Tabla 3.1.

De acuerdo a lo referido en el párrafo anterior y lo discutido en la Sección 3.3.1, es evidente que el uso de partículas voluminosas (CAT-D) así como de tetra-lóbulos y cilindros ambos perforados por el centro (CAT-C y CAT-E, respectivamente) representan una opción efectiva para el control de la caída de presión. Desde la perspectiva catalítica, sin embargo, es preciso mencionar que los tetralóbulos y cilindros perforados, a diferencia de las esferas de gran tamaño, constituyen una mejor opción debido a su mayor relación área externa a volumen comparada con las esferas sólidas. A 300 °C y a la condición más alta de GSHV, la pérdida de presión fue alrededor del 82 % con respecto a la presión de entrada al lecho empacado (P°) con CAT-B, mientras que con CAT-D fue menos de 16 %. Por lo que, en resumen, CAT-D genera alrededor de 6 veces menos caída de presión en comparación con CAT-B, esto sobre la base de la comparación a condiciones definidas de GSHV, temperatura y presión de entrada. Es importante recordar que respecto a los soportes de catalizador mostrados en la Tabla 1, el CAT-D corresponde a la más baja relación $d_i/d_{p,e}$ (3.2) y a la segunda fracción hueca (0.56) más grande mientras que el CAT-B representa uno de los materiales con más alta relación $d_i/d_{p,e}$ (solo 1.7 unidades por debajo de CAT-A), y por ende uno de las más bajos valores de fracción hueca.

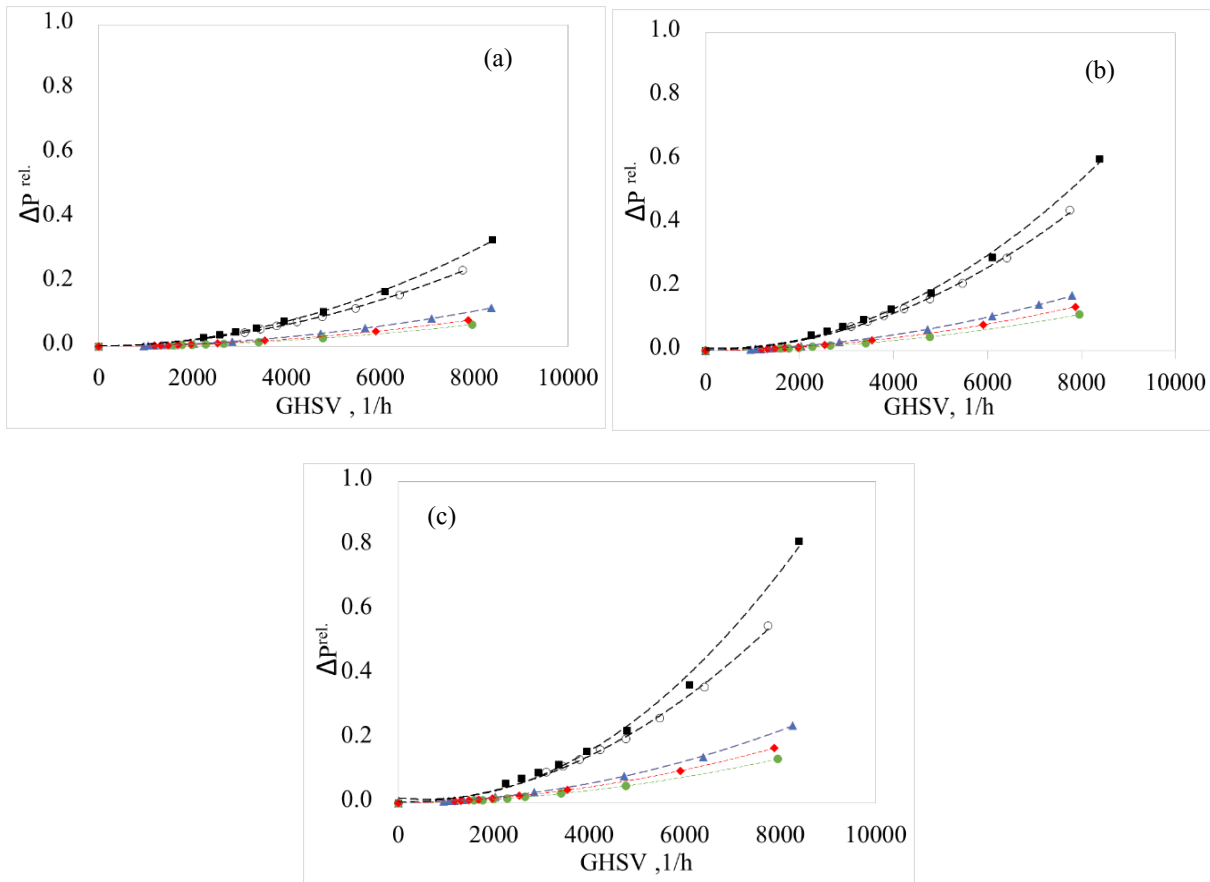


Figura 3.2. Comparativo de la evolución de la caída de presión ΔP en el lecho empacado en función al GHSV de los soportes de catalizador CAT-A (\circ), CAT-B (\blacksquare), CAT-C (\blacktriangle), CAT-D (\bullet) y CAT-E (\blacklozenge), a tres diferentes condiciones de presión y temperatura. (a) 25 °C– 2.5 kg/cm² man, (b) 200 °C-2.5 kg/cm² man, y (c) 300 °C -2.5 kg/cm² man.

3.3.3 Efecto de la presión en la caída de presión

Con el propósito de evaluar el efecto que tiene incrementar la presión a la entrada del tubo empacado en la caída de presión asociada al lecho empacado, se han preparado cuatro gráficos que son desplegados en las Figuras 3.3 y 3.4. La Figura 3.3 muestra dos gráficos de la evolución de la caída de presión relativa como una función del Re_p y la Figura 3.4 contiene dos gráficos de caída de presión relativa versus GHSV, todos ellos considerando dos bloques de experimentos llevados efectuados a 400 °C - 2.5 kg/cm² man y 400 °C - 3.0 kg/cm² man. Se puede observar que para un valor de Re_p o GHSV determinado, el incremento en la presión de entrada al tubo empacado disminuye la caída de presión relativa resultante, independientemente del soporte de catalizador utilizado para empacar el tubo de proceso.

A manera de ejemplo y con el objetivo de dar una idea cuantitativa del efecto del incremento en la presión de entrada al tubo en la caída de presión, un lecho empacado con el material CAT-A (el que reporta mayor caída de presión

entre los soportes de catalizador investigados) mantenido a 400 °C y alimentado con 5,460 slph de aire, que corresponde a un Re_p de 560 y 7,750 h^{-1} de GHSV, reporta una caída de presión relativa de 0.7 para una presión de entrada de 2.5 kg/cm^2 man., la cual disminuye a 0.46 cuando la presión de entrada se incrementa a 3.0 kg/cm^2 man. A idénticas condiciones de presión, temperatura y flujo, el material CAT-D (el de menor caída de presión entre los materiales investigados), por su parte, reportó una caída de presión relativa de 0.16 y 0.11 operando a 2.5 kg/cm^2 man y 3.0 kg/cm^2 man, respectivamente.

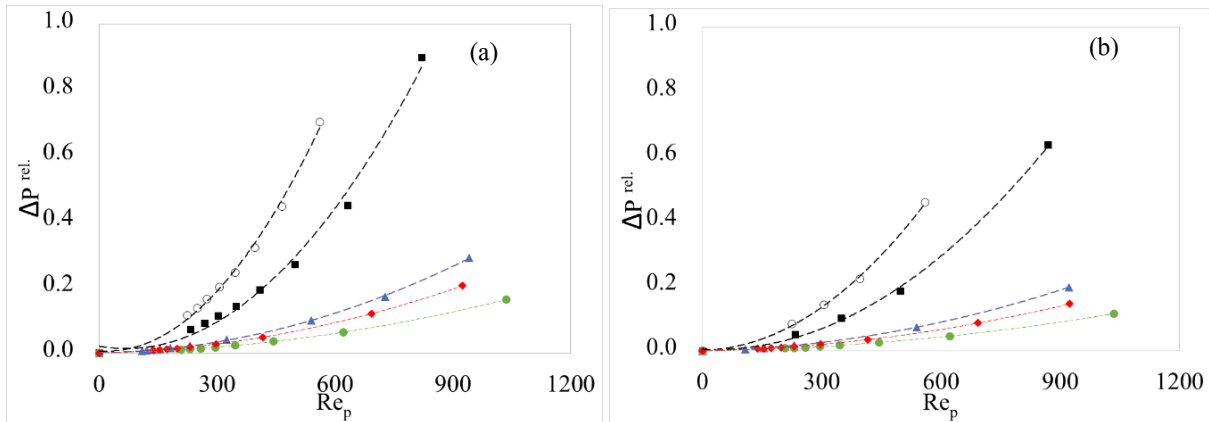


Figura 3.3. Comparación de la caída de presión relativa en función de Re_p para un lecho empacado con diferentes soportes de catalizador CAT-A (○), CAT-B (■), CAT-C (▲), CAT-D (●) y CAT-E (◆) a dos condiciones P-T diferentes. (a) 400 °C– 2.5 kg/cm^2 man., y (b) 400°C – 3.0 kg/cm^2 man.

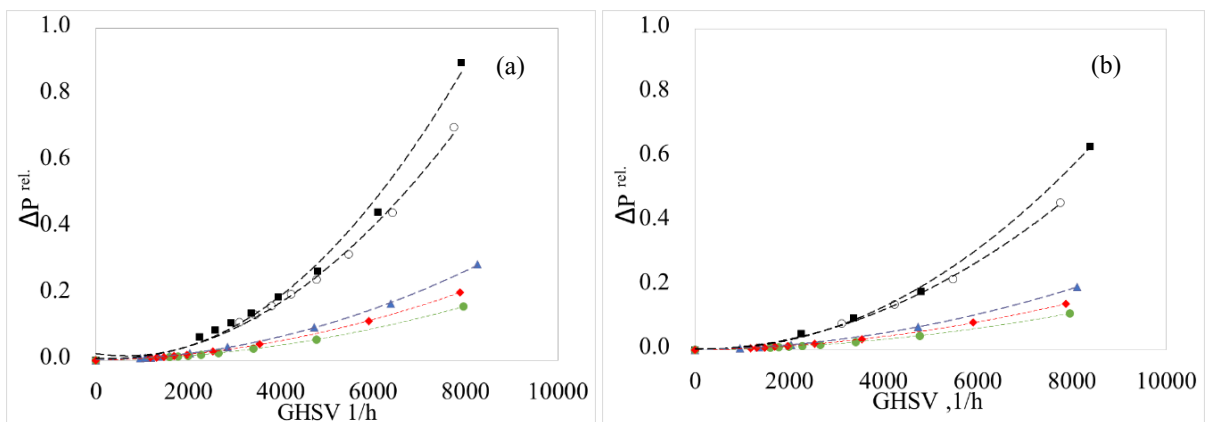


Figura 3.4. Comparación de la caída de presión relativa como función del GHSV para un lecho empacado con partículas de soportes de catalizador CAT-A (○), CAT-B (■), CAT-C (▲), CAT-D (●) y CAT-E (◆), a dos condiciones diferentes de presión de entrada. (a) 400 °C– 2.5 kg/cm^2 man. y (b) 400 °C – 3.0 kg/cm^2 man.

Analizando el comportamiento de los soportes de catalizador con perforación en el centro, el tetralóbulo CAT-C y el cilíndrico CAT-E, a un GHSV de $8,000 \text{ h}^{-1}$, se observa que el lecho empacado con CAT-C exhibe pérdida de presión de 25 % operando a $2.5 \text{ kg/cm}^2 \text{ man}$, valor que disminuye a 18 % al incrementar la presión de operación a $3 \text{ kg/cm}^2 \text{ man}$ obteniendo un valor de 0.18. El CAT-E, en tanto, experimenta una pérdida de presión de 16 % y 11 % trabajando a 2.5 y $3.0 \text{ kg/cm}^2 \text{ man}$, respectivamente, manteniendo el GHSV en $8,000 \text{ h}^{-1}$. Comentando sobre estos resultados, parece claro que el aumento en la presión de operación también es una opción para el control de la caída de presión a lo largo del lecho empacado, considerando que las caídas de presión relativas disminuyen notablemente.

3.3.4 Efecto de la temperatura en la caída de presión

La Figura 3.5 contiene cinco gráficos, uno dedicado para cada soporte de catalizador utilizado en la experimentación, los cuales muestran el progreso de la caída de presión como una función de la temperatura del lecho empacado a diversas condiciones de flujo de alimentación aire. La temperatura está comprendida entre 25 y $400 \text{ }^\circ\text{C}$, mientras que la presión de entrada al tubo empacado se mantuvo invariablemente en $2.5 \text{ kg/cm}^2 \text{ man}$. Notar que cada gráfico contiene cinco series, cada una asociada a un flujo $F_{v,\text{aire}}^0$ diferente. Es posible observar, que independientemente del caudal de aire alimentado al tubo empacado la caída de presión varía de manera lineal con la temperatura exhibiendo una pendiente positiva, dada por la relación $(\Delta P^{(1)} - \Delta P^{(0)}) / (T^{(1)} - T^{(0)})$, que de hecho aumenta conforme se incrementa el valor de $F_{v,\text{aire}}^0$. Se sabe que al ser alimentado a una presión determinada, un gas que fluye a través de un tubo, en este caso un lecho empacado, sufre una expansión que es proporcional a la temperatura. Esta expansión genera un incremento en la fricción del gas mientras fluye a través de los intersticios (fracción hueca) del lecho empacado lo que origina pérdidas de presión.

Comparando los resultados de caída de presión del tubo empacado de los diferentes soportes de catalizador incorporados en las Figuras 3.5a-e, se observa primeramente con base en los valores de las pendientes respectivas, que los valores de caída de presión asociados a los materiales de menor espacio vacío en el lecho, por ejemplo el CAT-A y el CAT B con $\epsilon_m = 0.38$ y 0.45 respectivamente, son más sensibles a los cambios en la temperatura. Los materiales CAT-D y CAT-E, por el contrario, exhiben las menores pendientes indicando que la caída de presión asociada es menos susceptible a cambios en la temperatura.

Contrastando de manera cuantitativa entre el comportamiento de material que exhibió la mayor y la menor caída de presión, CAT-A vs CAT-D, al aumentar la temperatura de $25 \text{ }^\circ\text{C}$ a $400 \text{ }^\circ\text{C}$, representó un incremento de 0.6 a 1.7 kg/cm^2 en la caída de presión, es decir, un aumento de 0.003 kg/cm^2 por grado Celsius, para un lecho empacado con CAT-A operado a $5,500 \text{ slph}$ y $2.5 \text{ kg/cm}^2 \text{ man}$. En contraste, al empacar el tubo con CAT-D, la caída de presión se

incrementa únicamente de 0.16 a 0.40 kg/cm², que corresponde a 0.0006 kg/cm² por °C bajo las mismas condiciones de flujo, temperatura y presión. Estos resultados indican que el CAT A es alrededor de 5 veces más sensible al cambio de temperatura comparado con el CAT-D.

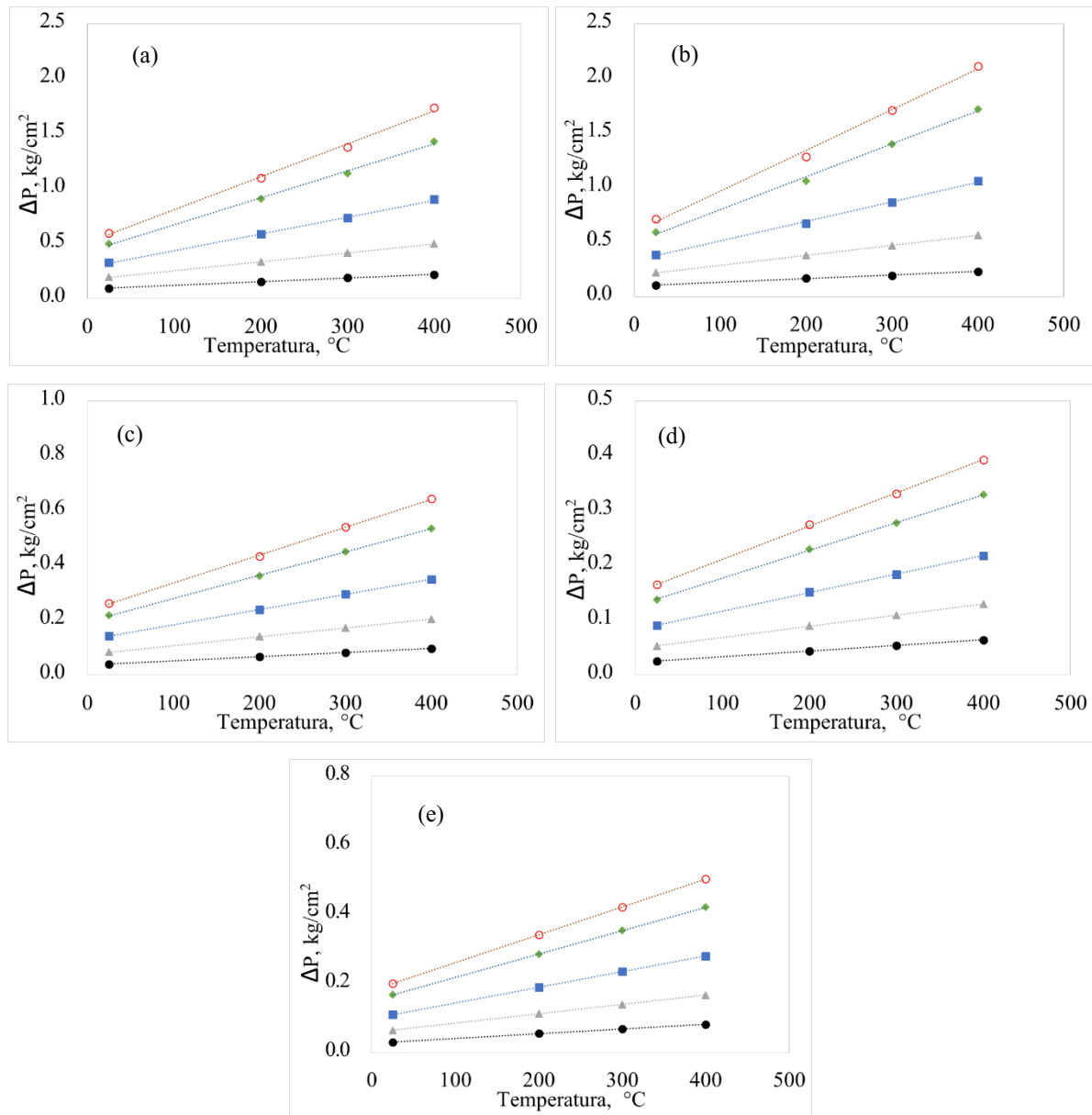


Figura 3.5. Caída de presión experimental en función de la temperatura para cuatro diferentes niveles de flujo de alimentación de aire al tubo empacado (○) 5,500 slph, (◇) 5,000 slph, (■) 4,000 slph, (▲) 3,000 slph y (●) 2,000 slph para los diferentes soportes de catalizador. (a) CAT-A, (b) CAT-B, (c) CAT-C, (d) CAT-D y (e) CAT-E.

Considerando ahora sólo los soportes de catalizador que exhibieron menor caída de presión y mayor fracción hueca, i.e., CAT-C, CAT-D y CAT-E, se observa que para el experimento realizado a 2.5 kg/cm² man de presión y alimentando el tubo de proceso con 5,500 slph, el incrementar la temperatura de 25 a 400 °C, se tradujo en los siguientes aumentos en la caída de presión y pendientes respectivas: (i) 0.27 a 0.64 kg/cm² man correspondiendo a 0.001 kg/cm² por grado Celsius para el material CAT-C, (ii) 0.16 a 0.40 kg/cm² que corresponde a 0.0006 kg/cm² por °C para el material CAT-D como había ya sido mostrado arriba y, (iii) 0.20 a 0.50 kg/cm² man dando una variación de 0.0014 kg/cm² por grado Celsius para el caso de CAT-E. Así, entre estos tres materiales y con referencia al efecto de la temperatura sobre la caída de presión, es evidente que CAT-E es el más sensible y CAT-D el menos sensible.

3.4 Referencias

- [1] F. Benyahia, K. E. O'Neill, Enhanced voidage correlation for packed beds of various particle shapes and sizes, *Particulate Science and Technology*, 23 (2005) 169.
- [2] *Modeling of Chemical Kinetics and Reactor Design*, A. Kayode Coker, Gulf Professional Publishing, U.S.A. 2001.
- [3] I. Ziokowska, and D. Ziokowski, Fluid flow inside packed beds, *Chem. Eng. Proc.*, 23 (1988) 137.
- [4] *The Properties of Gases and Liquids*, Fifth Edition, B. E. Poling, J. M. Prausnitz, J. P. O'Connell, McGraw-Hill 2004.
- [5] S. Afandizadeh, E. A. Foumeny, Design of packed bed reactors: guides to catalyst shape, size, and loading selection, *Appl. Thermal Eng.*, 21 (2001) 669.
- [6] K.G. Allen, T.W. von Backström, D.G. Kröger, Packed bed pressure drop dependence on particle shape, size distribution, packing arrangement and roughness, *Powder Technology*, 246 (2013) 590.
- [7] S. Liu, A. Afacan, J.H. Masliyah, Steady incompressible laminar flow in porous media, *Chemical Engineering Science* 49 - 21(1994) 3565.
- [8] L. D. Harrison, K. M. Brunner, W. C. Hecker, A combined packed-bed friction factor equation: extension to higher Reynolds number with wall effects. *AIChE Journal*, 59 - 3 (2013) 703.
- [9] L. G. Gibilaro, R. Di Felice, Wall effects for the pressure drop in fixed beds. *Chemical Engineering Science* 59 (2004) 3037.
- [10] A. Montillet, E. Akkari, J. Comiti, About a correlating equation for predicting pressure drops through packed beds of spheres in a large range of Reynolds numbers. *Chemical Engineering Process* 46 (2007) 329.

CAPÍTULO 4.

