

**E.T.S. D'ENGINYERS INDUSTRIALS DE BARCELONA**

*Departament d'enginyeria química de la UPC*

**CINÉTICA, EQUILIBRIO Y  
TRANSPORTE DE MATERIA EN  
LA HIDRATACIÓN CATALÍTICA  
DIRECTA DE isoBUTENO A  
*ter*-BUTANOL**

Autor: Enrique Velo García  
Director: Francisco Recasens Baxarías

Barcelona, julio de 1992

---

## 5 TRANSFERENCIA DE MATERIA EN UN LECHO FIJO ESCURRIDO.

---

En las torres de absorción, en las que un flujo bifásico gas-líquido circula a través de un lecho fijo, la superficie específica de contacto entre ambas fases es muy elevada, favoreciendo la velocidad de transferencia de materia. Si se sustituye el sólido inerte por un catalizador poroso, el resultado es un reactor catalítico multifásico. Cuando gas y líquido circulan en equicorriente descendente se conoce como reactor de lecho fijo escurrido (RLFE o *trickle-bed reactor*).

Sus principales aplicaciones se encuentran en aquellos procesos en los que uno o varios gases reaccionan, sobre un catalizador sólido, con compuestos poco volátiles. Así, son bien conocidas sus aplicaciones en el tratamiento de fracciones de petróleo, oxidación o hidrogenación de compuestos orgánicos, tratamiento de aguas residuales y procesos de síntesis diversos (Satterfield, 1975; Herskowitz y Smith, 1983; Ramachandran y Chaudhari, 1983; Ternan y Packwood, 1986).

### 5.1 Revisión Bibliográfica.

Existen en la literatura, excelentes descripciones sobre los principios y peculiaridades de los RLFE (Ramachandran y Chaudhari, 1983; Ng y Chu, 1987). Aunque algunos de los trabajos sobre RLFE son anteriores a 1970, es durante la década de 1970 a 1979 cuando se aborda su estudio de forma sistemática y se caracterizan sus parámetros fundamentales. Satterfield (1975), Goto *et al.* (1977) y Herskowitz y Smith (1983) resumen los progresos hechos durante este período. A pesar de los intensos estudios realizados, quedan algunos puntos oscuros, por lo que el campo para la investigación sigue abierto (Ng y Chu, 1987). El conocimiento que se tiene hasta ahora sobre los RLFE es bastante empírico, siendo necesaria una mayor aproximación a la modelización

fundamental de los diferentes fenómenos, principalmente fluido dinámicos, involucrados (Ng, 1986; Ramachandran *et al.*, 1986; Funk *et al.*, 1990, 1991).

El estudio realizado en la presente tesis, se centra en los fenómenos de transferencia de materia. No obstante, existen otros aspectos del comportamiento de los RLFE que están directamente relacionados: régimen de flujo, pérdida de carga, retención y distribución del líquido y mojado parcial del catalizador. La revisión bibliográfica se extiende, pues, a estos aspectos hidrodinámicos aunque no de forma exhaustiva.

### 5.1.1 Características Hidrodinámicas.

#### 5.1.1.1 Regímenes de Flujo.

Al igual que ocurre en el flujo bifásico en tuberías, dependiendo de los caudales de gas y líquido, varios son los regímenes de flujo que pueden darse en un RLFE. Estos fueron inicialmente definidos por Larkins *et al.* (1961), Weekman y Myers (1964) y Sato *et al.* (1973a). Para representar las fronteras entre regímenes, se han propuesto diversos mapas fluido-dinámicos. Las diferencias entre unos y otros se fundamentan en: las coordenadas utilizadas para representar el diagrama de flujo, el número de regímenes establecido y el método seguido para establecer las fronteras entre éstos.

Charpentier y Favier (1975), utilizando las coordenadas de Baker (1954), establecen dos mapas: uno para sistemas espumantes y otro para sistemas no espumantes. Caracterizan la frontera entre el flujo pulsante y el flujo escurrido por observación de las fluctuaciones de la presión. Estudios posteriores (Specchia y Baldi, 1977; Tosun, 1984a) incluyen pequeñas modificaciones sobre este mismo diagrama. Chou *et al.* (1977), sin embargo, postulan que las coordenadas de Baker no son suficientes para establecer las fronteras entre los diferentes regímenes de flujo.