EVALUACIÓN DE CORRELACIONES PARA CAÍDA DE PRESIÓN

Sumario de Capítulo:

En este Capítulo se valora, con cierto detalle, la capacidad de un grupo de correlaciones para caída de presión reportadas en la literatura para reproducir la información experimental de caída de presión presentada en el Capítulo 3. De manera particular, este análisis teórico se lleva a cabo para cinco correlaciones, a saber, Ergun, Tallmadge, Ergun-Liu, Harrison y col. y Einfeld-Schnitzlein, haciendo notar que las últimas tres son expresiones que incluyen un término que incorpora de manera explícita el efecto de pared que existe en lechos empacados con una relación d_t/d_p o $d_t/d_{p,e}$ menor a 10. Primero, las correlaciones son valoradas de manera cualitativa mediante herramientas gráficas y, después, de manera cuantitativa a través del cómputo de errores o desviaciones relativas porcentuales por condición de operación (% MRPE) y globales (% ORPE), diferenciando entre valores predichos (o calculados) de caída de presión y experimentales. Habiendo observado que las predicciones de caída de presión de las correlaciones seleccionadas, incluso aquellas que incorporan de manera explícita el efecto de pared, se desvían de manera considerable de lo experimental para prácticamente todos los soportes de catalizador investigados y que, por lo tanto, no son elegibles para fines de simulación, los parámetros asociados a dichas correlaciones fueron reajustados. Un vector de parámetros es obtenido por soporte de catalizador. Se presentan finalmente las correlaciones para caída de presión en su forma reajustada incluyendo información estadística. Para poner en perspectiva la capacidad de predicción de las correlaciones ajustadas, se ofrecen una serie de gráficos de paridad así como los valores de los errores % RPE, % MRPE y % ORPE. Las correlaciones ajustadas son una opción para simulación de tubos empacados aunque acotadas a la configuración de partícula respectiva.

4.1 Selección de correlaciones de la literatura para predecir los datos experimentales de caída de presión

Como ya fue comentado con cierto detalle en la Sección 1.3 del Capítulo 1, en la literatura se reporta una extensa diversidad de correlaciones para caída de presión en lechos empacados, varias de ellas concentradas en publicaciones recientes (2005), por ejemplo Erdim y col. [1] y Radojica y col. [2]. Siendo empíricas en su gran mayoría, dichas correlaciones deben aplicarse, estrictamente hablando, en la región experimental en la que sus parámetros respectivos fueron obtenidos/estimados, lo anterior sin que sea una garantía de éxito para fines predictivos y de simulación de equipos de proceso. En otras palabras y de acuerdo con lo referido en los Capítulos 1, 2 y 3 de esta tesis, la selección de una correlación dependerá esencialmente de: (i) la configuración del lecho utilizar, (ii) la forma y tamaño de las partículas, (iii) las propiedades del fluido de proceso y, (iv) las condiciones de proceso tales como caudal alimentado, temperatura y presión.

De todo el universo de correlaciones para caída de presión que se pueden encontrar en la literatura abierta, en este Capítulo se analiza y discute con detalle la capacidad para reproducir los datos experimentales expuestos en el Capítulo 3 de esta tesis al utilizar cinco correlaciones tomadas de la literatura, en particular, Tallmadge [3], Liu-Ergun [4], Harrison y col. [5] y Einfeld-Schnitzlein [6]. La forma explícita, es decir, $\Delta P/L$, de estas expresiones corresponde a las ecs. 4.1 a 4.4. Es importante mencionar que tres de las cinco correlaciones referidas, en particular, las ecs. 4.2 a 4.4 denotan expresiones que incorporan de manera explícita el efecto de pared asociada a lechos empacados con una relación d_t/d_p o $d_t/d_{p,e}$ menor a 10. La correlación de Ergun [7], denotada en su forma explícita por la ec. 1.10 de la Sección 1.3.1, en el Capítulo 1, se incluye en este trabajo como referencia dado que sigue siendo ampliamente utilizada en el campo de la ingeniería química. La correlación reportada por Tallmadge [3] se ha tomado en cuenta debido a que es una extensión de Ergun para un intervalo más amplio de número de Reynolds de partícula. Como complemento a lo anterior, se ha preparado el Apéndice C que incluye unas 20 correlaciones adicionales, cuya capacidad para predecir los experimentales es valorada sólo de manera gráfica.

Como puede observarse en las ecs. 4.1 a 4.4, y la ec. 1.10 en el Capítulo 1, las correlaciones de caída de presión básicamente se componen de dos términos, uno referido como viscoso y otro como inercial, y cada término incluye usualmente incluye una constante o coeficiente, denotados como α y β , respectivamente. Los valores de estos dos coeficientes dependen, estrictamente hablando, de la configuración de la partícula, por lo que tienen una naturaleza empírica. Notar que la excepción a lo anterior es la correlación de Einfeld-Schnitzlein [6], vide ec. 4.4, la cual contiene tres coeficientes, a saber, K_1 como parámetro del término viscoso, además de k_1 y k_2 como coeficientes del término inercial, haciendo notar que el término denotado como A_w no incluye parámetro alguno como ya fue referido previamente en el Capítulo 1, Sección 1.3.2. Como apoyo, la Figura 4.1 contiene un diagrama en el cual se caracterizan

algunos términos de relevancia en la forma explícita de las correlaciones de caída de presión reportadas por Ergun [7] y Harrison y col. [5].

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha \frac{(1-\varepsilon_m)^2 \mu}{d_{p,e}^2 \varepsilon_m^3} v + \beta \frac{1}{\left[\frac{Re_p}{1-\varepsilon_m}\right]^{1/6}} \frac{(1-\varepsilon_m) \rho v^2}{d_{p,e} \varepsilon_m^3} \quad \text{ec. 4.1}$$

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha \left[1 + \left(\frac{\pi}{6(1-\varepsilon_m)} \frac{d_{p,e}}{d_t} \right)^2 \right]^2 + \beta \frac{(1-\varepsilon_m) \rho v^2}{d_{p,e} \varepsilon_m^3} \left[1 - \frac{\pi^2}{24} \frac{d_{p,e}}{d_t} \left(1 - 0.5 \frac{d_{p,e}}{d_t} \right) \right] \quad \text{ec. 4.2}$$

$$\frac{\Delta P}{L} = \alpha \frac{(1-\varepsilon_m)^2 \mu}{d_{p,e}^2 \varepsilon_m^3} \left[1 + \left(\frac{\pi}{6(1-\varepsilon_m)} \frac{d_{p,e}}{d_t} \right)^2 \right]^2 + \beta \frac{1}{\left(\frac{Re_p}{1-\varepsilon_m}\right)^{1/6}} \frac{(1-\varepsilon_m) \rho v^2}{d_{p,e} \varepsilon_m^3} \left[1 - \frac{\pi^2}{24} \frac{d_{p,e}}{d_t} \left(1 - 0.5 \frac{d_{p,e}}{d_t} \right) \right] \quad \text{ec. 4.3}$$

$$\frac{\Delta P}{L} = K_1 \frac{A_w^2 (1-\varepsilon_m)^2 \mu}{d_{p,e}^2 \varepsilon_m^3} + \frac{(1-\varepsilon_m) \rho v^2}{d_{p,e} \varepsilon_m^3} \frac{A_w}{\left[k_1 \left(\frac{d_{p,e}}{d_t} \right)^2 + k_2 \right]^2} \quad \text{ec. 4.4}$$

Un aspecto adicional que tiene que ser tomado en consideración al aplicar correlaciones para caída de presión se refiere al efecto de la temperatura. Un alto porcentaje de la información experimental de caída de presión reportada en la literatura ha sido, de hecho, obtenido a temperatura ambiente. Es importante incorporar en las predicciones el efecto que genera la temperatura en la expansión o compresión, es decir, cambios en la densidad del gas de proceso, efecto que usualmente no se encuentra desplegado de manera explícita en las correlaciones para ΔP del estado del arte. Para tal fin se utilizó la ecuación de Peng-Robinson [8] que corresponde a la ec. 4.5a, de manera general, que corresponde a una ecuación de estado que permite calcular el volumen molar (V) a condiciones específicas de presión y temperatura, y que como propiedades del fluido los valores críticos de temperatura y presión, T_c y P_c , respectivamente, los parámetros a y b , así como un factor acéntrico designado como w .

$$P = \frac{RT}{V-b} - \frac{\Theta_{PR}}{V^2 + 2bV - b^2} \quad \text{ec. 4.5a}$$

$$\Theta_{PR} = a \left[1 + (0.37464 + 1.54226w - 0.26992w^2) (1 - T_r^{1/2}) \right]^2 \quad \text{ec. 4.5b}$$

$$a = \frac{0.45724R^2 T_c^2}{P_c} \quad \text{ec. 4.5c}$$

$$b = \frac{0.07780RT_c}{P_c} \quad \text{ec. 4.5d}$$

La variación en la temperatura también tiene un impacto en la viscosidad del fluido, propiedad que está incluida en las ecs. 4.1 a 4.4. Así, la viscosidad del gas de proceso fue calculada utilizando la correlación de Bromley-Wilke

[9], que es una ecuación que involucra el peso molecular del gas (M_w), la temperatura crítica (T_c), el volumen crítico (V_c) y la temperatura reducida (T_r), ver ec. 4.6.

$$\mu = \frac{33.3(M_w T_c)^{1/2}}{V_c^{2/3}} [f(1.33T_r)] \quad \text{ec. 4.6a}$$

$$f(1.33T_r) = 1.058T_r^{0.645} - \frac{0.261}{1.9T_r^{0.9 \log(1.9T_r)}} \quad \text{ec. 4.6b}$$

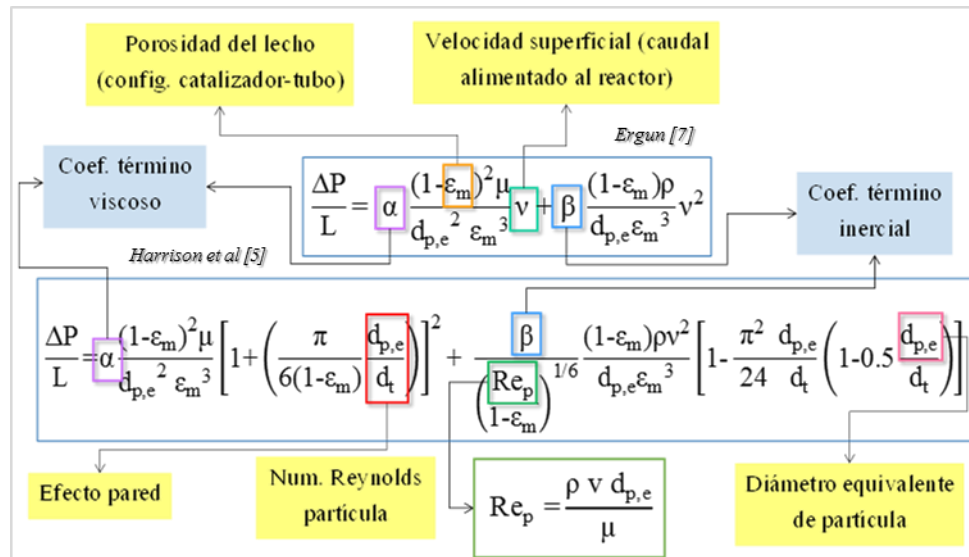


Figura 4.1. Esquema caracterizando los términos de las correlaciones de Ergun [7] y Harrison y col. [5] para caída de presión en lechos empacados.

4.2 Caída de presión experimental vs predicciones con correlaciones: valoración gráfica

Las correlaciones representadas por las ecs. 4.1 a 4.4, y la ec. 1.10 del Capítulo 1, fueron aplicadas para reproducir todo el espectro de resultados de caída de presión, a las diferentes combinaciones presión-temperatura-flujo presentados y discutidos en el Capítulo 3, para los cinco soportes de catalizador investigados. Es importante comentar que dichas correlaciones fueron utilizadas en la forma en que se encuentra reportadas en la literatura abierta, en particular, en términos de los coeficientes asociados a los términos viscoso e inercial, ecs. 1.10, 1.13, 1.14 y 1.15 presentadas en el Capítulo 1.

Para llevar a cabo una valoración visual y cualitativa de la precisión de estas correlaciones para reproducir los resultados experimentales de caída de presión asociados a cada soporte de catalizador, se han preparado una serie de gráficos que se incluyen en la Figuras 4.2 a 4.6, los cuales comparan los valores experimentales y los calculados de caída de presión como función al número de Reynolds de partícula. Para evitar sobrecargar estas figuras solamente la

se ha incorporado información a dos condiciones de proceso distintas, a saber, 25 °C- 2.5 kg/cm², y 400 °C -2.5 kg/cm². Al comparar las predicciones de valores de caída de presión entre soportes de catalizadores se nota visualmente que sólo los resultados obtenidos sobre el material CAT-A (la esfera de 1/8" de diámetro nominal) de la Figura 4.2 son reproducidos de manera razonablemente buena independientemente de las condiciones de proceso seleccionadas. Centrando la atención en la Figura 4.2, las correlaciones reportadas por Harrison y col. [5] y Einfeld –Schnitzlein [6] aparecen como las mejores opciones para fines predictivos. Notar que a temperatura baja (25 °C – 2.5 kg/cm²) los valores calculados de caída de presión son, en general, sobreestimados con respecto a lo experimental, mientras que a temperatura alta (400 °C y 2.5 kg/cm²) Ergun [7] y Tallmadge [3] sobreestiman, en tanto que Liu-Ergun mod. [4], Harrison y col. [5] y Einfeld –Schnitzlein [6] subestiman las observaciones experimentales.

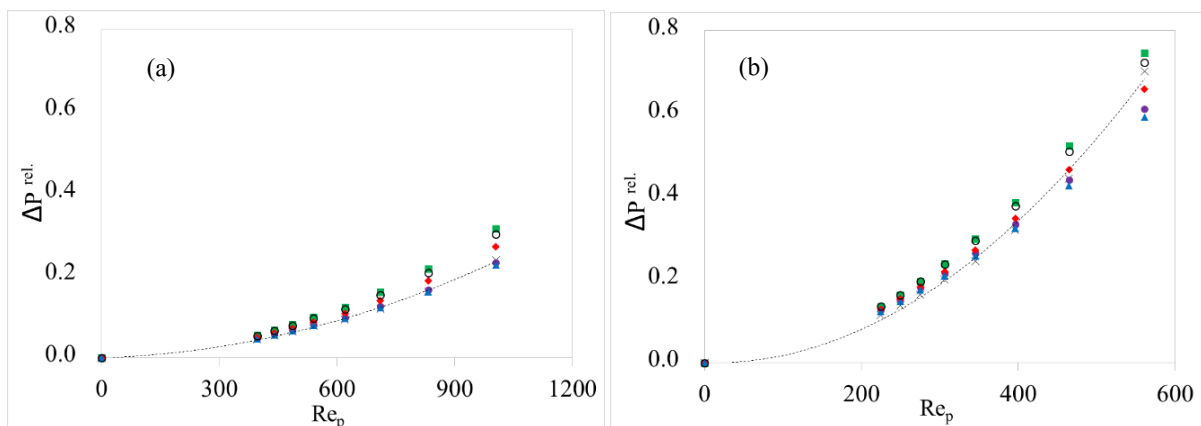


Figura 4.2. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Re_p . (x) Experimentales, (■) Ergun [7], (○) Tallmadge [3], (▲) Liu-Ergun mod. [4], (●) Harrison y col. [5] y (◆) Einfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-A obtenida/calculada a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm², y (b) 400 °C -2.5 kg/cm².

La información contenida en las Figuras 4.3 a 4.6, en tanto, pone de manifiesto que las predicciones con las cinco correlaciones seleccionadas se alejan notablemente de los resultados experimentales independientemente de la condición de presión y temperatura a la que se comparan, para el caso de los soportes de catalizador referidos como CAT-B (Figura 4.3), CAT-C (Figura 4.4), CAT-D (Figura 4.5) y CAT-E (Figura 4.6). Adicionalmente, es evidente que en todos estos casos, los valores de caída de presión calculados a partir de las cinco correlaciones investigadas son subestimados a las condiciones 25 °C – 2.5 kg/cm² y 400 °C - 2.5 kg/cm². Recordar que estos soportes de catalizador, más particularmente los referidos como CAT-C, CAT-D y CAT-E, son los que exhibieron una menor relación d_t en $d_{p,e}$ y mayor fracción porosa asociada a lecho empacado. Claramente, las cinco correlaciones tomadas de la literatura,

incluso las tres que incorporan de manera explícita los efectos de pared, i.e., ecs. 4.2, 4.3 y 4.4, no son capaces de reproducir los datos experimentales reportados en este trabajo de tesis los cuales, como ya fue discutido en el Capítulo 3, fueron generados en una configuración de lecho empacado con marcados efectos de pared. Allen y col. en la ref. [10] reportaron, por ejemplo, que Ergun [7] no era adecuada para predecir caídas de presión en tubos empacados con partículas de tipo no esférico, con desviaciones más notorias a medida que la esfericidad de la partícula se alejaba de la unidad, del orden de 100 % o incluso superiores. Dichas desviaciones eran mas evidentes en tanto el tamaño de la partícula se incrementaba.

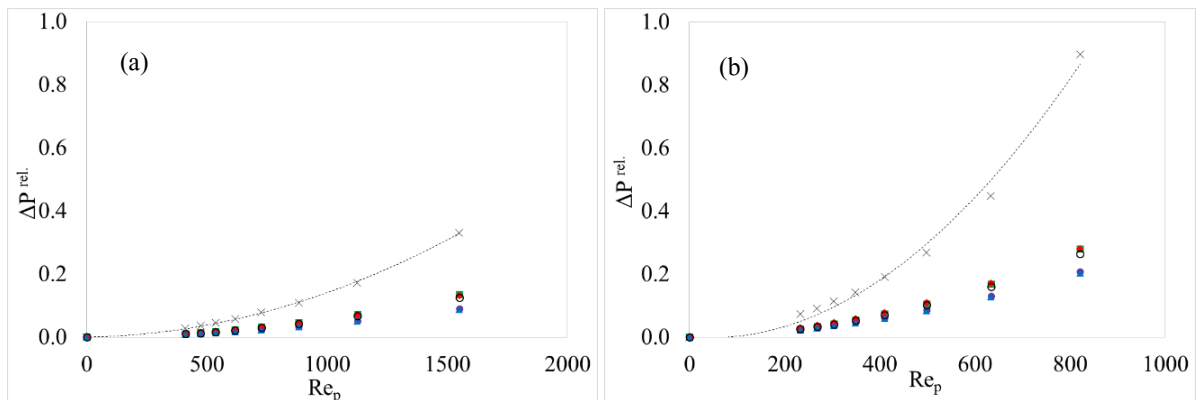


Figura 4.3. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Re_p . (x) Experimental, (■) Ergun [7], (○) Tallmadge [3], (▲) Liu-Ergun mod. [4], (●) Harrison y col. [5] y (◆) Einfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-B obtenida/calculada a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm² y (b) 400 °C -2.5 kg/cm².

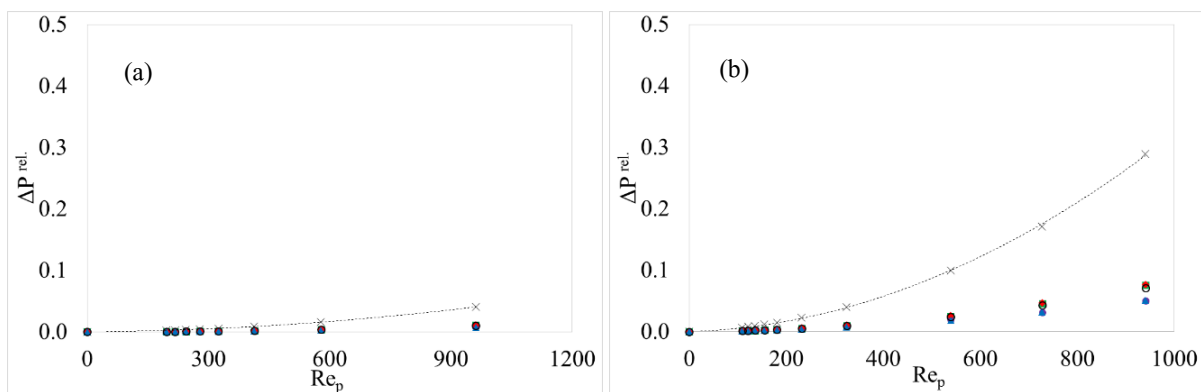


Figura 4.4. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Re_p . (x) Experimental, (■) Ergun [7], (○) Tallmadge [3], (▲) Liu-Ergun mod. [4], (●) Harrison y col. [5] y (◆) Einfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-C obtenida/calculada a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm² y (b) 400 °C -2.5 kg/cm².

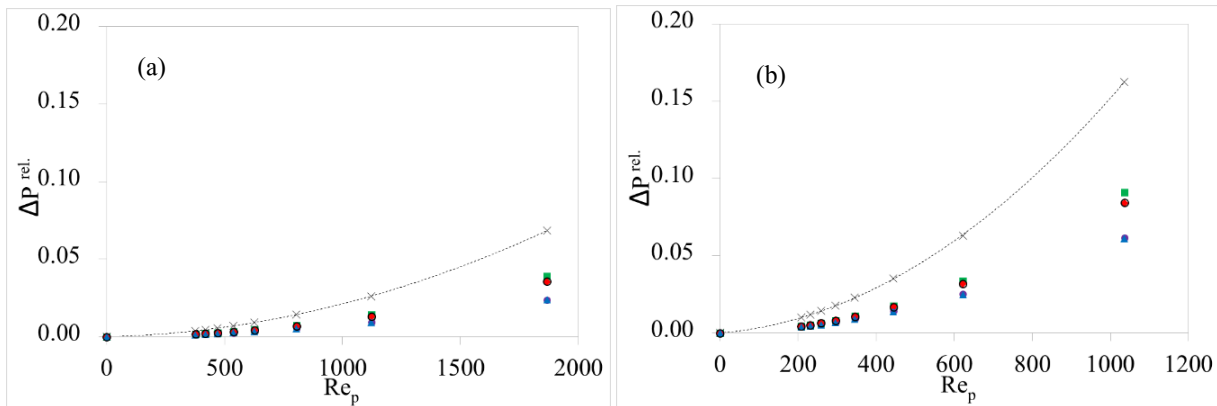


Figura 4.5. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Re_p . (×) Experimental, (■) Ergun [7], (○) Tallmadge [3], (▲) Liu-Ergun mod. [4], (●) Harrison y col. [5] y (◆) Eisfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-D obtenida/calculada a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm² y (b) 400 °C -2.5 kg/cm².

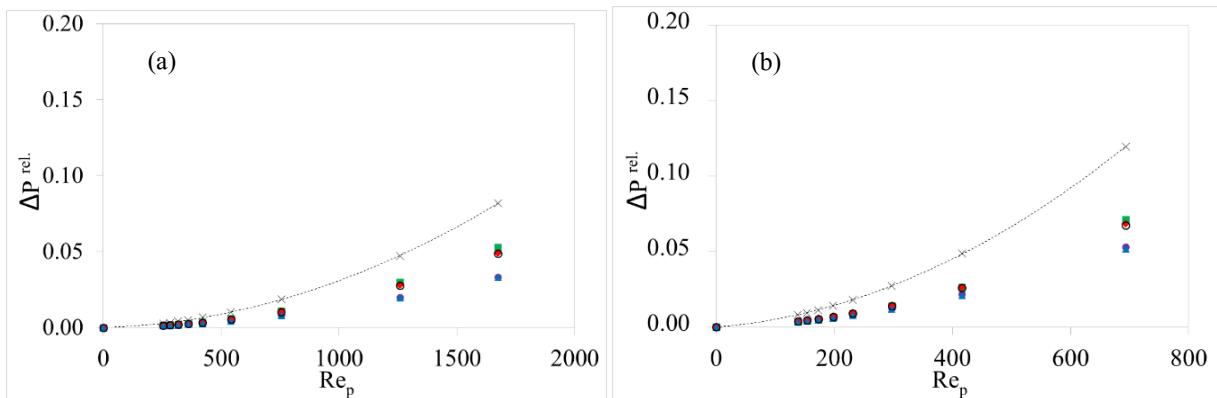


Figura 4.6. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados por medio de las correlaciones a diferentes Re_p . (×) Experimental, (■) Ergun [7], (○) Tallmadge [3], (▲) Liu-Ergun mod. [4], (●) Harrison y col. [5] y (◆) Eisfeld –Schnitzlein [6]. Información asociada al material CAT-E a dos diferentes condiciones de proceso: (a) 25°C- 2.5 kg/cm² y (b) 400 °C -2.5 kg/cm².

4.3 Caída de presión experimental vs predicciones con correlaciones: valoración analítica.

4.3.1 Cálculo de errores relativos porcentuales

Con la finalidad de realizar una valoración más detallada, de naturaleza cuantitativa, de la capacidad de predicción de las cinco correlaciones seleccionadas relativa a los datos de caída de presión reportados en el Capítulo 3

de esta tesis, se calcularon error relativos porcentuales a partir de valores calculados y experimentales a las diferentes condiciones de operación, para el tubo de proceso empacado con los diferentes soportes de catalizador. Será posible, a partir de esta información, conocer el nivel de desviación por correlación, a diferentes condiciones de proceso y, particularmente importante, como función de la configuración de partícula.

Primeramente, se calculó el error relativo porcentual denotado por % RPE_{ij} (*Relative Percent Error*, por sus siglas en inglés), que se calcula de manera individual para cada experimento a una condición específica de temperatura, presión de entrada y flujo de alimentación de aire. Convenientemente los subíndices i y j han sido incluidos para caracterizar al % RPE, j representando el nivel de flujo de alimentación de aire e i denotando el experimento a condiciones P y T definidas. Este error permite valorar si las desviaciones en las predicciones están influenciadas por el caudal alimentado o el número de Reynolds de partícula para un soporte de catalizador determinado. De este modo, para cada soporte de catalizador se dispone de n por m valores de % RPE.

$$\% \text{RPE}_{ij} = \left| \frac{\Delta P_{ij}^{\text{calc}} - \Delta P_{ij}^{\text{exp}}}{\Delta P_{ij}^{\text{exp}}} \right| 100 \quad \text{ec. 4.7}$$

Siendo más general en el cálculo de errores, se calculó una media de error relativo porcentual referido como % MRPE_i (*Mean Relative Percent Error*, por sus siglas en inglés), el cual aplica para un experimento i (=1, 2, ..., n) efectuado a temperatura y presión determinadas, incorporando las lecturas de caída de presión a los n niveles de flujo de alimentación de aire considerados. En la realidad % MRPE_i corresponde al promedio aritmético de los errores % RPE_{ij}, asociados al experimento i efectuado a P y T dadas, considerando que j va de uno hasta m niveles de flujo de alimentación de aire, calculándose de acuerdo a lo expresado por la ec. 4.8. Con este error se determina si las desviaciones en las predicciones de las correlaciones seleccionadas están influenciadas por la temperatura y/o la presión de operación, para un material determinado. Así, para cada soporte de catalizador se dispone de n valores de % MRPE.

$$\% \text{MRPE}_i = \frac{1}{m} \sum_{j=1}^m \left| \frac{\Delta P_{ij}^{\text{calc}} - \Delta P_{ij}^{\text{exp}}}{\Delta P_{ij}^{\text{exp}}} \right| 100 \quad \text{ec. 4.8}$$

Finalmente, el porcentaje de error relativo global referido como % ORPE (*Overall Relative Percent Error*, por sus siglas en inglés), es un valor único por soporte de catalizador, y cuyo cálculo implica el promediar todos los puntos de caída de presión experimentales y sus contrapartes calculados a partir de correlaciones a los diferentes niveles de temperatura, presión y flujo de alimentación de aire que se tienen disponibles. El % ORPE se calculó de acuerdo con lo mostrado en la ec. 4.9, en donde i (=1, 2, ..., n) representa un experimento efectuado a condiciones de presión y temperatura específicas, mientras que j (=1, 2, ..., m) corresponde al nivel de flujo de alimentación de aire en el

experimento *i*. Así, el número de valores de caída de presiones considerados en el cálculo es el producto *n* por *m*. Para cada soporte de catalizador, se dispone de un valor única de % ORPE. De este modo, el comparar % ORPE permite valorar el nivel de desviación de las diferentes correlaciones por configuración de partícula.

$$\% \text{ ORPE} = \frac{1}{n \times m} \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left| \frac{\Delta P_{ij}^{\text{calc}} - \Delta P_{ij}^{\text{exp}}}{\Delta P_{ij}^{\text{exp}}} \right| 100 \quad \text{ec. 4.9}$$

4.3.2 *Discusión de resultados*

Para las cinco correlaciones de la literatura mencionadas al principio de este Capítulo y los cinco soportes de catalizador investigados, las Tablas 4.1 y 4.2 muestran los valores de % MRPE a cuatro condiciones temperatura – presión de entrada diferentes, particularmente, 25 °C– 2.5 kg/cm², 200 °C– 2.5 kg/cm², 400 °C – 2.5 kg/cm², 400 °C – 3.0 kg/cm², además reportar el valor de % ORPE calculado. En primera instancia, es evidente que los valores de errores % ORPE y % MRPE varían dependiendo del soporte de catalizador, y también exhiben diferencias dependiendo de la correlación de caída de presión utilizada. Se observa, adicionalmente, que los valores de % MRPE parecen variar aleatoriamente con las condiciones de temperatura y presión de entrada, sin detectar que su magnitud esté claramente condicionados por el con un incremento o disminución en la temperatura y/o presión de entrada.

De manera más particular, se observa que con excepción del soporte de catalizador CAT-A, ninguna de las cinco correlaciones seleccionadas reproduce satisfactoriamente los datos de caída de presión experimentales. Enfocando la discusión en los resultados del material CAT-A, se observa que las correlaciones de Harrison y col. [5] y Tallmadge [3] corresponden a las mejores opciones para reproducir los datos experimentales de caída de presión respectivos reportando valores de ORPE inferiores a 5 y 7 % respectivamente. En contraste, las correlaciones de Ergun [7] y Liu-Ergun mod. [4] fueron las menos precisas en la predicción de los datos de caída de presión reportando valores de ORPE de 21 % y 19 %, respectivamente. Recordar que el soporte de catalizador CAT-A es una esfera de 1/8” de diámetro nominal, la cual reportó los menores valores de d_p en d_i y de fracción hueca promedio entre los materiales investigados en este trabajo (ver Tabla 3.1 en el Capítulo 3), es decir, el material con “el menor efecto de pared”.

Relativo a lechos empacados con los soportes de catalizadores más voluminosos, es decir, CAT-B, CAT-C, CAT-D y CAT-E, los valores de % ORPE (ver Tablas 4.1 y 4.2) fueron considerablemente mayores comparado con lo observado para el material CAT-A, esto independientemente de la correlación utilizada para reproducir los datos experimentales con valores que específicamente se ubicaron entre 61 - 70 %, 75 - 82 %, 52 - 63 % y 47- 58 %, respectivamente. Se observó, de hecho, que los resultados de caída de presión sobre el material CAT-C son los que se reproducen con una menor precisión, correspondiendo éste al sólido con la morfología más irregular y mayor fracción hueca promedio (ver Tabla 3.1 en el Capítulo 3).

Tabla 4.1. Sumario de porcentaje de errores relativos promedio % MRPE y errores relativos globales % ORPE para cuatro diferentes combinaciones de temperatura y presión de entrada. Información para CAT-A, CAT-B y CAT-C.

	% MRPE				% ORPE
	25 °C-2.5 kg/cm ²	200 °C- 2.5 kg/cm ²	400 °C- 2.5 kg/cm ²	400 °C- 3.0 kg/cm ²	25-400 °C, 2.5 – 3.0 kg/cm ²
CAT-A					
Ergun [7]	29	22	18	21	22
Tallmadge [3]	3	4	5	6	7
Liu-Ergun [4]	25	19	16	19	19
Harrison y col. [5]	5	4	5	7	5
Eisfeld–Schnitzlein [6]	14	9	8	10	10
CAT-B					
Ergun [7]	60	62	63	62	62
Tallmadge [3]	71	70	70	69	70
Liu-Ergun [4]	62	64	64	63	63
Harrison y col. [5]	70	69	69	68	69
Eisfeld–Schnitzlein [6]	60	61	61	60	60
CAT-C					
Ergun [7]	77	78	78	77	78
Tallmadge [3]	82	82	81	82	82
Liu-Ergun [4]	77	78	77	77	77
Harrison y col. [5]	81	81	80	81	81
Eisfeld–Schnitzlein [6]	75	76	75	75	75

Como información de adicional referencia para contrastar nuestros resultados, es pertinente referir el trabajo de Radojica y col. (ver ref. [2]), quienes realizaron un estudio teórico-experimental de caída de presión en lechos empacados con partículas esféricas de diferente diámetro resultando en una relación d_t en d_p entre 12 y 108, y a temperatura variable 20 - 350 °C. Ellos detectaron que las correlaciones reportadas por Reichelt [11], Eisfeld-Schnitzlein [6] e incluso Ergun [7] fueron las mejores opciones para reproducir sus datos experimentales, con valores de ORPE de 10.8 %, 11.6 % y 12.4 %, respectivamente. Estas desviaciones son claramente menores que las reportadas en esta tesis, lo que pone en evidencia que la configuración de partícula (tamaño, morfología y d_t en d_p) tiene un impacto

determinante en la capacidad de predicción de las correlaciones de caída de presión disponibles en la literatura. Considerar que en la ref. [2] los autores se limitaron al uso de morfologías esféricas y lechos con efectos de pared no tan marcados.

De acuerdo con los resultados mostrados y apoyado de lo comentado en las referencias [6], [5] y [12], la configuración de partícula en términos de tamaño y forma es un factor determinante en el nivel de precisión de las correlaciones seleccionadas para reproducir resultados experimentales de la caída de presión. Si bien es referido que las desviaciones en las predicciones de correlaciones del estado del arte son más pronunciadas al aplicarse a partículas menos regulares, en el caso específico de nuestros datos de caída de presión, dichas desviaciones también fueron notables en las esferas que componen al material CAT-D, y que tiene el d_t/d_p más pequeño ($=3.2$) entre las muestras consideradas en este trabajo.

Tabla 4.2. Sumario de porcentaje de errores relativos promedio % MRPE y errores relativos globales % ORPE para cuatro diferentes combinaciones de temperatura y presión de entrada. Información para CAT-D y CAT-E.

	% MRPE				% ORPE
	25 °C-2.5 kg/cm ²	200 °C- 2.5 kg/cm ²	400 °C- 2.5 kg/cm ²	400 °C- 3.0 kg/cm ²	25-400 °C, 2.5 – 3.0 kg/cm ²
CAT-D					
Ergun [7]	51	52	52	52	52
Tallmadge [3]	64	64	62	62	63
Liu-Ergun [4]	53	54	53	53	53
Harrison y col. [5]	64	62	60	60	60
Eisfeld –Schnitzlein [6]	53	54	52	52	53
CAT-E					
Ergun [7]	45	49	50	49	48
Tallmadge [3]	58	59	58	58	58
Liu-Ergun [4]	47	50	49	49	49
Harrison y col. [5]	57	57	56	55	56
Eisfeld –Schnitzlein [6]	45	47	47	47	47

En la ref. [2] también se concluyó sobre la menor capacidad de predicción de correlaciones de caída de presión tomadas de la literatura, a temperaturas por encima del ambiente, comentario que parece no estar del todo soportado

por los resultados mostrados y que, en el caso particular de la investigación reportada en este trabajo de tesis, no fue detectada. Por otro lado, es también de utilidad comentar que tomando en cuenta los valores específicos de % RPE de acuerdo a la región de operación estudiada, las desviaciones que existen entre la caída de presión experimental y la obtenida a partir de las correlaciones no exhiben alguna tendencia en particular con relación a los valores de flujo de alimentación de aire o Re_p , lo cual es consistente con el reporte de Montillet y col. [12].

4.4 Reajuste de correlaciones para caída de presión vía regresión utilizando información experimental

Después de comparar gráficamente los resultados experimentales de caída de presión con sus contrapartes calculadas a partir de las cinco correlaciones para caída de presión seleccionadas, y de haber cuantificado las desviaciones respectivas mediante el cálculo de errores relativos porcentuales, es evidente que, excepto para el soporte de catalizador referido como CAT-A, dichas expresiones, en su forma original, no son elegibles para fines predictivos para actividades de simulación de reactores. En base a estos resultados, los parámetros asociados a los términos viscoso e inercial de las correlaciones se reajustaron mediante un proceso de regresión numérica, utilizando los datos de caída de presión experimentales presentados y discutidos con detalle en el Capítulo 3.

Cabe mencionar que debido a que fue imposible (es decir, un pobre nivel de reproducción de datos experimentales, sin significado físico adecuado y con pobre estadística individual) encontrar un “juego de parámetros únicos por correlación” y que aplicara para los cinco soportes de catalizador investigados a través del uso de los casi 160 puntos individuales de caída de presión disponibles, lo más conveniente fue obtener un vector de parámetros para cada correlación y soporte de catalizador. El procedimiento de reajuste de parámetros y los resultados respectivos es ofrecido con detalle en la siguiente sección. La capacidad de predicción de las correlaciones en su forma ajustada es posteriormente valorada analíticamente mediante el cálculo del %ORPE, y luego en forma gráfica a través de la construcción de los llamados gráficos de paridad.

4.4.1 Función objetivo

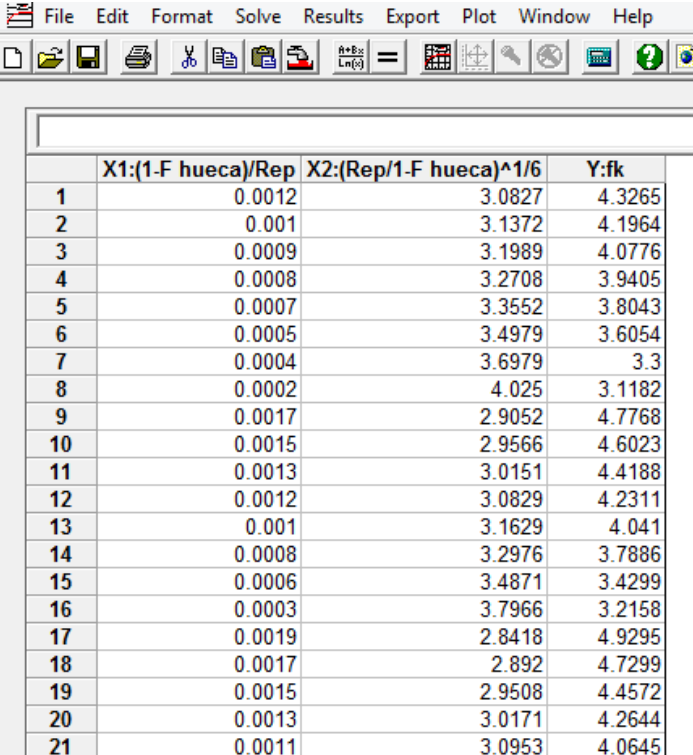
Los coeficientes o parámetros asociados a las correlaciones de caída de presión ya en su forma reajustada se obtienen a partir de un proceso iterativo de optimización. El término optimización aplica en este caso debido a que en el algoritmo de cálculo respectivo, se buscan los parámetros o coeficientes que optimizan la función objetivo sugerida, y que en el caso particular de este trabajo, minimizan la diferencia entre los valores de caída de presión predichos por el modelo y sus contrapartes experimentales. Matemáticamente lo anterior se representa en forma generalizada mediante la ec. 4.10, que es una función propia de un análisis de regresión en donde γ_r representa el vector de las

respuestas experimentales, mientras que $\bar{\eta}$ representa el vector de respuestas calculadas las cuales, a su vez, dependen de una serie de variables dependientes denotadas por C_r y de un vector de parámetros representado por \bar{k} . Finalmente, $\bar{\epsilon}_r$ corresponde al vector de errores o diferencias entre las respuestas experimentales y las predichas por el modelo.

$$\gamma_r = \bar{\eta}(C_r, \bar{k}) + \bar{\epsilon}_r \quad \text{ec. 4.10}$$

Al aplicar la ec. 4.10 a la estimación de los coeficientes de las diferentes correlaciones de caída de presión seleccionadas, la función objetivo en su forma explícita queda representada por la ec. 4.11. En esta expresión n representa el número de experimentos independientes de caída de presión considerados en la estimación de parámetros, m es el número de niveles de flujo volumétrico de aire alimentado considerandos en el experimento i , $\Delta P_{i,j}$ corresponde a la caída de presión observada en el experimento i a la condición de flujo j , mientras que $\widehat{\Delta P}_{i,j}$ es la caída de presión calculada para el experimento i a la condición de flujo j , y finalmente δ es el vector que incluye a los parámetros o coeficientes de caída de presión de la correlación evaluada, que minimizan la función objetivo.

$$S(\beta) = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m (\Delta P_{i,j} - \widehat{\Delta P}_{i,j})^2 \xrightarrow{\delta_1, \delta_2} \min \quad \text{ec. 4.11}$$



The screenshot shows the DataFit software interface with a menu bar (File, Edit, Format, Solve, Results, Export, Plot, Window, Help) and a toolbar. The main window displays a data table with the following columns: X1:(1-F hueca)/Rep, X2:(Rep/1-F hueca)^1/6, and Y:fk. The table contains 21 rows of data.

	X1:(1-F hueca)/Rep	X2:(Rep/1-F hueca)^1/6	Y:fk
1	0.0012	3.0827	4.3265
2	0.001	3.1372	4.1964
3	0.0009	3.1989	4.0776
4	0.0008	3.2708	3.9405
5	0.0007	3.3552	3.8043
6	0.0005	3.4979	3.6054
7	0.0004	3.6979	3.3
8	0.0002	4.025	3.1182
9	0.0017	2.9052	4.7768
10	0.0015	2.9566	4.6023
11	0.0013	3.0151	4.4188
12	0.0012	3.0829	4.2311
13	0.001	3.1629	4.041
14	0.0008	3.2976	3.7886
15	0.0006	3.4871	3.4299
16	0.0003	3.7966	3.2158
17	0.0019	2.8418	4.9295
18	0.0017	2.892	4.7299
19	0.0015	2.9508	4.4572
20	0.0013	3.0171	4.2644
21	0.0011	3.0953	4.0645

Figura 4.7. Pantalla del software DataFit versión 7.1 mostrando la pantalla en la que se ingresan los datos para la regresión en el cómputo de los coeficientes de las correlaciones de caída de presión reajustadas.

DataFit version 7.1.44					
Results from project "e:\datafi~2\fk\harris~1\re7325~1.dft"					
Equation ID: HARRISON_fk					
Model Definition:					
Y = (X1*A1*1.8751396617338)+((A2/X2)*0.89236800)					
Number of observations = 40					
Number of missing observations = 0					
Solver type: Nonlinear					
Nonlinear iteration limit = 250					
Diverging nonlinear iteration limit = 10					
Number of nonlinear iterations performed = 13					
Residual tolerance = 0.000000001					
Sum of Residuals = 0.018703105310852					
Average Residual = 4.67577632771299E-04					
Residual Sum of Squares (Absolute) = 0.619313253116061					
Residual Sum of Squares (Relative) = 0.619313253116061					
Standard Error of the Estimate = 0.127662512850346					
Coefficient of Multiple Determination (R^2) = 0.9479175198					
Proportion of Variance Explained = 94.79175198%					
Adjusted coefficient of multiple determination (Ra^2) = 0.9465469282					
Durbin-Watson statistic = 0.285810908552922					
Regression Variable Results					
Variable	Value	Standard Error	t-ratio	Prob(t)	
A1	215.3575479	25.01458995	8.609277559	0.0	
A2	12.73480301	0.2046187485	62.23673591	0.0	
68% Confidence Intervals					
Variable	Value	68% (+/-)	Lower Limit	Upper Limit	
A1	215.3575479	25.20470084	190.1528471	240.5622488	
A2	12.73480301	0.2061738509	12.52862916	12.94097686	
90% Confidence Intervals					
Variable	Value	90% (+/-)	Lower Limit	Upper Limit	
A1	215.3575479	42.17459866	173.1829493	257.5321466	
A2	12.73480301	0.3449872099	12.3898158	13.07979022	
95% Confidence Intervals					
Variable	Value	95% (+/-)	Lower Limit	Upper Limit	
A1	215.3575479	50.6395359	164.718012	265.9970838	
A2	12.73480301	0.4142301944	12.32057282	13.14903321	
Variance Analysis					
Source	DF	Sum of Squares	Mean Square	F Ratio	Prob(F)
Regression	1	11.27169599	11.27169599	691.6119513	0
Error	38	0.6193132531	0.01629771719		
Total	39	11.89100924			

Figura 4.8. Pantalla del software DataFit versión 7.1 mostrando resultados y estadística para la regresión en el cómputo de los coeficientes de las correlaciones de caída de presión reajustadas.