Fukushima y Kusaka (1977a,b) estudian los coeficientes de transferencia de materia lado líquido,  $k_L a$ , y el área específica de la interfase gas-líquido en un amplio rango de velocidades. Definen varios tipos de flujo en los que se

cumple que  $k_L a$  es proporcional al producto  $u_L^n \cdot u_G^m$ , siendo  $m$  y  $n$  diferentes para cada régimen. Establecen las fronteras entre regímenes en los puntos de corte de las diferentes correlaciones obtenidas. Aunque definen un mayor número de regímenes, afirman que existe una buena concordancia entre sus resultados y los de otros autores.

A partir de datos recopilados de otras fuentes y de los suyos propios, Talmor (1977) propone un mapa diferente utilizando los números adimensionales de Reynolds, Froude y Weber. De esta forma, tiene en cuenta la relación entre las fuerzas de inercia, de gravedad, de superficie y viscosas.

Todos estos mapas, basados en observaciones empíricas, tienen la desventaja de ser sólo aplicables a sistemas semejantes a los que sirvieron para su desarrollo. Con el fin de obtener un mapa generalizado, Ng (1986) propone un modelo teórico capaz de predecir las fronteras entre regímenes. Aunque su modelo es sólo una primera aproximación, es interesante destacar la sugerencia hecha por Ng (1986) en cuanto a que la presión puede tener un efecto importante desplazando las fronteras entre flujos. Esto ha sido experimentalmente confirmado por Wammes *et al.* (1990, 1991) mediante la determinación de la retención de líquido a presiones de hasta 6 MPa. Wammes *et al.* (1991) afirman que no puede hablarse de régimen de baja interacción entre gas y líquido para presiones por encima de 0.3 MPa.

Todo lo expuesto sugiere la necesidad de una modelización más elaborada para describir el complejo comportamiento fluido dinámico de los reactores de lecho fijo escurrido (Melli y Scriven, 1991).

### 5.1.1.2 Pérdida de Carga.

La caída de presión del flujo bifásico,  $\delta_{GL}$ , suele utilizarse para correlacionar otros parámetros como la retención dinámica de líquido y los coeficientes de transferencia de materia. De hecho, todos ellos están relacionados a través de la energía disipada por el flujo bifásico en su paso a través del lecho.

La resolución de las ecuaciones de flujo es en extremo compleja, por lo

que suelen emplearse modelos empíricos o semi-empíricos. La tabla 5.1 muestra algunas de las correlaciones propuestas para sistemas no espumantes. Ramachandran y Chaudhari (1983) comparan las correlaciones de las filas 1, 2, 4 y 5 para el sistema aire-agua en un reactor de 0.2 m de diámetro con partículas de 3 mm. Observan que los resultados coinciden satisfactoriamente (+/- 20%) excepto para la correlación de Turpin y Huntington (1967). La mayoría de las correlaciones no tienen en cuenta cambio alguno relativo a los diferentes regímenes de flujo. Midoux *et al.* (1976) afirman que su correlación es válida en todo el mapa hidrodinámico. Specchia y Baldi (1977), en cambio, dan dos correlaciones separadas. Para el régimen de baja interacción, Hulton y Leung (1974), Specchia y Baldi (1977) y Novak y Mateer (1986) proponen utilizar la correlación de Ergun (1952) modificada (ver tabla 5.1), donde la porosidad del lecho se sustituye por la fracción de lecho ocupada por el gas. La correlación de Sáez y Carbonell (1985), posteriormente mejorada por Levec *et al.* (1986), sigue el mismo principio de la ecuación de Ergun pero los términos de inercia y viscoso están expresados como función de los números adimensionales de Reynolds y Galileo modificados. Los parámetros  $A$  y  $B$  deben ajustarse para cada sistema o bien, a falta de datos, pueden tomarse  $A = 180$ ,  $B = 1.8$ .

Existe evidencia (Kan y Greenfield, 1978; Christensen *et al.*, 1986; Levec *et al.* 1988) de que, para la zona de baja interacción, el valor observado de la pérdida de carga depende de la historia fluido-dinámica del lecho. El máximo se obtiene cuando el lecho ha sido previamente inundado. Las correlaciones de las filas 8,9 y 10 han sido obtenidas en estas condiciones. Clements y Schmidt (1980a) no observan histéresis en el régimen pulsante para partículas de pequeño diámetro. Este fenómeno se discutirá más adelante en relación a los resultados obtenidos al medir el coeficiente de transferencia de materia lado líquido. La existencia de histéresis en la zona de baja interacción ha sido explicada a partir de los datos de retención de líquido que se comentan a continuación. Recientemente, Chu *et al.* (1989) han propuesto un modelo hidrodinámico capaz de predecir este comportamiento.