Utilizando métodos numéricos tales como el Levenberg-Marquardt es posible calcular los parámetros que componen al vector $\hat{\theta}$, métodos que pueden ser incorporados en programas de cómputo personales o que están incluidos en software comercial de optimización. Esta última opción fue, de hecho, utilizada en nuestro caso, empleando el Software DataFit versión 7.1. Este software ofrece también información para valorar la estadística relativa a la regresión y a los parámetros estimados, ver Figuras 4.7 y 4.8.

La capacidad de las correlaciones para representar la caída de presión experimental, es decir, la idoneidad del modelo, fue evaluada mediante la prueba estadística de Fisher (*F-test*), confrontando el valor calculado F_{reg} (ver ec. 4.12) contra el tabulado (F_{tab}), para un nivel de probabilidad $1-\alpha$, donde alfa representa el nivel de significancia. Notar que la ec. 4.12 incluye la suma de cuadrados de la regresión (TSS) y la suma de cuadrados residuales (RSS), además del número de grados de libertad cuyo cálculo involucra n y m referidos arriba, y p que corresponde al número de parámetros por correlación. Cuando F_{reg} es mayor que F_{tab} se considera que la regresión es global y estadísticamente significativa, mientras que entre mayor sea el valor de F_{reg} , el modelo exhibe una mayor capacidad de predicción debido a que la diferencia entre predicciones y valores reales se hace muy pequeña:

$$F_{reg} = \frac{TSS/p}{RSS/(n-m-p)} = \frac{\frac{\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \hat{Y}_{ij}^2}{p}}{\frac{\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m (Y_{ij} - \hat{Y}_{ij})^2}{n-m-p}} \quad \text{ec. 4.12}$$

Para cada parámetro estimado β_k se calculó su intervalo de confianza correspondiente al 95 % de probabilidad aplicando la prueba estadística conocida como *t-student*, ver. ec. 4.13. El valor de la distribución de *t-student* con “ n veces m menos p ” grados de libertad, $t_{(1-\alpha/2), nm-p}$, es de aprox. 1.96, mientras que a cada parámetro se le asocia una desviación estándar σ_k . Un parámetro es estadísticamente significativo cuando no hay un cero en el intervalo de confianza respectivo, lo que a final de cuentas indica que dicho parámetro no tiene efecto, desde la perspectiva estadística, en el modelo.

$$\beta_k \pm t_{(1-\alpha/2), nm-p} \sigma_k \quad \text{ec. 4.13}$$

4.4.2 Correlaciones de caída de presión con parámetros reajustados

En esta sección se reportan los resultados del reajuste de los parámetros asociados a los términos viscoso e inercial de las cinco correlaciones referidas al inicio de este Capítulo. Considerando la conveniencia de calcular un vector de parámetros para cada combinación correlación – catalizador, el procedimiento de reajuste de parámetros de cada una de estas combinaciones incorporó unos 40 puntos individuales de caída de presión experimentales a diferentes condiciones de temperatura, presión y flujo volumétrico de aire alimentado. Las Tablas 4.3, 4.4, 4.5, 4.6 y 4.7 contienen los coeficientes reajustados de las correlaciones de Ergun [7], Tallmadge [3], Ergun-Liu [4], Harrison y col. [5] y Einfeld-Schnitzlein [6], respectivamente. En estas cinco Tablas también se han incluido los errores correspondientes del tipo % ORPE para cada catalizador mediante regresión por lo que los parámetros óptimos se reporta información

estadística de interés, en particular, el valor F_{reg} de la prueba estadística de Fisher definido por la ec. 4.12 (información que será comentada más adelante en la sección 4.4.3.), así como el intervalo de confianza al 95 % de probabilidad de cada uno de los parámetros estimados calculado a través de la ec. 4.13. Notar que todos los coeficientes reportados en las Tablas 4.3 a 4.7 fueron estadísticamente significativos al 95 % de probabilidad, con intervalos de confianza relativamente cerrados, lo que indica que el margen de error en su estimación fue relativamente bajo.

Es importante comentar que siguiendo la metodología referida en la Sección 4.3.1 de este capítulo, la precisión de las correlaciones en su forma reajustada se evaluó a partir del cálculo de los relativos correspondientes, % RPE, % MRPE y % ORPE. Las Tablas 4.3 a 4.7 reportan sólo los valores del % ORPE. Por simplicidad y considerando que sus valores son relativamente pequeños y similares en magnitud a los asociados al % ORPE, no se reporta información relativa a los errores % RPE y % MRPE.

Tabla 4.3. Coeficientes reajustados, término viscoso (α) e inercial (β), asociados a la correlación de Ergun [7], para cada uno de los cinco para cada soporte de catalizador estudiados.

	CAT-A	CAT-B	CAT-C	CAT-D	CAT-E
α	223 ± 18	801 ± 87	1830 ± 68	1010 ± 81	822 ± 28
β	1.4 ± 0.1	4.1 ± 0.1	6.1 ± 0.1	2.9 ± 0.1	2.6 ± 0.1
% ORPE	2.6	3.4	1.6	2.8	1.8
F_{reg}	619	349	299	337	3,591

Basados en la información contenida en la Tabla 4.3 se observa que los coeficientes reajustados estimados a partir de los datos experimentales varían de manera notable con respecto a los reportados originalmente por Ergun [7], recordando que estos últimos corresponden a $\alpha = 150$ (término viscoso), y $\beta = 1.75$ (término inercial). Los coeficientes reestimados para el término viscoso se ubicaron entre 223 y 1830, es decir, todos mayores en comparación con el valor original. Los coeficientes recalculados para el términos laminar, a su vez, variaron entre 1.25 – 4.07; sólo el asociado al soporte de catalizador CAT-A (1.25) es menor que el valor original. Previamente, en la Sección 4.2, se comentó que la correlación de Ergun [7] original subestimaba la caída de presión experimental de casi todos los soportes de catalizador estudiados, razón por la cual es entendible que para compensar este efecto, los coeficientes reestimados exhiban, en general, valores más grandes. Es evidente que los coeficientes reestimados relativos del término viscoso se desvían más que los del término inercial, esto presumiblemente debido la experimentación en términos del número

de Reynolds de partícula se ubicó esencialmente en las zonas de régimen de transición ($10 < Re_p < 300$) y turbulento $Re_p > 300$. También se observa que el coeficiente reestimado del término viscoso asociado a CAT-A (esfera de 1/8" de diámetro nominal) es el que más se aproxima al reportado por Ergun [7] (223 vs 150), contrario a lo que sucede con el valor respectivo para el material CAT-D (1050 vs 150), y más particularmente CAT-C (1831 vs 150), es decir, 1.5, 10 y 12 veces mayor, respectivamente. Es importante hacer notar que este último material corresponde al sólido con la morfología más irregular y mayor fracción hueca promedio (ver Tabla 3.1 en el Capítulo 3) entre los soportes de catalizador estudiados. Con respecto a la capacidad de predicción de las correlaciones de Ergun en su forma reajustada y basado en la información desplegada en la Tabla 4.3, se observa que los valores de % ORPE son sustancialmente menores que los presentados en la Sección 4.3.2, en particular decreciendo de 22 a 2.6 %, 62 a 3.4 %, 78 – 1.6 %, 52 – 2.8 % y 48 – 1.8 % para los materiales CAT-A, CAT-B, CAT-C, CAT-D y CAT-E, respectivamente.

Tabla 4.4. Coeficientes reajustados, término viscoso (α) e inercial (β), asociados a la correlación de Tallmadge y col. [3] para cada uno de los cinco para cada soporte de catalizador estudiados.

	CAT-A	CAT-B	CAT-C	CAT-D	CAT-E
α	78 ± 17	221 ± 100	1030 ± 79	419 ± 21	451 ± 26
β	4.4 ± 0.1	15.0 ± 0.5	22.0 ± 0.5	11.3 ± 0.5	9.9 ± 0.2
% ORPE	2.6	4.0	1.8	2.7	1.6
F_{reg}	1,090	438	3,367	739	6,362

La información mostrada en la Tabla 4.4 contiene los coeficientes reajustados para la correlación de Tallmadge y col. [3] (ver ec. 4.1), obtenidos a partir de los resultados experimentales de caída de presión sobre los cinco soportes de catalizador investigados. Recordar que, para esta correlación, los valores originales de los coeficientes de los términos viscoso (α) y laminar (β) son 150 y 4.2, respectivamente. Los coeficientes reestimados para el término viscoso variaron de 78 a 1030, es decir, con excepción del parámetro asociado al material CAT-A, todos mayores en comparación con el valor original y, consistente con lo detectado previamente al aplicar Ergun [7], CAT-C exhibiendo el valor más grande, de hecho, siete veces mayor que el valor del coeficiente original. Para el término laminar, en tanto, los coeficientes recalculados se ubicaron entre 4.4 y 22, de mayor magnitud todos en comparación con el coeficiente original. Previamente, en la Sección 4.2, se comentó que la correlación de Ergun [7] original subestimaba la caída de presión experimental de casi todos los soportes de catalizador estudiados, razón por la cual es entendible que para

compensar este efecto, los coeficientes reestimados exhiban, en general, valores más grandes. Evidentemente, un comportamiento similar es observado en los resultados obtenidos para la correlación de Tallmadge y col. [3]. Con respecto a la capacidad de predicción de los datos experimentales utilizando Tallmadge y col. [3] con coeficientes reestimados, las predicciones son mucho más precisas notando que los valores del error ORPE decrecen respecto a la correlación original de 7 a 2.6 %, 70 a 4.0 %, 82 a 1.8 %, 63 a 2.7 % y 58 a 1.6 % para el CAT-A, CAT-B, CAT-C, CAT-D y CAT-E.

La Tabla 4.5 contiene los valores de los coeficientes reajustados relativos a la correlación de Ergun-Liu [4] para cada soporte de catalizador. Como puede observarse, los coeficientes reajustados asociados al término viscoso se ubicaron entre 170 y 990. Similar a lo comentado anteriormente para Ergun [7] y Tallmadge y col. [3], los valores son sistemáticamente mayores que el originales ($\alpha=150$), CAT-A reportando el menor valor y CAT-C el mayor. Con respecto a los coeficientes del término inercial, sus valores estimados variaron de 1.4 a 6.7, notándose que CAT-A es el único material que exhibe un valor ligeramente menor comparado con el original (1.75). Relativo a la capacidad de predicción de la información experimental de caída de presión aplicando Ergun-Liu [4] los valores de ORPE fueron menores al 4 %, decrecieron sustancialmente en comparación con los reportados en la Sección 4.3.2., moviéndose en particular de 19 a 2.5 %, 63 a 3.6 %, 77 a 1.5 %, 53 a 2.8 % y 49 a 1.8 % para los materiales CAT-A, CAT-B, CAT-C, CAT-D y CAT-E, respectivamente.

Tabla 4.5. Coeficientes reajustados, término viscoso (α) e inercial (β), asociados a la correlación de Ergun-Liu y col. [4] para cada uno de los cinco para cada soporte de catalizador estudiados.

	CAT-A	CAT-B	CAT-C	CAT-D	CAT-E
α	170 \pm 14	547 \pm 61	990 \pm 31	531 \pm 39	482 \pm 17
β	1.4 \pm 0.1	4.4 \pm 0.2	6.7 \pm 0.1	3.3 \pm 0.1	3.0 \pm 0.1
% ORPE	2.5	3.6	1.5	2.8	1.8
F _{reg}	618	341	4,099	764	3,381

En la Tabla 4.6 se reportan los coeficientes reestimados para la correlación de Harrison y col. [5] para los cinco soportes comerciales de catalizador estudiados. Consistente con lo observado previamente para Ergun [7], Tallmadge y col. [3] y Ergun-Liu [4], los coeficientes reajustados tanto para el término viscoso (entre 59 y 536) como el inercial (entre 4.7 y 24.3) son (con excepción del material CAT-A en el caso del viscoso), mayores comparados con sus

contrapartes originales, éstos últimos correspondiendo a 119.8 y 4.63, respectivamente. Nuevamente, como ya fue detectado para las tres correlaciones referidas anteriormente, el material CAT-C reporta los coeficientes reestimados de mayor valor tanto para el término viscoso (536) como para el inercial (24.3). El error relativo global porcentual %ORPE, con respecto a la predicción de la información experimental de caída de presión utilizando las ecuaciones tal cual se reportan en la literatura y de igual manera como fue detectado con las tres correlaciones discutidas en párrafos previos, mostró una disminución notable de 5 a 2.6 %, 69 a 4.0 %, 81 a 2.2 %, 60 a 2.7 % y 56 a 1.6 %, para los soportes CAT-A, CAT-B, CAT-C, CAT-D y CAT-E, respectivamente.

Tabla 4.6. Coeficientes reajustados, término viscoso (α) e inercial (β), asociados a la correlación de Harrison y col. [5] para cada uno de los cinco para cada soporte de catalizador estudiados.

	CAT-A	CAT-B	CAT-C	CAT-D	CAT-E
α	59 ± 13	152 ± 71	536 ± 44	215 ± 42	256 ± 19
β	4.7 ± 0.1	16.1 ± 0.5	24.3 ± 0.5	12.7 ± 0.3	10.8 ± 0.2
% ORPE	2.6	4.0	2.2	2.7	1.6
F _{reg}	1,081	377	302	691	3,706

Tabla 4.7. Coeficientes reajustados K_1 , k_1 y k_2 estimados con los respectivos datos experimentales de caída de presión, para cada soporte de catalizador aplicados a la correlación de Einfeld-Schnitzlein [6].

	CAT-A	CAT-B	CAT-C	CAT-D	CAT-E
K_1	182 ± 14	478 ± 46	848 ± 32	468 ± 38	420 ± 14
k_1	32.9 ± 0.4	9.3 ± 0.2	6.7 ± 0.1	7.4 ± 0.1	9.3 ± 0.1
k_2	-	-	-	-	-
% ORPE	3.7	3.5	1.6	2.8	1.8
F _{reg}	727	307	2,796	637	3,591

Finalmente, la Tabla 4.7 presenta los resultados de la regresión para reestimar los coeficientes asociados a la correlación de Einfeld-Schnitzlein [6], la única de entre las cinco seleccionadas en este trabajo que contiene tres parámetros ajustables, a saber, K_1 acoplado al término viscoso, además de k_1 y k_2 contenidas en el término laminar. Es importante referir que fue imposible obtener los tres parámetros con significancia estadística al 95 % de probabilidad,

en particular, el coeficiente k_2 fue sistemáticamente no significativo. De esta manera excluyendo a k_2 de la regresión y reestimado sólo K_1 y k_1 los resultados de la regresión fueron satisfactorios con parámetros con significado físico adecuado y estadísticamente consistentes, y con buena capacidad de predicción. Para los cinco soportes de catalizador, los valores de los parámetros K_1 y k_1 reajustados se ubicaron 182 a 848 y 6.7 a 32.9, respectivamente, exhibiendo en todos los casos valores mayores que los reportados en la correlación original. CAT-A fue el material que reportó menor valor de K_1 y el CAT-C el mayor, mientras que para k_1 los resultados se invirtieron. La capacidad de reproducir los datos experimentales aplicando la correlación Einfeld-Schnitzlein [6], con parámetros reajustados fue alta, con valores de ORPE por debajo de 4 %, este último decreciendo respecto a lo reportado en la sección 4.3.2 de 10 a 3.7%, 60 a 3.5%, 75 a 1.6%, 53 a 2.8% y 47 a 1.8%, para el CAT-A, CAT-B, CAT-C, CAT-D y CAT-E, respectivamente.

4.4.3 Gráficos de paridad

Si bien los valores de F_{reg} derivado de la aplicación de la prueba estadística de Fisher y definido por la ec. 4.12, así como los valores del % ORPE, y incluidos en las Tablas 4.3, 4.4, 4.5, 4.6 y 4.7 para las cinco diferentes correlaciones de caída de presión tomadas de la literatura y el mismo número de soportes de catalizador, ofrecen información relativa a su capacidad de predicción, los llamados gráficos de paridad permiten determinar de manera visual la aleatoriedad de dichas predicciones con respecto a condiciones de proceso específicas.

Los gráficos de paridad son una herramienta estadística de uso común para el trabajo de modelamiento en los cuales, para el caso particular de este trabajo, se confrontan la caída de presión calculada a partir de las correlaciones reajustadas contra los correspondientes obtenidos mediante experimentación. Estos gráficos permiten no sólo evaluar de manera visual la capacidad del modelo para representar los datos experimentales, sino también determinar si las predicciones se desvían de manera aleatoria o presentan algunas tendencias en función, por ejemplo, de las condiciones de proceso en nuestro caso particular, temperatura y presión.

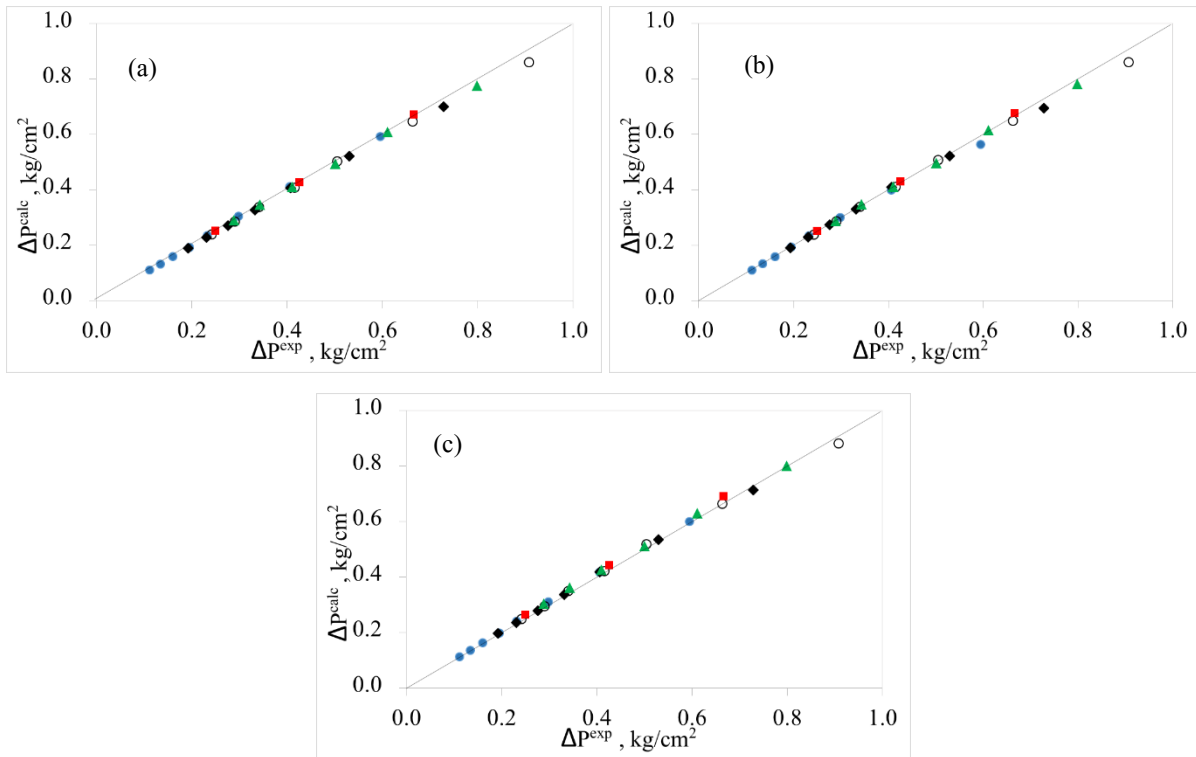


Figura 4.9. Gráficos de paridad comparativos de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-A a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y (c) Eisefeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm², (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm², (○) 300 °C – 2.5 kg/cm², (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm².

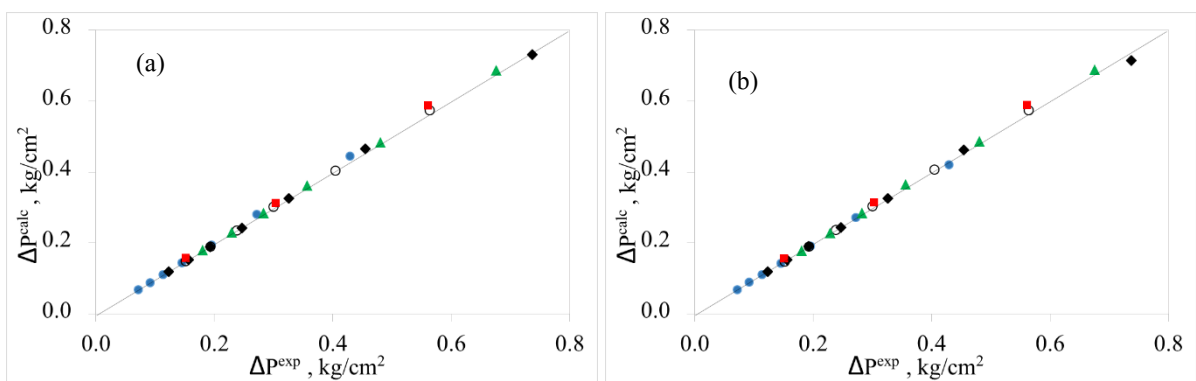


Figura 4.10. Gráficos de paridad comparativas de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-B a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y (c) Eisefeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm², (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm², (○) 300 °C – 2.5 kg/cm², (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm².

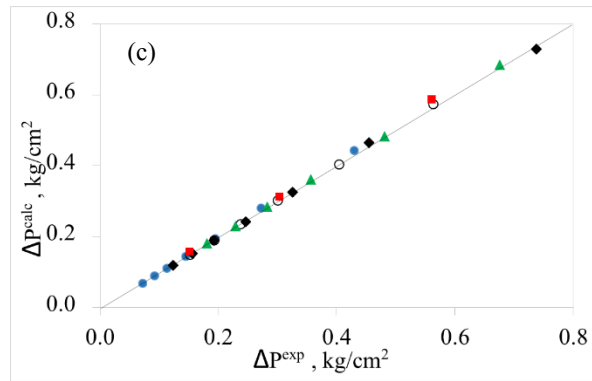


Figura 4.10. Continuación.

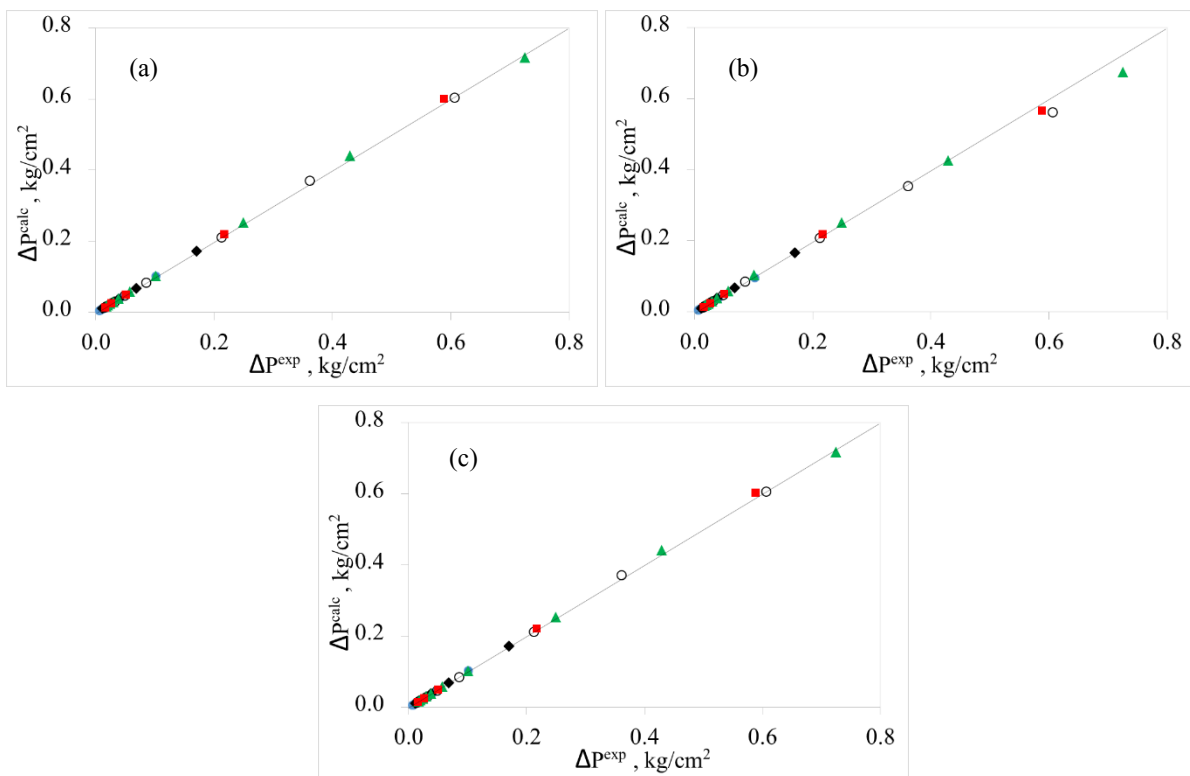


Figura 4.11. Gráficos de paridad comparativas de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-C a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y (c) Einfeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm², (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm², (○) 300 °C – 2.5 kg/cm², (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm².

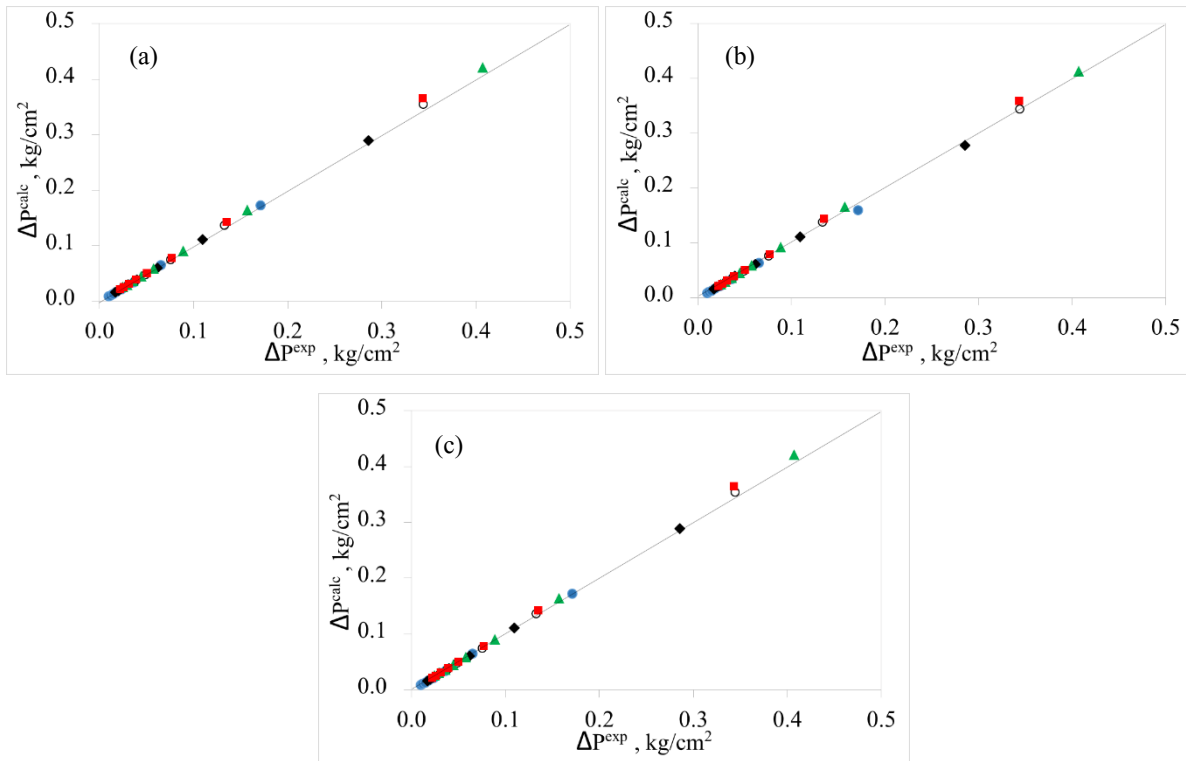


Figura 4.12. Gráficos de paridad comparativas de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-D a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y (c) Einfeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm², (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm², (○) 300 °C – 2.5 kg/cm², (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm².

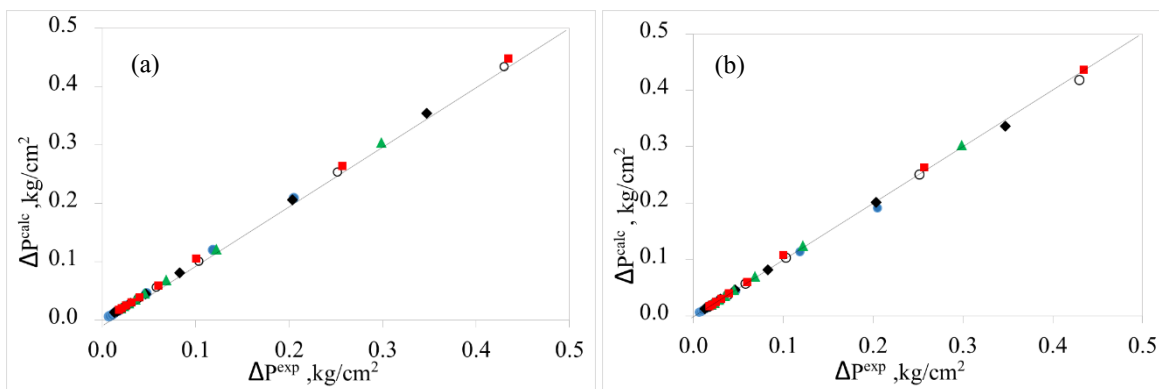


Figura 4.13. Gráficos de paridad comparativas de datos de caída de presión experimental vs calculada para el CAT-E a diferentes correlaciones reajustadas. (a) Ergun [7], (b) Harrison y col. [5] y col. y (c) Einfeld-Schnitzlein [6]. (●) 25 °C – 2.5 kg/cm², (◆) 200 °C – 2.5 kg/cm², (○) 300 °C – 2.5 kg/cm², (▲) 400 °C – 2.5 kg/cm² y (■) 400 °C – 3.0 kg/cm².

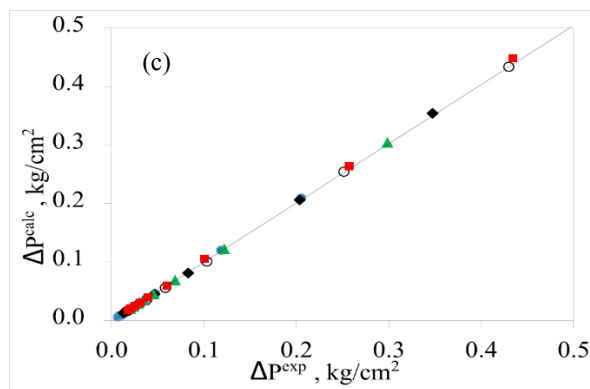


Figura 4.13. Continuación.

Las Figuras 4.9, 4.10, 4.11, 4.12 y 4.13 contienen los gráficos de paridad que contrastan caídas de presión calculadas con las correlaciones reajustadas relativas a los soportes de catalizador CAT-A, CAT-B, CAT-C, CAT-D y CAT-E, respectivamente, y sus contrapartes experimentales. Notar que cada Figura contiene tres gráficos, para Ergun [7] (correlación de referencia), Harrison y col. [5] y Einfeld-Schnitzlein [6] (estos dos correlaciones incluidas a incorporar de manera explícita los efectos de pared), mientras que cada gráfico contiene cinco series cada una correspondiendo a una combinación temperatura – presión diferente, específicamente, 25 °C – 2.5 kg/cm², 200 °C – 2.5 kg/cm², 300 °C – 2.5 kg/cm², 400 °C – 2.5 kg/cm² y 400 °C – 3.0 kg/cm². En ninguno de los gráficos referidos se observa que las tres correlaciones citadas, al ser aplicadas a ninguno de los soportes de catalizador, predigan con menor precisión la información experimental de caída de presión a determinadas condiciones de temperatura y presión. En todos los casos las predicciones son muy precisas y se sitúan sobre la línea 45 ° respecto a los ejes X y Y de los gráficos. Esto significa que independientemente de las condiciones de temperatura y/o presión, los modelos reproducen de manera confiable y aleatoria los datos experimentales de caída de presión. Notar también que la precisión en la predicción de los valores de caída de presión experimentales mostradas en los gráficos de paridad no se ven afectadas por la morfología del soporte de catalizador.

4.5 Referencias

- [1] E. Erdim, O. Akgiray, I. Demir, A revisit of pressure drop-flow rate correlations for packed beds of spheres, Powder Technology, 283 (2015) 488.
- [2] T. Radojica, N. Kaliderovic. Pressure drop in packed beds of spherical particles at ambient and elevated air temperatures. Chem. Ind. Chem. Eng. Q. 21 – 3 (2014) 419.

-
- [3] J. A. Tallmadge, Packed bed pressure drop-an extension to higher Reynolds number, *AIChE J.* 16 - 6 (1970) 1092.
- [4] S. Liu, A. Afacan, J.H. Masliyah, Steady incompressible laminar flow in porous media, *Chemical Engineering Science*, 49 - 21(1994) 3565.
- [5] L. D. Harrison, K. M. Brunner, W. C. Hecker. A combined packed-bed friction factor equation: extension to higher Reynolds number with wall effects. *AIChE J.*, 59 - 3 (2013) 703.
- [6] B. Einfeld, K. Schnitzlein. The influence of confining walls on the pressure drop in packed beds. *Chem. Eng Sci*, 56 (2001) 4321.
- [7] S. Ergun, Fluid flow through packed columns, *Chemical Engineering Progress*, 45 (1952) 1179.
- [8] D. Y. Peng, and D. B. Robinson, A new two-constant equation of state, *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 15 (1976) 59.
- [9] L. A. Bromely and C. R. Wilke, Viscosity Behavior of Gases, *Ind. Eng. Chem.*, 43 - 7 (1951) 1641.
- [10] K.G. Allen, T.W. von Backström, D.G. Kröger, Packed bed pressure drop dependence on particle shape, size distribution, packing arrangement and roughness, *Powder Technology*, 246 (2013) 590.
- [11] W. Reichelt, Zur Berechnung des Druckverlustes einphasig durchströmter Kugel- und Zylinderschüttungen, *Chemical Engineering Technology*, 44 - 8 (1972) 1068.
- [12] A. Montillet, E. Akkari, J. Comiti, About a correlating equation for predicting pressure drops through packed beds of spheres in a large range of Reynolds numbers, *Chem. Eng. Proc.*, 46 (2007) 329.
- [13] D. Nemeč, J. Levec, Flow through packed bed reactors: 1. Single-phase flow, *Chem. Eng. Sci.*, 60 (2005) 6947.

CAPÍTULO 5.

CONCLUSIONES

Este trabajo reporta los resultados de un estudio teórico-experimental de caída de presión en lechos empacados con marcados efectos de pared, característica asociada a la baja relación de diámetro de tubo a diámetro (equivalente) de partícula ($d_t/d_{p,e}$), resultado de utilizar tubos de diámetro interno pequeño y partículas relativamente voluminosas. Esta configuración de tubo empacado es típica de reactores multitubulares con enfriamiento externo, utilizados para llevar a cabo procesos catalíticos heterogéneos de naturaleza exotérmica, en los cuales el calor producido tiene que ser removido eficientemente del reactor para evitar un descontrol irreversible en la operación del mismo. Para tener a la mano información experimental robusta respecto a condiciones de proceso y configuración de partícula y pretendiendo aplicar los datos resultantes en el contexto comercial, la temperatura, la presión de entrada y el flujo volumétrico de aire alimentado fueron variados en intervalos relativamente amplios, mientras que el tubo de proceso fue empacado con cinco soportes comerciales de catalizador diferentes, con morfologías típicas (esferas, cilindros, cilindros perforados y tetralóbulos perforados) y tamaños adecuados para evidenciar los efectos de pared.

1. La caída de presión se encuentra fuertemente influenciada por la configuración de partícula, es decir, su morfología y tamaño. Las esferas de mayor tamaño (1/4" nominal), los cilindros y tetralóbulos perforados por el centro mostraron los menores valores de caída de presión. Como una alternativa para controlar la caída de presión en lechos empacados de baja relación $d_t/d_{p,e}$ se recomienda el uso de partículas voluminosas, y para compensar parcialmente la disminución en el factor de efectividad de la partícula, se sugiere el uso de partículas con formas irregulares debido a que exhiben una mayor relación de área externa a volumen de partícula.
2. El uso de tetralóbulos perforados y cilindros perforados, sería en principio la opción más viable para empacar el tubo de proceso, debido a que exhiben caídas de presión tan bajas como las de la esfera de 1/4" nominal, pero con la ventaja de ofrecer una mayor área expuesta, lo que teóricamente implicaría tener partículas con mayores factores de efectividad.
3. Las condiciones que conducen a un aumento en la velocidad superficial del fluido impactan en la caída de presión, en particular el flujo volumétrico alimentado y la temperatura. Para un área transversal dada, el aumento en

el flujo de alimentación (incremento el GHSV y WHSV) resulta en una mayor velocidad superficial y, por ende, mayor caída de presión al haber mayor fricción con las partículas del sólido. El incremento en la temperatura también tiene como resultado una expansión en el volumen del gas, y, por tanto, una mayor caída de presión.

4. Las cinco correlaciones tomadas de la literatura, incluyendo tres de ellas que incorporan de manera explícita los efectos de pared, no fueron capaces de reproducir los datos experimentales de caída de presión reportados en este trabajo de tesis, mostrando, en general, una tendencia a subestimarla independientemente de la configuración de partícula. La desviación reportada por dichas correlaciones fue mas evidente para las partículas sean mas voluminosas y de formas más irregulares. Las correlaciones tomadas del estado del arte, en su forma original, no son elegibles para fines de simulación y, por tanto, debieron ser reajustadas en sus parámetros inercial y viscoso.

5. Debido a que las correlaciones en su forma original subestimaban los valores de caída de presión experimentales, los coeficientes reajustados (tanto para el término viscoso como para el inercial) fueron sistemáticamente mayores que los originales. Los coeficientes reestimados relativos del término viscoso se desvían más que los del término inercial, debido a la experimentación que, en términos del número de Reynolds de partícula, se ubicó en las zonas de régimen de transición y turbulento.

6. Con respecto a la capacidad de predicción de las correlaciones en su forma reajustada, se observa que los valores relativos globales aplicados a cualquier morfología disminuyeron notablemente, ubicándose en todos los casos por debajo del 4% de error relativo global. Dichas desviaciones no se vieron influenciadas por las condiciones de proceso (flujo de alimentación de aire o Re_p , temperatura o presión).

7. Las correlaciones de caída de presión en su forma reajustada son elegibles para la predicción de la caída de presión siempre y cuando la experimentación se encuentre dentro de la región de operación delimitada en esta tesis.

8. Para fines de simulación, en particular, balance de momento e hidrodinámica, de reactores multitubulares con enfriamiento externo utilizados para llevar a cabo procesos catalíticos heterogéneos de naturaleza exotérmica, caracterizados por su baja relación ($d_t/d_{p,e}$), es altamente recomendable caracterizar experimentalmente la caída de presión correspondiente en ausencia de reacción, a condiciones típicas de proceso usando una configuración de partícula que sea similar tanto como sea posible a la configuración final del catalizador.

9. El trabajo futuro será enfocado en el estudio detallado de la hidrodinámica de los lechos empacados con las diferentes partículas, a partir de simulaciones y modelamiento del comportamiento del fluido a través del lecho empacado.

APÉNDICE A.

MEDICIÓN EXPERIMENTAL DE LAS DIMENSIONES DE LAS PARTÍCULAS

En el Capítulo 3 se comenta sobre las mediciones que se realizan partícula a partícula a los diferentes soportes de catalizador, para determinar de manera directa e indirecta, algunas propiedades promedio de las mismas. En la práctica, a las partículas esféricas se les determina su diámetro, a los cilindros no perforados se les mide el diámetro y la longitud, a los cilindros perforados el diámetro, la longitud y el diámetro de la perforación, mientras que a los tetralobulos perforados se les determina la longitud, el diámetro de la perforación y la distancia entre extremos de lóbulos. A manera de ejemplo, en este Apéndice, se ofrecen los resultados de las mediciones correspondientes para cuatro soportes de catalizador CAT-B, CAT-C, CAT-D y CAT-E, todos ellos con morfologías diferentes como ha sido sentado en el Capítulo 2. De manera particular, la Figura A.1 contiene las mediciones de diámetro y longitud del *pellet* cilíndrico denotado como CAT-B. La Figura A.2 muestra los valores de distancia entre lóbulos, longitud de partícula y diámetro de orificio del tetralóbulo perforado en el centro referido como CAT-C. La Figura A.3. despliega los valores de diámetro para la esfera de 1/4" de diámetro nominal designada como CAT-D. Finalmente, la Figura A.4. Presenta los valores de diámetro de partícula, longitud de partícula y diámetro de orificio para el cilindro perforado asignado como CAT-E. En todos estos casos, en el eje de las X se incluye en número de partículas que fueron medidas, referido en general como n_p . Se observa en todos estos gráficos, que la mayor dispersión en las mediciones fue para la longitud de partícula, razón por la cual tomó un mayor número de partículas para la medición, típicamente 100.

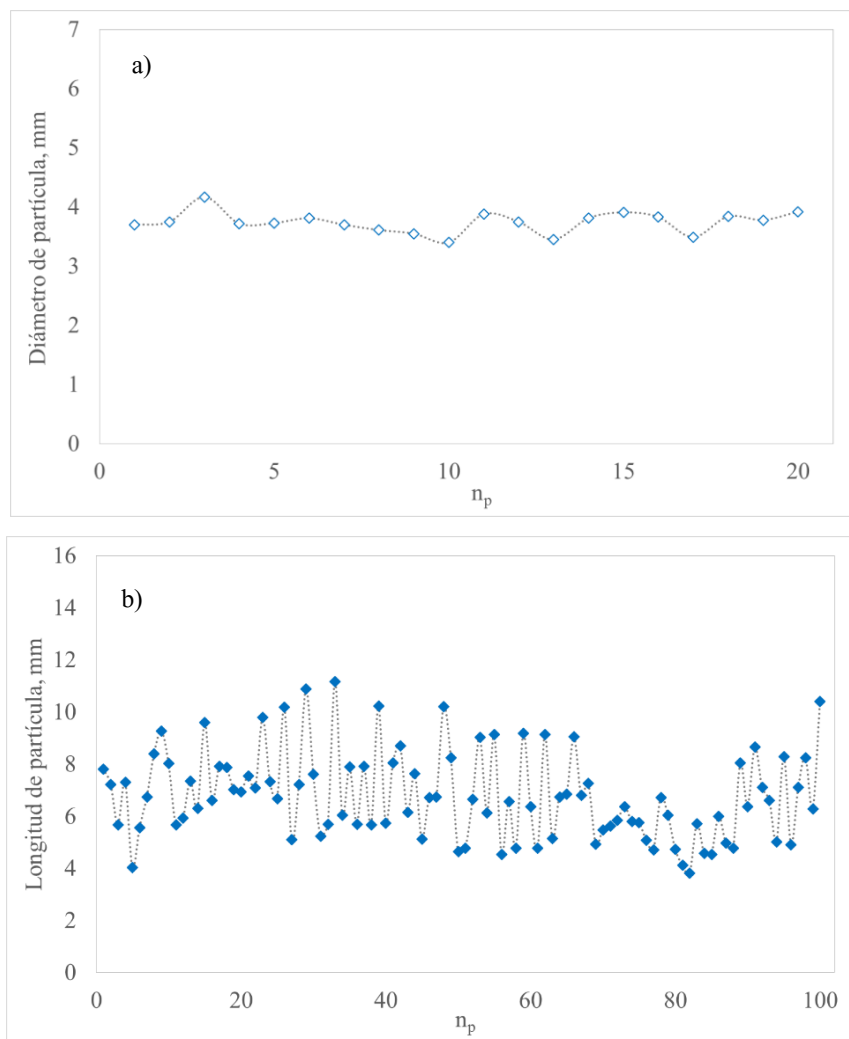


Figura A.1. Mediciones experimentales de propiedades físicas de partícula correspondientes al (a) diámetro de partícula y (b) longitud de partícula. Información mostrada para el CAT-B.

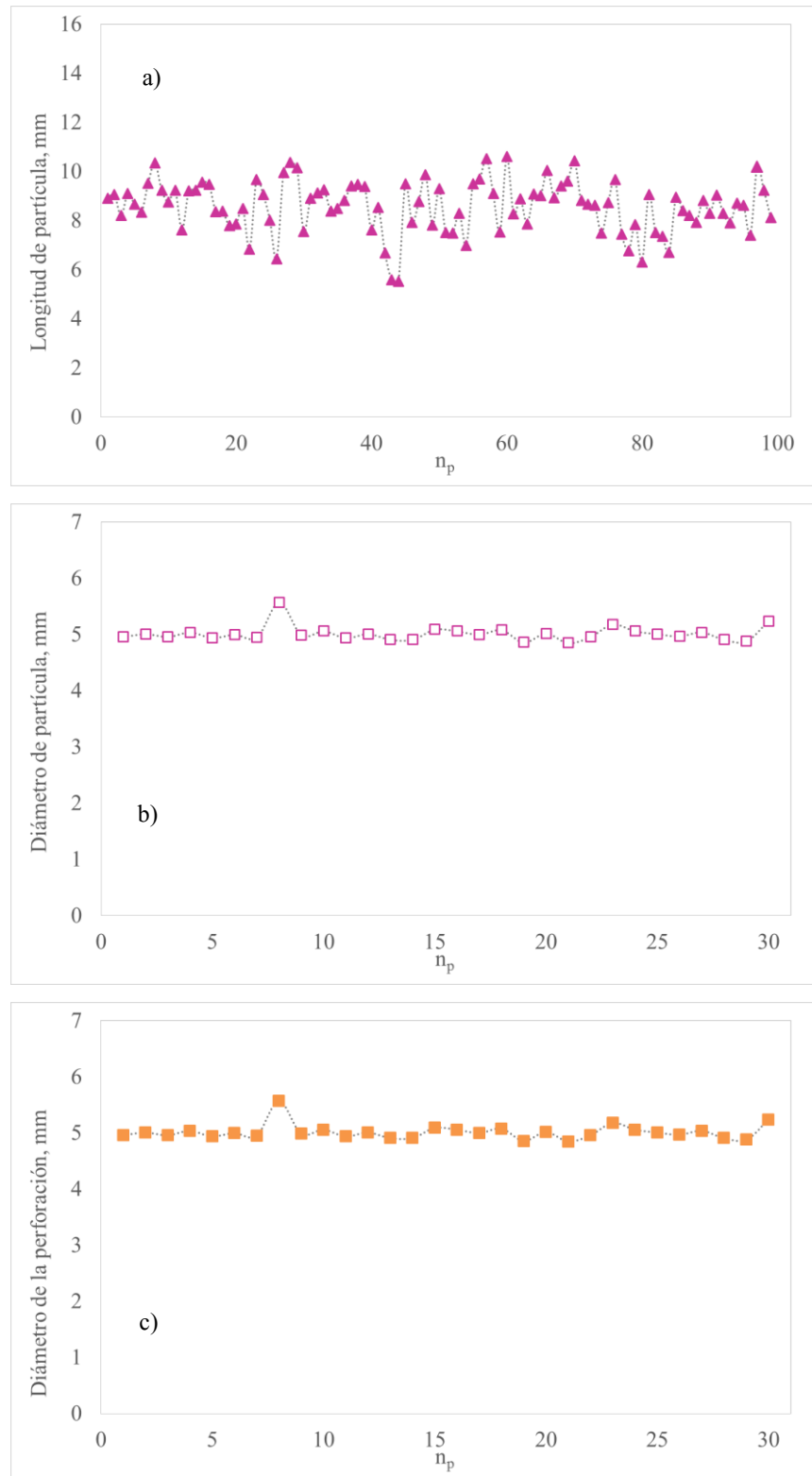


Figura A.2. Mediciones experimentales de propiedades físicas de partícula correspondientes al (a) diámetro de partícula, (b) longitud de partícula y (c) diámetro de orificio. Información mostrada para el CAT-C.

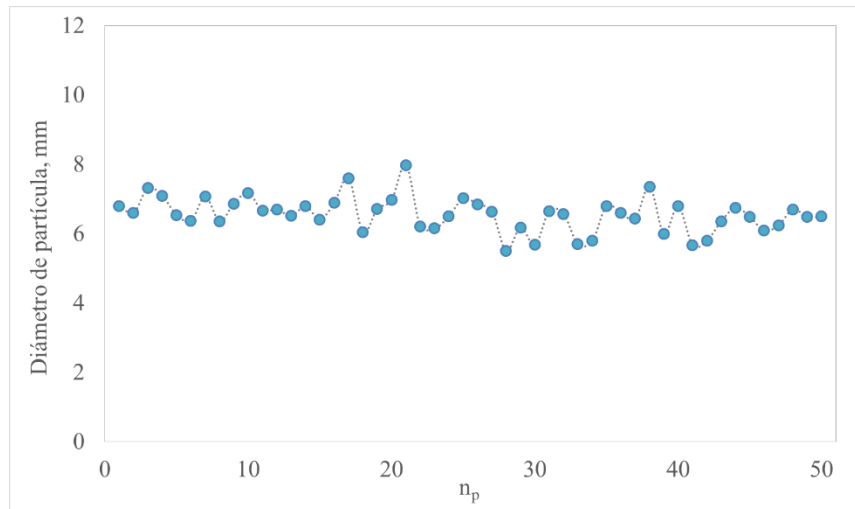


Figura A.3. Mediciones experimentales de propiedades físicas de partícula correspondientes al (a) diámetro de partícula. Información mostrada para el CAT-D.

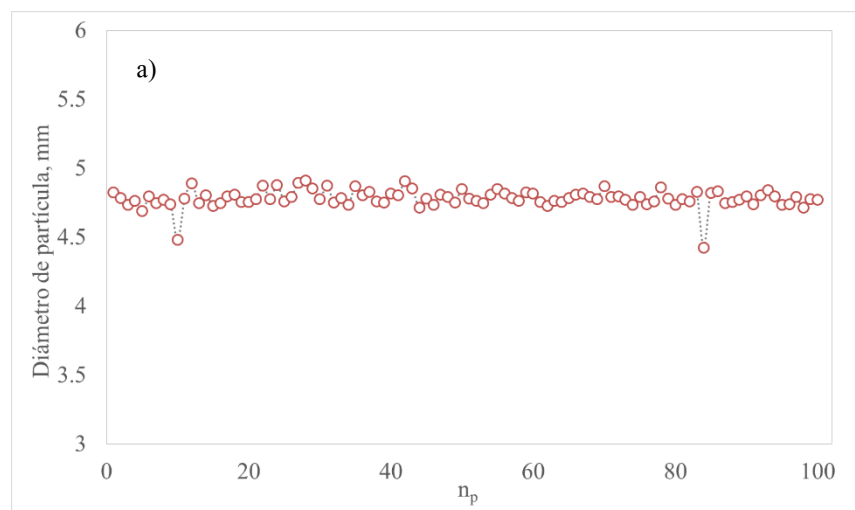
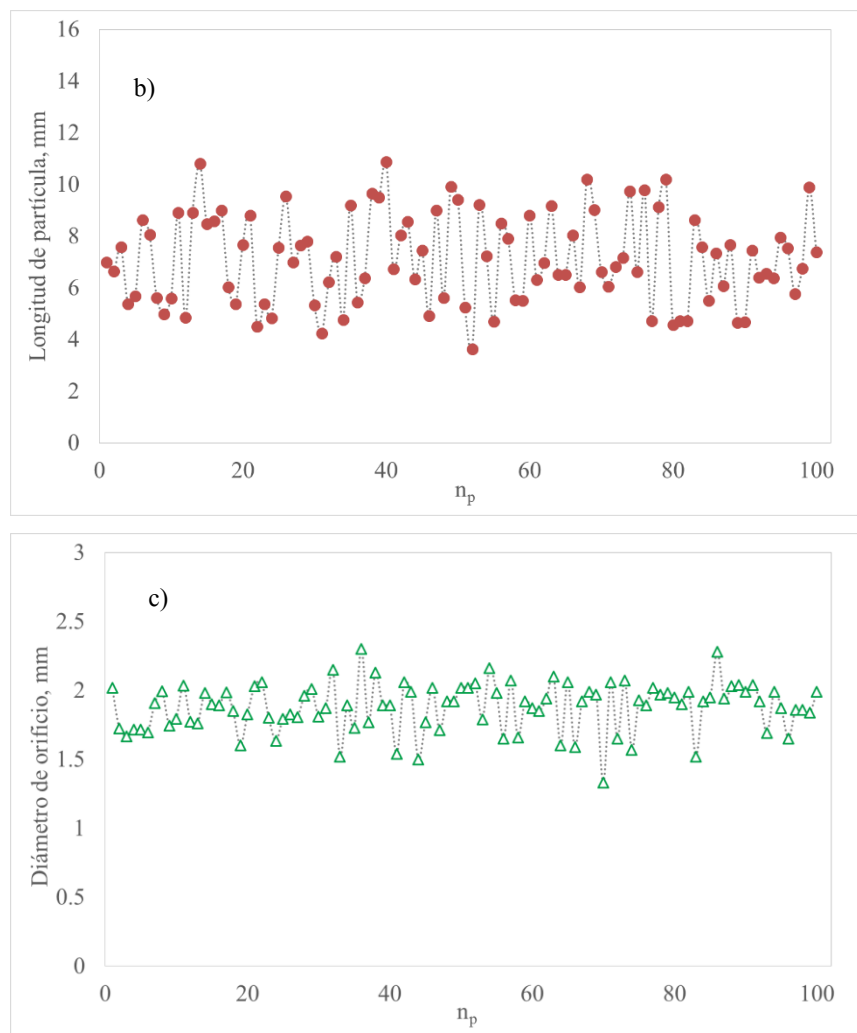


Figura A.4. Mediciones experimentales de propiedades físicas de partícula correspondientes al (a) diámetro de partícula, (b) longitud de partícula y (c) diámetro de orificio. Información mostrada para el CAT-E.

**Figura A.4. Continuación.**

APÉNDICE B.

CORRELACIONES PARA EL CÁLCULO DE FRACCIÓN HUECA

Usualmente por simplicidad, cuando se requiere incorporar la fracción hueca promedio (ϵ) de un lecho empacado (un lecho catalítico, por ejemplo) para fines de simulación, se recurre al uso de correlaciones tomadas de la literatura. El número de correlaciones disponibles es extenso sin embargo, para lechos empacados con una relación de diámetro de tubo (d_t) a diámetro de partícula ($d_{p,e}$) relativamente medianos y bajos, un alto porcentaje de éstas tiene la forma de la ec. B-1, abajo, según lo reporta Benyahia y col. [1]. Esta ecuación incorpora tres parámetros denotados por α , β , y γ , los cuales se obtienen mediante un ajuste de parámetros a partir de la minimización de suma de errores al cuadrado SSE (*Sum of Squares Error*, por sus siglas en inglés) con respecto a una serie de valores experimentales referidos por el mismo autor, y cuyo valor depende en esencia de cada morfología considerada. Como única variable independiente, la ec. B-1 considera la relación $d_t/d_{p,e}$.

$$\epsilon = \alpha + \frac{\beta}{(d_t/d_{p,e} + \gamma)^2} \quad \text{ec. B-1}$$

Notar que los parámetros presentados en la Tabla B.1 aplican para diferente morfología de partícula y un intervalo de tamaño de partícula específico, dado por la relación $d_t/d_{p,e}$.

Tabla B.1. Correlaciones teóricas para el cálculo de fracción hueca en el lecho empacado [1]

Morfología de partícula	Correlación	Intervalo de $d_t/d_{p,e}$
Esferas	$0.390 + \frac{1.740}{(d_t/d_{p,e} + 1.140)^2}$	$1.5 < d_t/d_{p,e} < 50$
Cilindros sólidos	$0.373 + \frac{1.703}{(d_t/d_{p,e} + 0.611)^2}$	$1.7 < d_t/d_{p,e} < 26.3$
Cilindros perforados	$0.465 + \frac{2.030}{(d_t/d_{p,e} + 1.033)^2}$	$1.9 < d_t/d_{p,e} < 14.5$

Sin embargo, con el objetivo de obtener una correlación más generalizada, que aplique para cualquier morfología de partícula, Benyahia y col. [1] decidieron incluir en el término α de la ecuación B.1 la esfericidad de la partícula referida como ϕ . De este modo, α se calcula de acuerdo con la ec. B-2.

$$\alpha = 0.1504 + \frac{0.2024}{\phi} \quad \text{ec. B.2}$$

Al combinar las ec. B.1 y B.2, el resultado es la ec. B.3, la cual, de acuerdo con Benyahia y col. [1] aplica para cualquiera de las morfologías de partícula referidas en su publicación (esferas, cilindros sólidos y cilindros perforados). Es importante mencionar que el intervalo de aplicación de la ec. B.3 es amplio, situándose en $1.5 < d_t/d_{p,e} < 50$ y $0.42 < \phi < 1.0$

$$\varepsilon = \left(0.1504 + \frac{0.2024}{\phi} \right) + \frac{1.0814}{(d_t/d_{p,e} + 0.1226)^2} \quad \text{ec. B.3}$$

Como referencia, en este trabajo se utilizaron las ec. B.1 y B.3 para el aproximar la fracción porosa promedio de los lechos empacados con los diferentes soportes de catalizador investigados en esta tesis. Los resultados correspondientes se muestran en la Tabla B.2, en la cual también se incluyen los valores experimentales obtenidos de acuerdo con la metodología referida en el Capítulo 2 de esta tesis, y los porcentajes de desviación correspondientes, tomando como valores de referencia los reportados en el Capítulo 3 de este trabajo. La correlación de la ec. B.3 es sin duda más precisa comparada con B.1 indicando que la incorporación de la esfericidad beneficia las predicciones, sin embargo, los errores fueron relativamente altos para las muestras CAT-C, CAT-D y CAT-E, correspondiendo a las partículas menos regulares (CAT-C y CAT-E, 11 y 5 %), y más voluminosas CAT-D (20 %). Notar también que la ec. B.3 sobrestima casi todos los valores de fracción hueca, excepto para CAT-D.

Tabla B.2. Resultados comparativos del cálculo de fracción hueca en el lecho empacado

	CAT-A	CAT-B	CAT-C	CAT-D	CAT-E
$\varepsilon_{\text{exp,m}}$	0.380	0.450	0.613	0.561	0.533
$\varepsilon_{\text{calc,m}}(\text{ec. B-1})$	0.426	0.451	0.556	0.481	0.562
%error	-12	-0.2	9	14	-5
$\varepsilon_{\text{calc,m}}(\text{ec. B-3})$	0.384	0.505	0.681	0.449	0.562
%error	-0.8	-0.5	-11	20	-5

B.1 Referencias

- [1] Benyahia F. O'Neill K. Particulate Science and Technology (2005) 23, 169-177.

APÉNDICE C.

OTRAS CORRELACIONES PARA ΔP

Este Apéndice contiene 20 correlaciones tomadas de la literatura, adicionales a las cinco ofrecidas y evaluadas a detalle en el Capítulo 4, para predecir la caída de presión experimental en tubos empacados. La Tabla C.1 despliega dichas ecuaciones en términos del factor de fricción f_k , el cual al ser acoplado con la ec. 1.3 del Capítulo 1, permite tener expresiones explícitas para calcular la caída de presión. Con la finalidad de valorar de manera gráfica la capacidad de predicción de dichas correlaciones, en las Figuras C.1-C.5 se grafican de manera simultánea los valores de caída de presión experimental y los calculados con las correlaciones de la Tabla C.1 como función de Re_p . Se incluyen, de manera particular, tres series de datos calculados a las condiciones de proceso, $25^\circ\text{C} - 2.5 \text{ kg/cm}^2$, $400^\circ\text{C} - 2.5 \text{ kg/cm}^2$ y $400^\circ\text{C} - 3 \text{ kg/cm}^2$, respectivamente.

Tabla C.1. Algunas correlaciones para f_k tomadas de la literatura, aplicables para predecir la caída de presión en lechos empacados.

Brauer [1]	$f_k = \left(160 + 3.1 \left(\frac{Re_p}{1-\varepsilon} \right)^{0.9} \right) \frac{1-\varepsilon}{Re_p}$
Carman [2]	$f_k = \left(180 + 2.871 \left(\frac{Re_p}{1-\varepsilon} \right)^{0.9} \right) \frac{1-\varepsilon}{Re_p}$
	$f_k = \frac{A_w M}{\left(\frac{Re_p}{1-\varepsilon} \right)} + A_w B$
	$A_w = 1 + \frac{2}{3} \frac{1}{1-\varepsilon} \frac{d_{p,e}}{d_t}$
Cheng [3]	$M = \left[185 + 17 \frac{\varepsilon}{1-\varepsilon} \left(\frac{d_t}{d_t - d_{p,e}} \right)^2 \right] \frac{1}{A_w^2}$
	$B = \left[1.3 \left(\frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \right)^{1/3} + 0.03 \left(\frac{d_t}{d_t - d_{p,e}} \right)^2 \right] \frac{1}{A_w}$
	$f_k = 130 \left(\frac{1-\varepsilon}{Re_p} \right) + A$
Foumeny y col. [4]	$A = \frac{d_t/d_{p,e}}{0.355(d_t/d_{p,e}) + 2.28}$

Tabla C.1. Continuación.

Gibilaro y col. [5]	$f_k = \left(\frac{18}{Re_p} + 0.33 \right) \frac{1}{\varepsilon^{1.8}}$
Handley and Heggs [6]	$f_k = 368 \left(\frac{1-\varepsilon}{Re_p} \right) + 1.24$
Hicks [7]	$f_k = 6.8 \left(\frac{1-\varepsilon}{Re_p} \right)^{0.2}$
Jones and Krier [8]	$f_k = \left(150 + 3.89 \left(\frac{Re_p}{1-\varepsilon} \right)^{0.87} \right) \frac{1-\varepsilon}{Re_p}$
KTA[9]	$f_k = \left(160 + 3.0 \left(\frac{Re_p}{1-\varepsilon} \right)^{0.9} \right) \frac{1-\varepsilon}{Re_p}$
Kuerten [10]	$f_k = 6.25(1-\varepsilon) \left(\frac{21}{Re_p} + \frac{6}{Re_p^{0.5}} + 0.28 \right)$
Kuo and Nydegger [11]	$f_k = \left(276.23 + 5.05 \left(\frac{Re_p}{1-\varepsilon} \right)^{0.87} \right) \frac{1-\varepsilon}{Re_p}$
Lee-Ogawa [12]	$f_k = 6.25(1-\varepsilon) \left(\frac{29.32}{Re_p} + \frac{1.56}{Re_p^n} + 0.1 \right)$ $n = 0.352 + 0.1\varepsilon + 0.275\varepsilon^2$
Macdonald y col. [13]	$f_k = 180 \left(\frac{1-\varepsilon}{Re_p} \right) + 1.8$
Montillet y col. [14]	$f_k = 0.061 Re_p \left(\frac{d_t}{d_{p,\varepsilon}} \right)^{0.2} \left(\frac{1000}{Re_p} + \frac{60}{\sqrt{Re_p}} + 12 \right)$
Morcom [15]	$f_k = \left(\frac{784.8}{Re_p} + 13.73 \right) \frac{0.405^3}{1-\varepsilon}$
Özahi [16]	$f_k = 160 \left(\frac{1-\varepsilon}{Re_p} \right) + 1.61$
Rose [17]	$f_k = \left(\frac{\varepsilon^3}{(1-\varepsilon)} \right) \left(\frac{1000}{Re_p} + \frac{60}{\sqrt{Re_p}} + 12 \right)$
Rose and Rizk [18]	$f_k = \left(\frac{\varepsilon^3}{(1-\varepsilon)} \right) \left(\frac{1000}{Re_p} + \frac{125}{\sqrt{Re_p}} + 14 \right)$
Wentz and Thodos [19]	$f_k = \left(\frac{0.351}{(Re_p/(1-\varepsilon))^{0.05} - 1.2} \right)$
Yu,Zhang, Fan [20]	$f_k = 203 \left(\frac{1-\varepsilon}{Re_p} \right) + 1.95$

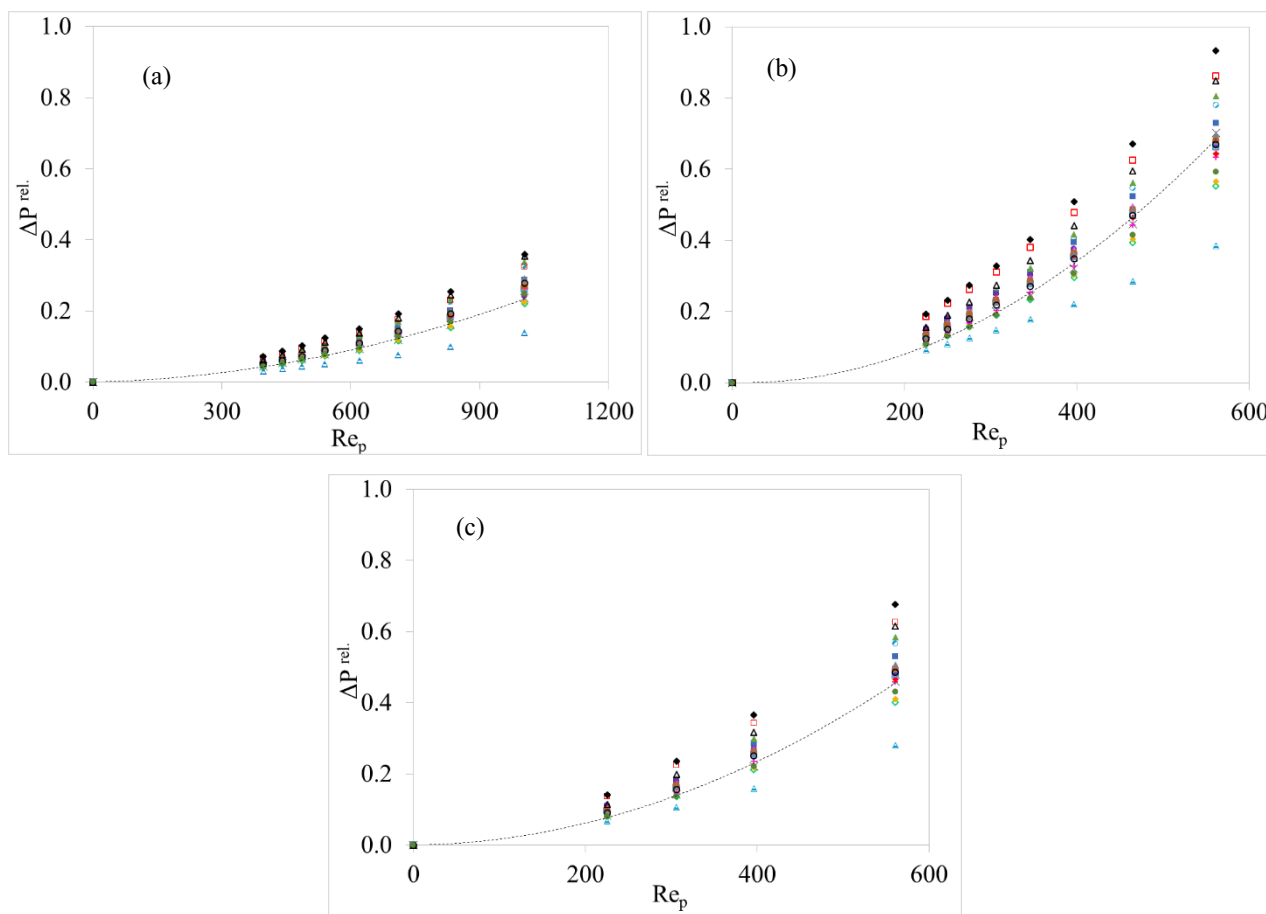


Figura C.1. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Re_p . (×) Experimental, (■) Brauer [1], (+) Carman [2], (○) Cheng [3], (●) Foumeny et al [4], (▲) Gibilaro et al [5], (◆) Handley-Heggs [6], (○) Hicks [7], (△) Jones-Krier [8], (□) KTA [9], (□) Kuerten [10], (◆) Kuo-Nydegger [11], (△) Lee-Ogawa [12], (○) Mac Donald et al [13], (◇) Montillet et al [14], (+) Morcom [15], (▲) Özahi et al [16], (◆) Rose [17], (■) Rose-Rizk [18], (●) Wentz-Thodos [19], (△) Yu et al [20]. (a) 25°C-2.5 kg/cm², (b) 400°C-2.5 kg/cm² y (c) 400°C-3.0 kg/cm². Información para el CAT-A.

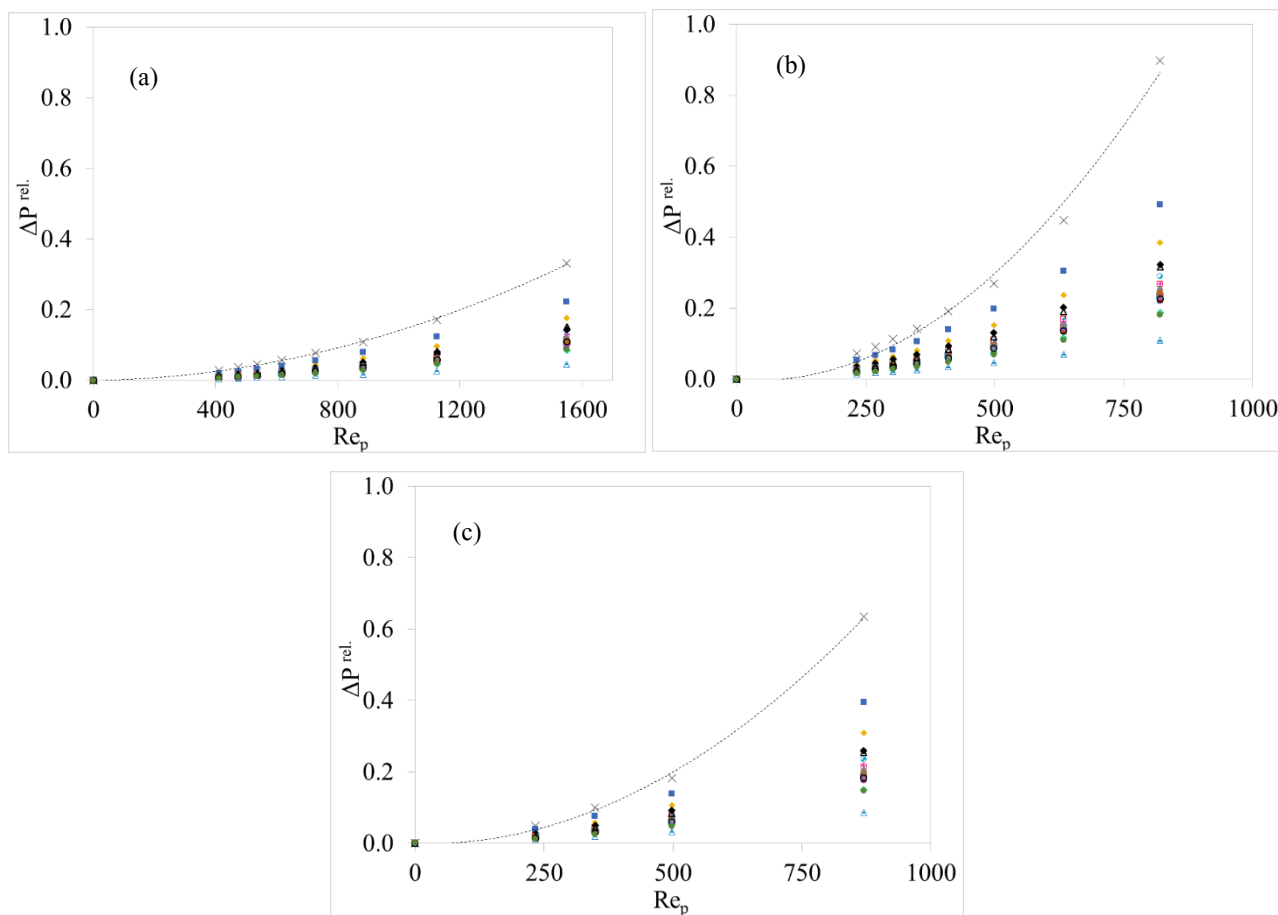


Figura C.2. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Re_p . (×) Experimental, (■) Brauer [1], (+) Carman [2], (○) Cheng [3], (●) Fomeny et al [4], (▲) Gibilaro et al [5], (◆) Handley-Heggs [6], (○) Hicks [7], (△) Jones-Krier [8], (□) KTA [9], (□) Kuerten[10], (◆) Kuo-Nydegger [11], (△) Lee-Ogawa[12], (○) Mac Donald et al [13], (◇) Montillet et al [14], (+) Morcom [15], (▲) Özahi et al [16], (◆) Rose[17], (■) Rose-Rizk [18], (●) Wentz-Thodos [19], (△) Yu et al [20]. (a) $25^\circ C$ - 2.5 kg/cm^2 , (b) $400^\circ C$ - 2.5 kg/cm^2 y (c) $400^\circ C$ - 3.0 kg/cm^2 . Información para el CAT-B.

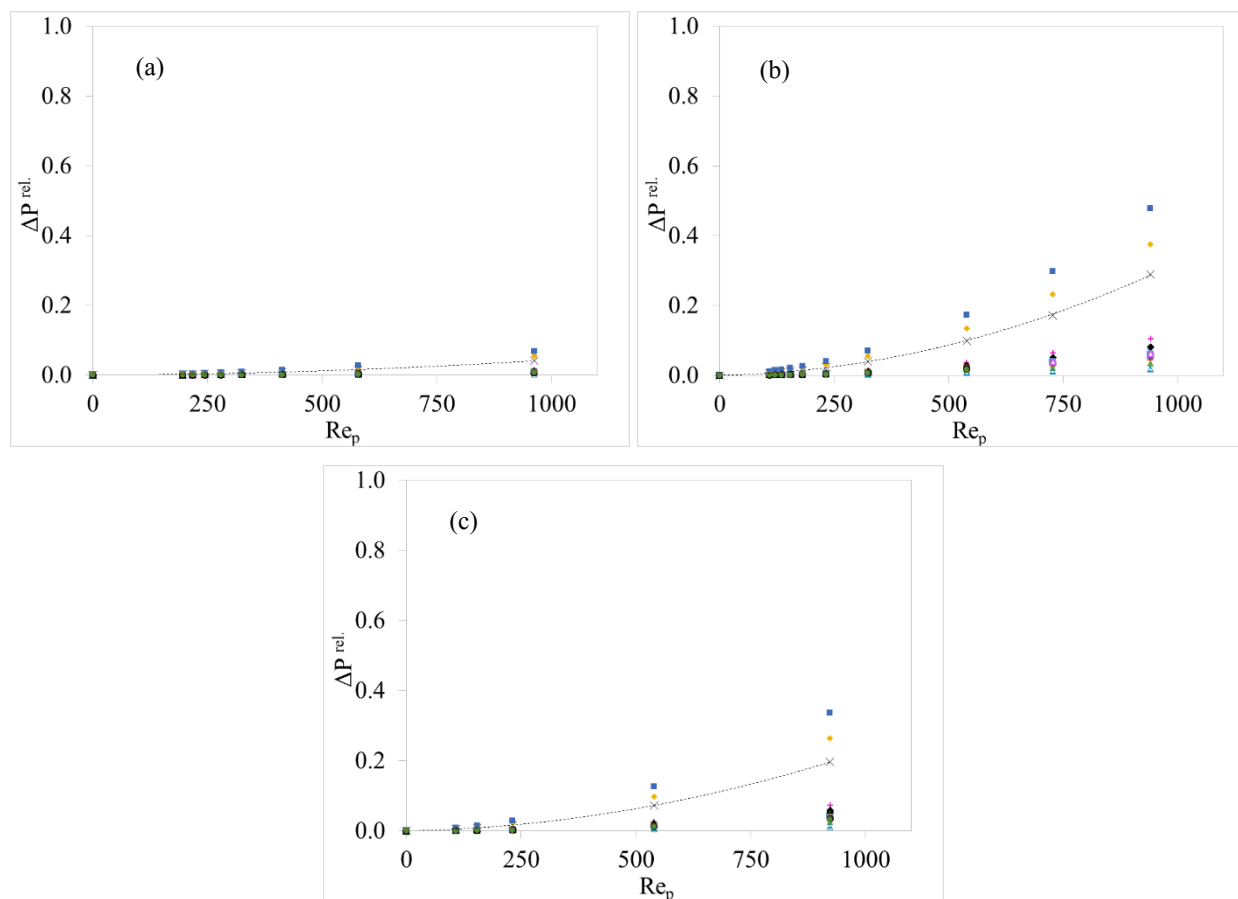


Figura C.3. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Re_p . (×) Experimental, (■) Brauer [1], (+) Carman [2], (○) Cheng [3], (●) Foumeny et al [4], (▲) Gibilaro et al [5], (◆) Handley-Heggs [6], (○) Hicks [7], (△) Jones-Krier [8], (□) KTA [9], (□) Kuerten[10], (◆) Kuo-Nydegger [11], (△) Lee-Ogawa[12], (○) Mac Donald et al [13], (◇) Montillet et al [14], (+) Morcom [15], (▲) Özahi et al [16], (◆) Rose [17], (■) Rose-Rizk [18], (●) Wentz-Thodos [19], (△) Yu et al [20]. (a) 25°C-2.5 kg/cm², (b) 400°C-2.5 kg/cm² y (c) 400°C-3.0 kg/cm². Información para el CAT-C.

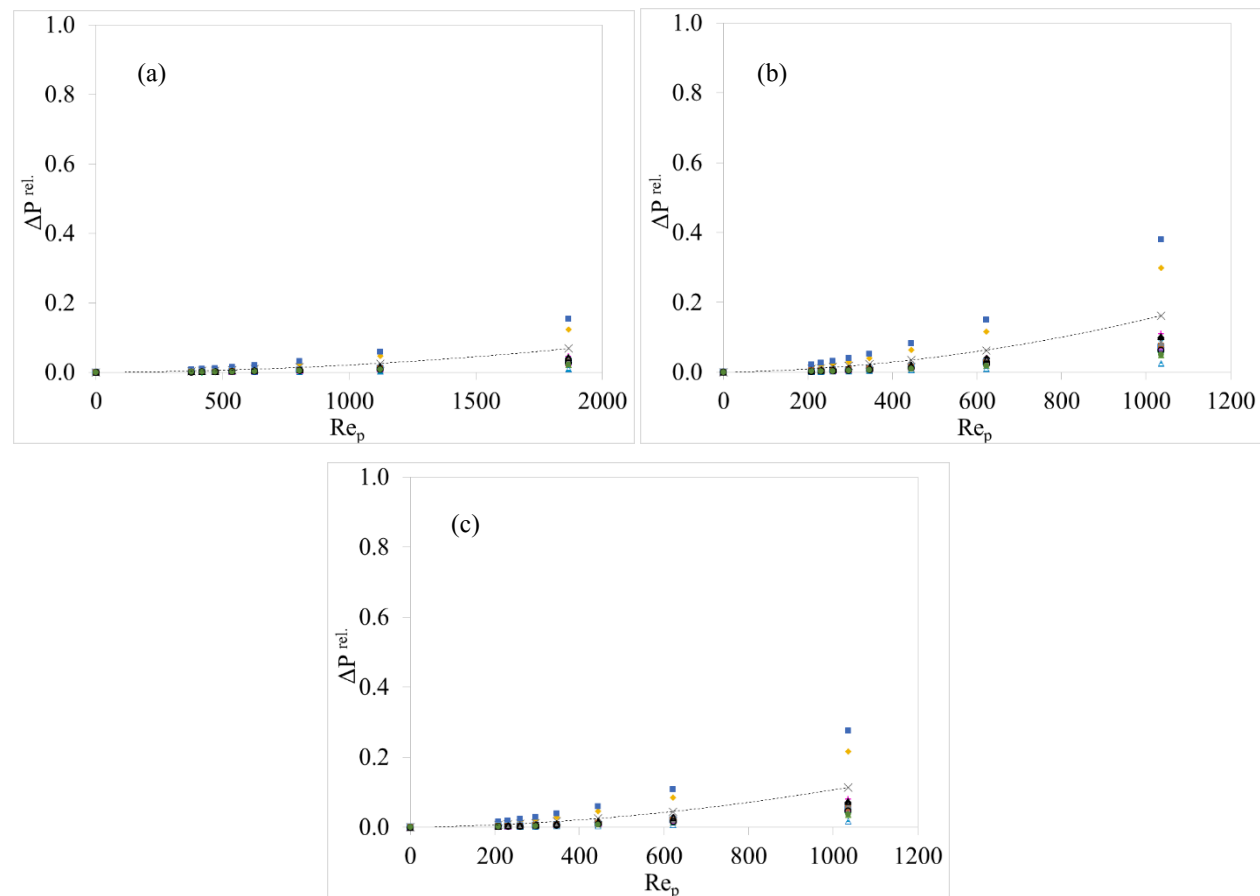


Figura C.4. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Re_p . (×) Experimental, (■) Brauer [1], (+) Carman [2], (○) Cheng[3], (●) Foumeny et al [4], (▲) Gibilaro et al [5], (◆) Handley-Heggs [6], (○) Hicks [7], (△) Jones-Krier [8], (□) KTA [9], (□) Kuerten[10], (◆) Kuo-Nydegger [11], (△) Lee-Ogawa[12], (○) Mac Donald et al [13], (◇) Montillet et al [14], (+) Morcom [15], (▲) Özahi et al [16], (◆) Rose [17], (■) Rose-Rizk [18], (●) Wentz-Thodos [19], (△) Yu et al [20]. (a) 25°C-2.5 kg/cm², (b) 400°C-2.5 kg/cm² y (c) 400°C-3.0 kg/cm². Información para el CAT-D.

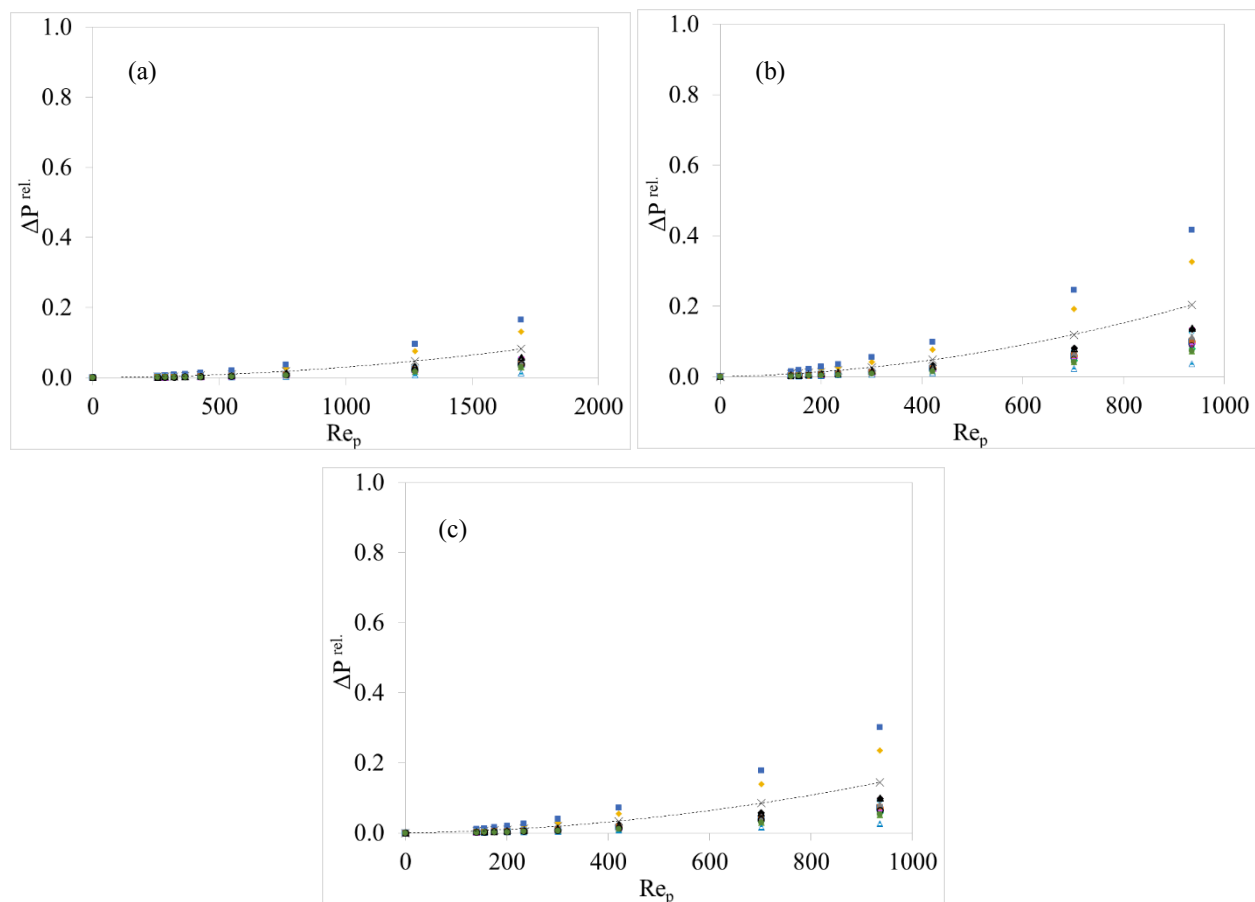


Figura C.5. Comparativo de datos experimentales (línea de tendencia) y valores calculados a partir de correlaciones a diferentes Re_p . (x) Experimental, (■) Brauer [1], (+) Carman [2], (○) Cheng [3], (●) Foumeny et al [4], (▲) Gibilaro et al [5], (◆) Handley-Heggs [6], (○) Hicks [7], (△) Jones-Krier [8], (□) KTA [9], (□) Kuerten [10], (◆) Kuo-Nydegger [11], (△) Lee-Ogawa [12], (○) Mac Donald et al [13], (◇) Montillet et al [14], (+) Morcom [15], (▲) Özahi et al [16], (◆) Rose [17], (■) Rose-Rizk [18], (●) Wentz-Thodos [19], (△) Yu et al [20]. (a) $25^\circ\text{C}-2.5 \text{ kg/cm}^2$, (b) $400^\circ\text{C}-2.5 \text{ kg/cm}^2$ y (c) $400^\circ\text{C}-3.0 \text{ kg/cm}^2$. Información para el CAT-E.

C.1 Referencias

- [1] H. Brauer, Eigenschaften der Zweiphasen-Strömung bei der Rejtifizijation in Füllkörpersäulen., In: Bretschneider, H.Ed.), Fortschritte der Destilliertechnik, Forschungsarbeiten aus dem Max-Planck-Institut für Strömungsforschung Göttingen, 37. Dechema-Monographien, VCH, Wienherm, pp. 7-78-, 1960, Quoted in: Hassan, Y.A. and Kang, C., Pressure drop in a pebble bed reactor under high Reynolds number, Nuclear Technology, 180 (2012) 159-173.
- [2] P.C. Carman, Fluid flow through granular beds, Trans.Inst. Chem. Eng. 15 (1937) S32-S48.
- [3] N.S. Cheng, Powder Technol. Wall effect on pressure drop in packed beds 210 (3) (2011) 261-266.
- [4] E.A. Foumeny et al, F. Benyahia, J.A.A. Castro, H.A. Moallemi, S. Roshani, Correlations of pressure drop in packed beds taking into account the effect of confining wall, Int. J. Heat Mass Transfer 36 (1993) 536-540.
- [5] L.G. Gibilaro, R. Di Felice, S.P. Waldram, The effect of interparticle forces on the stability of fluidized beds, Chem. Eng. Sci. 40 (1985) 1817-1823.
- [6] D. Handley, P.J. Heggs, Momentum and heat transfer mechanisms in regular shaped packings, Trans. Inst. Chen. Eng. 46 (1968) T251- T264.
- [7] R. Hicks, Pressure drop in packed beds of spheres, Ind. Eng. Chem. Fundam. 9 (1970) 500-502.
- [8] D.P Jones, H. Krier, Gas flow resistance measurements through packed beds at high Reynolds numbers, ASME J. Fluids Eng. (1983) 168-172.
- [9] N.S.S.C. KTA, Reactor Core Design of High-Temperature Gas-Cooled Reactors Part 3: Loss of Pressure Through Friction in Pebble Bed Cores Germany.
- [10] H. Kuerten, J. Raasch, H. Rumpf, Beschleunigung eines kugelförmigen Feststoffteilchens im Stromungsfld konstanter Geschwindigkeit, Chem. Ing. Tech. 38 (1966).
- [11] K.K. Kuo, C.C. Nydegger, Flow resistance measurements and correlation in a packed bed of WC 870 ball propellants, J. Ballistics 2 (1978) 1-25.
- [12] J.S. Lee, K. Ogawa, Pressure drop through packed bed, J. CHEM Eng. Jpn. 27 (1994) 691-693.
- [13] F. Macdonald, M.S. El-Sayed, K. Mow, F.A.L. Dullien, Flow through porous media-the Ergun equation revisited, Ind. Eng Chem. Fundam. 18 (1979) 199-208.
- [14] A. Montillet, E. Akkari, K. Comiti, About a correlating equation for predicting pressure drops through packed beds of spheres in a large range of Reynolds number, Chem. Eng. Process. Process Intensif. 46 (2007) 329-333.
- [15] A.R. Morcom, Fluid flow through granular materials, Joint Meeting of the Institution of Chemical Engineers with the Chemical Engineering Group, Apartments of the Geological Society, Burlington House, London, 1946, 30-43.
- [16] E. Özahi, M. Gundogdu, M.Ö. Çarpinlioglu, A modification on Ergun's correlation for use in cylindrical packed beds with non-spherical particles, Adv. Powder Technol. 19 (2008)369-381.

- [17] H.E. Rose, On the resistance coefficient- Reynolds number relationship for fluid flow through beds of granular materials, Proc. Inst. Mech. Eng. 153 (1945) 154-161.
- [18] H.E. Rose, A.M.A. Rizk, Further researches in fluid flow through beds of granular material, Proc. Inst. Mech. Eng. 160 (1949) 493-503.
- [19] C.A. Wentz, G. Thodos, Pressure drops in the flow of gases through packed and distended beds of spherical particles, AIChE J. 9 (1936) 81-84
- [20] J. Yu, M.Zhang, W. Fan, Y. Zhou, G.Zhao, Study on performance of the ball packed- bed regenerator: experiments and simulation, Appl. Therm. Eng. 11 (2002) 641-651. Yu et al

APÉNDICE D.

PARTICIPACIÓN EN CONGRESOS

D.1. Presentación en la modalidad Oral en la LVI Convención Nacional IMIQ, octubre 2016

Caída de Presión en Lechos Empacados con Diámetro Interno de Tubo a Diámetro Promedio de Partícula bajo a Temperatura por Encima de la Ambiente

R. Quintana-Solórzano*, J. Sánchez-Valente, H. Armendáriz-Herrera

Instituto Mexicano del Petróleo, Procesos de Transformación, Ciudad de México, 07730, MÉXICO
Tel. ++(55) 9175 8530, *e-mail: rquintana@imp.mx

Resumen

Se reportan los resultados de ensayos realizados para medir experimentalmente la caída de presión (ΔP) en un tubo empacado con materiales de morfologías, tamaños y densidades variadas, a temperatura por encima de la ambiente, en el régimen de flujo transición/turbulento en Re_p y en el régimen de efecto de pared en d_t/d_p . Para tal fin, se hizo pasar, a través del lecho empacado, aire comprimido a diferentes caudales de alimentación (1,000 - 6,000 slph), ajustando la temperatura entre 25 y 400 °C, y la presión de entrada de 2.5 a 3.0 kg/cm². Las propiedades de las partículas, i.e., la densidad empacada, la densidad de partícula, el diámetro equivalente de partícula (d_p) y la fracción hueca (ϵ), se determinaron experimentalmente a partir de una muestra representativa de cada material. Se obtuvieron valores de ϵ entre 0.38 y 0.61, con una relación entre el diámetro interno del tubo y el diámetro promedio de las partículas (d_t/d_p) pequeña, de 3 a 6.

Los resultados experimentales confirman la dependencia de la caída de presión con el flujo volumétrico alimentado, la presión y la temperatura, así como la partícula, es decir, la morfología, el tamaño y la fracción hueca. En todos los ensayos, la ΔP se incrementa con el flujo de volumétrico de alimentación y la temperatura, y decrece con la presión. La velocidad superficial del fluido aumenta con el flujo volumétrico alimentado y la temperatura lo cual tiene un efecto positivo en la ΔP . A una presión y temperatura definidas, la ΔP se incrementa de manera no lineal con el flujo volumétrico de alimentación, mientras que a una presión y flujos determinados, la ΔP se incrementa de manera casi lineal con la temperatura. La ΔP también se incrementa con el número de Reynolds de partícula (Re_p). Entre los materiales investigados, aquéllos con mayor tamaño de partícula (d_p), menor relación de diámetro de tubo a diámetro de partícula (d_t/d_p) y mayor porosidad de lecho asociada, exhiben una menor caída de presión a igualdad de condiciones de flujo volumétrico de alimentación y temperatura. Al contrastar algunos de nuestros resultados experimentales con valores obtenidos a través de correlaciones reportadas en la literatura, se observó que, en general, dichas expresiones no son lo suficientemente precisas para ser aplicadas a partículas con morfologías y tamaños diversos, a las condiciones de Re_p y d_t/d_p de los ensayos considerados en este trabajo. Las predicciones son particularmente imprecisas para los materiales con menor d_t/d_p , independientemente de las condiciones de temperatura.

Palabras claves: caída de presión, lechos empacados, temperatura, presión, flujo, diámetro equivalente de partícula, número de Reynolds de partícula, velocidad superficial.

1 Referencias

- [1] S. Afandizadeh, E. A. Foumeny, *Appl. Thermal Eng.*, 21 (2001) 669.
- [2] K.G. Allen, T.W. von Backström, D.G. Kröger, *Powder Technology*, 246 (2013) 590.
- [3] *Modeling of Chemical Kinetics and Reactor Design*, A. Kayode Coker, Gulf Professional Publishing, U.S.A. 2001.
- [4] D. Nemeč, J. Levec. *Chem. Eng. Sci.*, 60 (2005) 6947.
- [5] I. Lindholm. *Nucl. Eng. Des.*, 236 (2006) 2060.
- [6] S. Liu, A. Afacan, J.H. Masliyah. *Chem. Eng. Sci.*, 49 - 21(1994) 3565.
- [7] F. Macdonald, M.S. El-Sayed, K. Mow, F.A.L Dullie, *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 18 (1979) 199.
- [8] F. A. L. Dullien. *Chem. Eng. J.*, 10 (1975) 1.
- [9] L. Li, W. Ma. *Springer Science*, 1 (2011) 35.
- [10] L. D. Harrison, K. M. Brunner, W. C. Hecker. *AIChE Journal*, 59 - 3 (2013) 703.
- [11] S. Ergun, *Chem. Eng. Prog.*, 45 (1952) 1179.
- [12] N. Cheng. *Powder Tech.*, 30 (2011) 1-7.
- [13] T. Radojica, N. Kaliderovic. *AIChE*, 21 – 3 (2014) 419.
- [14] J. A. Tallmadge. *AIChE J.*, 16 (1970)1092-1093.
- [15] Liu S, Afacan A, Masliyah J. *Chem. Eng. Sci.*, 49 (1994) 3565-3586.
- [16] B. Einfeld, K. Schnitzlein. *Chem. Eng. Sci.*, 56 (2001) 4321-4329.
- [17] W. Reichelt, *Chem. Eng. Tech.* 44 (1972) 1068.

2 Agradecimientos

Al personal operativo de plantas piloto, Ings. J. F. Trejo-Reyes, O. Labrada-Montalvo y L. M. García Moreno, y a M. L. Trejo-Reyes, tesista.

D.2. Presentación en la modalidad Póster en el Congreso Internacional ISAHOF, junio 2017

International Symposium on Advances in Hydroprocessing of Oil Fractions (ISAHOF 2017)
 México City, June 4th-8th, 2017 (J. Ancheyta and M. Al-Dahhan, Editors)

Pressure Drop in a industrial fixed-bed reactor with wall effects: influence of particle configuration and process conditions

R. Quintana-Solórzano*, M. L. Trejo-Reyes, H. Armendáriz-Herrera, Jaime S. Valente

Instituto Mexicano del Petróleo, Eje Central Lázaro Cárdenas Norte 152, C.P. 07730, Ciudad de México, 07730, MÉXICO

(*) corresponding author: rquintana@imp.mx

Keywords: pressure drop; fixed bed; low tube to particle diameter; temperature; correlations

1. Introduction

Due to simplicity, well understanding and operation costs, externally cooled multi-tubular fixed-bed reactors (ExMTFBR) are yet preferred over other reactor configurations to perform highly exothermic catalytic fluid-solid reactions. To reduce the intra-reactor radial heat transfer gradients and to improve the ratio between heat-exchange surface area as well as the reactor volume, ExMTFBR comprises long tubes with a low internal diameter (d_i) [1]. Aimed to maintain the bed pressure drop (ΔP) within acceptable levels, the size and morphology of the particles to be packed have to be carefully defined, relative large particles leading to a low tube diameter to particle diameter (d_i/d_p) ΔP being recommended [2]. Using large particle increases the bed void distribution in radial and axial directions yielding non-uniform fluid velocity profiles. From a technical and economic point of view, an accurate quantification of the ΔP in fixed-bed reactors is of a great importance to define investment and operating costs relative to the pumping and compression equipment dimensioning, and to detect reactor malfunctioning during the operation. For prediction purposes, Ergun's correlation is the most used expression for ΔP , nonetheless, it strictly holds for the so-called bulk region, i.e., at $d_i/d_p > 20$, for a bed void fraction below 0.55 and within the turbulent Re_p flow regime (> 300) [3]. Though improved correlations to predict the ΔP in packed beds are found in the literature, their validity at demanding scenarios comprising the combination of high temperature, small d_i/d_p ratios, non-spherical particles usage and large ranges of Re_p , is still to be verified.

This work aims to generate experimental pressure data in the high wall effect region ($d_i/d_p < 6$), packing the bed with commercial catalysts with spherical and non-spherical shapes. Temperature was varied from 25 to 400 °C, inlet pressure was adjusted from 2.5 kg/cm² – 3.0 kg/cm² and gas inlet flow rate ranged 1,000-6,000 slph. Such packed bed configuration and process conditions are encountered in the operation of multi-tubular fixed bed reactors applied to exothermic heterogeneous chemical reactions. In a second stage, the ability of a selected set state-of-art correlations to reproduce our experimental data is investigated.

2. Experimental

For the experiments, a 2.0 m length, 2.118 cm internal diameter 304 stainless steel-made tube was used. Fed air was dosified with Brooks 5850i series thermal mass flow controllers. A back-pressure regulator valve was installed at the outlet of the packed tube allowed to vary the inlet pressure. To monitor the pressure at the inlet and the exit of the packed tube, two pressure transmitter were correspondingly installed. A low-range differential pressure cell was also connected to the packed tube for fine ΔP measurements. The packed tube was provided with five independent axially equidistant heating zones aimed to supply heat to the packed tube for the high temperature experiments. The tube was packed with four different commercial catalysts, to wit, an 1/8 inch diameter sphere, a cylindrical pellet a hollow tetra-lobule pellet, and an 1/4 inch diameter sphere, denoted respectively as CAT-A, CAT-B, CAT-C and CAT-D. Particle-by-particle measurements were done to determine average dimensions, densities, sphericity and associated void fraction. Pressure drop experiments were performed at the following combinations of inlet pressure and temperature: 25 °C -2.5 kg/cm², 200°C -2.5 kg/cm², 300°C – 2.5 kg/cm², 400°C – 2.5 kg/cm², and 400°C –3.0 kg/cm²; at each of these combination varying the inlet flow rate of air from 186 to 1,639 std cm³/s to adjust the fluid superficial velocity and Re_p .

3. Results and discussion

Table 1 displays a sample of the particles characterization results for catalysts CAT-A to CAT-D. The d_i/d_p varied from 3.2 to 5.8, CAT-D being composed of the bulkiest particles. The average bed void fraction (ϵ) of the different materials varied between 0.38 and 0.61, CAT-C/CAT-D being the solids with the highest values (0.61, 0.56). The ABD ranged 406 - 1,331 kg/m³, CAT-C exhibiting the lowest value and CAT-A the largest. Figure 1 contains representative experimental values of pressure drop, collected from 25 to 400 °C at 2.5 kg/cm², as a

function of both superficial velocity and temperature for samples CAT-A and CAT-D. The bed packed with CAT-A displayed the highest ΔP and CAT-D the lowest, the latter corresponding to the material with the largest $d_i/d_{a,p}$ (5.8) and the second largest void fraction (0.58). At identical temperature and flow conditions, CAT-A causes nearly 3.5 more ΔP compared with CAT-D. ΔP increased non-linearly with the superficial velocity and practically linearly with temperature with a positive slope, which augmented as the value of superficial velocity increased. It is also noted that the catalyst with the lowest bed void fraction, i.e., CAT-A with $\epsilon = 0.38$, was more sensitive to temperature increments. Aside, a higher pressure operation leads to a lower relative pressure drop.

Table 1. Experimentally determined average properties of the catalysts used in the pressure drop tests

	CAT-A	CAT-B	CAT-C	CAT-D
$d_{a,p}$, mm	3.6	5.2	5.7	6.6
ABD, kg/m ³	1,331	960	406	658
ϵ	0.38	0.45	0.61	0.56
$d_i/d_{a,p}$	5.8	4.1	3.7	3.2

After confronting our experimental ΔP data with respective counterparts computed via a set of state-of-art correlations (e.g., Ergun's, Liu-Ergun's, Einfeld-Schnitzlein's, Harrison's) the detected deviations are strongly dominated by the particle configuration. Independently of the correlation, such deviations were particularly high when $d_i/d_{a,p} < 5$ (64 % of overall relative error – ORE), became even more evident for non-spherical shapes (82 % of ORE) and did not link to process (e.g., temperature) conditions. In order to have suitable correlation for simulation purposes, some of them were refitted via regression using our experimental data. Since using all the ΔP data (catalyst, temperature, pressure and flow rate) in the regression analysis did not lead to satisfactory results, a set of parameters per correlation and catalyst had to be estimated. In other words, correlation's parameters were catalyst dependent. Using the referred correlations, ORE values decreased substantially even for the particles with large $d_i/d_{a,p}$ and ϵ , 4.0 % being the largest value corresponding to Harrison's over CAT-B.

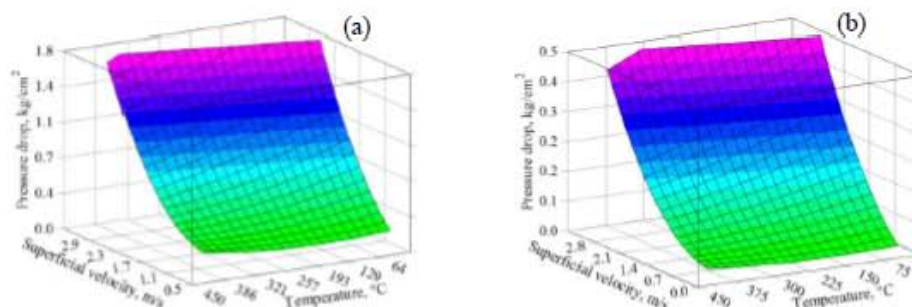


Fig. 1. 3D ΔP versus superf. velocity and temperature at 25-400 °C and 2.5 kg/cm². (a) CAT A and (b) CAT-D.

Conclusions

Operating conditions may be tuned to partially control pressure drop in packed-beds, however, the catalyst's configuration has the most important impact for pressure drop control, in particular, the usage of particles with a low $d_i/d_{a,p} < 5$ with relatively large bed void fractions ($\epsilon > 0.55$). Temperature effect on pressured drop was particle dependent particularly influenced by bed void fraction thus associated to a gas expansion effect. State-of-art correlation, even those developed for accounting for wall-effect, failed to reproduce our experimental data over particles with $d_i/d_{a,p} < 5$ and $\epsilon > 0.55$. Some of these state-of-the-art correlations were refitted via regression using our experimental data leading to parameters that were, clearly, particle dependent.

References

- [1] Chem. Reactor Anal. and Des. 3rd Ed. G. F. Froment, K. B. Bischoff, J. De Wilde, John Wiley & Sons Inc. 2011.
- [2] Modeling of Chemical Kinetics and Reactor Design, A. Kayode Coker, Gulf Professional Publishing, U.S.A. 2001
- [3] K.G. Allen, T.W. von Backström, D.G. Kröger, Powder Technology, 246 (2013) 590.

APÉNDICE E.

DERECHO DE AUTOR

Título de la Obra:

Metodología para la Medición Experimental de la Caída de Presión en Lechos Empacados a Temperaturas por Encima de la Ambiente en Flujo de Aire

Autores:

Roberto Quintana Solórzano⁽¹⁾, Jaime Sánchez Valente⁽¹⁾, Héctor Armendariz Herrera⁽¹⁾, Lazaro Moisés García Moreno⁽²⁾, José Francisco Trejo Reyes⁽²⁾, Oscar Labrada Montalvo⁽²⁾.

Tipo de Obra:

Literaria

Objetivo:

Medir en forma experimental la caída de presión en un tubo con una relación diámetro interno a longitud a (d_{int}/L) pequeña, del orden de 100, empacado con catalizadores con morfologías y tamaños diversos con una relación entre el diámetro interno del tubo y el diámetro promedio de las partículas ($d_{int}/d_{e,part}$) menor a 6.0, utilizando condiciones variables de flujo volumétrico de alimentación (1000 - 6000 slph de aire comprimido), temperatura (ambiente - 400 °C) y presión (2.5 - 3.0 kg/cm²) man.

Datos del (los) contacto(s):

Dr. Roberto Quintana Solórzano e-mail: rquintana@imp.mx, Tel. 9175 8530

Dr. Jaime Sánchez Valente e-mail: jsanchez@imp.mx, Tel. 9175 8413

Proyecto:

D.61010

Dirección, Gerencia y/o Equivalente de procedencia:

Instituto Mexicano del Petróleo

⁽¹⁾ Dirección de Transformación de Hidrocarburos, Gerencia de Desarrollo de Materiales y Productos Químicos.

⁽²⁾ Dirección de Planeación de la Operación, Coordinación General de Laboratorios


INSTITUTO MEXICANO DEL PETRÓLEO

Gerencia de Gestión del Conocimiento

OTRDA-071-2016

3 de noviembre de 2016

DR. JAIME SANCHEZ VALENTE

Gerente de Materiales y Desarrollo de Productos Químicos

Por este conducto, envío el certificado de Derechos de autor que ha sido **OTORGADO** por el Instituto Nacional del Derecho de Autor, y que corresponden a trabajo desarrollado por personal del área bajo su digno cargo.

Los datos relevantes del certificado son los siguientes:

D-A	TITULO	TIPO DE OBRA
2965	METODOLOGIA PARA LA MEDICIÓN EXPERIMENTAL DE LA CAIDA DE PRESION EN LECHOS EMPACADOS A TEMPERATURAS POR ENCIMA DE LA AMBIENTE EN FLUJO DE AIRE.	LITERARIA

Sin otro particular, aprovecho esta oportunidad para enviarle un cordial saludo.

Atentamente

MTRO. SALVADOR VELAZCO ARELLANO

 Líder de especialidad en Inteligencia Tecnológica y
 Protección de la Producción Intelectual del IMP.

C/Anexos. Certificado de Registro

Eje Central Lázaro Cárdenas Norte 152, San Bartolo Atepehuacan, Gustavo A. Madero,
 Distrito Federal, C.P. 07730, México. Tel. 9175 3000 / 9175 6000
 www.imp.mx

CERTIFICADO

Registro Público del Derecho de Autor

0-2-2765

Para los efectos de los artículos 13, 162, 163 fracción I, 164 fracción I, 168, 169, 209 fracción III y demás relativos de la Ley Federal del Derecho de Autor, se hace constar que la **OBRA** cuyas especificaciones aparecen a continuación, ha quedado inscrita en el Registro Público del Derecho de Autor, con los siguientes datos:

AUTORES: ARMENDARIZ HERRERA HECTOR
GARCIA MORENO LAZARO MOISES
LABRADA MONTALVO OSCAR MANUEL
QUINTANA SOLORZANO ROBERTO
SANCHEZ VALENTE JAIME
TREJO REYES JOSE FRANCISCO

TITULO: METODOLOGIA PARA LA MEDICION EXPERIMENTAL DE LA CAIDA DE PRESION EN LECHOS EMPACADOS A TEMPERATURAS POR ENCIMA DE LA AMBIENTE EN FLUJO DE AIRE

RAMA: LITERARIA

TITULAR: INSTITUTO MEXICANO DEL PETROLEO (CON FUNDAMENTO EN EL ARTICULO 83 DE LA L.F.D.A. EN RELACION CON EL ARTICULO 46 DEL R.L.F.D.A.)

Con fundamento en lo establecido por el artículo 14 fracción I de la Ley Federal del Derecho de Autor, el presente certificado no ampara: las ideas en sí mismas, las fórmulas, soluciones, conceptos, métodos, sistemas, principios, descubrimientos, procesos e invenciones de cualquier tipo.

Con fundamento en lo establecido por el artículo 3° de la Ley Federal del Derecho de Autor, el presente certificado ampara única y exclusivamente la obra original literaria.

Con fundamento en lo establecido por el artículo 168 de la Ley Federal del Derecho de Autor, las inscripciones en el registro establecen la presunción de ser ciertos los hechos y actos que en ellas consten, salvo prueba en contrario. Toda inscripción deja a salvo los derechos de terceros. Si surge controversia, los efectos de la inscripción quedarán suspendidos en tanto se pronuncie resolución firme por autoridad competente.

Con fundamento en los artículos 2, 208, 209 fracción III y 211 de la Ley Federal del Derecho de Autor; artículos 64, 103 fracción IV y 104 del Reglamento de la Ley Federal del Derecho de Autor; artículos 1, 3 fracción I, 4, 8 fracción I y 9 fracción I del Reglamento Interior del Instituto Nacional del Derecho de Autor, se expide el presente certificado.

Número de Registro: 03-2016-100312126600-01

México D.F., a 13 de octubre de 2016

EL DIRECTOR DEL REGISTRO PÚBLICO DEL DERECHO DE AUTOR

JESUS PARETS GOMEZ



SECRETARÍA DE CULTURA
INSTITUTO NACIONAL DEL
DERECHO DE AUTOR
DIRECCIÓN DEL REGISTRO
PÚBLICO
DEL DERECHO DE AUTOR

CULTURA
SECRETARÍA DE CULTURA