Tabla 5.1 Correlaciones para la pérdida de carga por fricción.

Autores	Parámetros	Correlación	Validez
1 Larkins <i>et al.</i> (1961)	$\delta = \frac{150 (1 - \epsilon_B)^2 u \mu}{\epsilon_B^3 d_p^2} + \frac{1.75 (1 - \epsilon_B) u^2 \rho}{\epsilon_B^3 d_p}$	$\log \frac{\delta_{GL}}{\delta_G + \delta_L} = \frac{0.416}{0.666 + (\log \chi)^2}$	0.05 < $\chi$ < 30
2 Sato <i>et al.</i> (1973a)	$\chi = (\delta_L / \delta_G)^{0.5}$	$(\delta_{GL} / \delta_L)^{0.5} = 1.3 + 1.85 \chi^{-0.85}$	0.1 < $\chi$ < 20
3 Midoux <i>et al.</i> (1976)	$Re_L = u_L \rho_L d_p / \mu_L$	$(\delta_{GL} / \delta_L)^{0.5} = 1 + 1/\chi + 1.14/\chi^{0.54}$	0.1 < $\chi$ < 80
4 Clements-Schmidt (1976, 1980a)	$Re_G = u_G \rho_G d_p / \mu_G$	$\frac{\delta_{GL}}{\delta_G} = 1507 \mu_L d_p \frac{\epsilon_B}{1 - \epsilon_B} \left[ \frac{Re_G We_G}{Re_L} \right]^{-1/3}$	flujo pulsante
5 Turpin y Huntington (1967)	$Z = Re_G^{1.161} / Re_L^{0.767}$ $\ln f_{GL} = 7.96 - 1.34 \ln Z + 0.082 (\ln Z)^2 + 0.0078 (\ln Z)^3$	$\delta_{GL} = 2 f_{GL} u_G^2 \rho_G / d_p$	
6 Specchia y Baldi (1977)	$\ln f_{GL} = 7.82 - 1.3 \ln(Z \psi^{1.1}) - 0.0573 [\ln(Z / \psi^{1.1})]^2$	$\delta_{GL} = 2 f_{GL} u_G^2 \rho_G / d_p$	alta interacción
7 id.	$\epsilon_G = \epsilon_B - \epsilon_{LS} - \epsilon_{LD}$ <p><math>C_1, C_2</math> dependen del tamaño y forma del sólido</p>	$\delta_{GL} = \frac{C_1 (1 - \epsilon_G)^2 \mu_G u_G + C_2 (1 - \epsilon_G) \rho_G u_G^2}{\epsilon_G^3}$	baja interacción

Tabla 5.1 Correlaciones para la pérdida de carga por fricción (continuación).

Autores	Parámetros	Correlación	Validez
8 Novak y Mateer (1986)	$\epsilon_G = \epsilon_B - \epsilon_{LS} - \epsilon_{LD}$ $d_p = 6/a_p$	$\delta_{GL} = \frac{150(1 - \epsilon_G)^2 \mu_G \mu_G}{d_p^2 \epsilon_G} + \frac{1.75(1 - \epsilon_G) \rho_G \mu_G^2}{d_p^3 \epsilon_G} \quad (1)$	(1)
9 Sáez y Carbonell (1985)	$n = 0.48$	$\delta_{GL} = \left[ A \frac{Re_G^*}{Ga_G^*} + B \frac{Re_G^{*2}}{Ga_G^*} \right] \frac{\rho_G g}{(\epsilon_G / \epsilon_B)^n} \quad (1)$	(1)
10 Levec <i>et al.</i> (1986)	$n$ depende de $Re_G^*$ $3.6 < n < 7.5$		(1) $11 < Re_G^* < 200$
	$Ga^* = \frac{g d_c^3 \rho^2 \epsilon_B}{(1 - \epsilon_B)^3 \mu^2}$		
	$Re^* = \frac{\rho u d_c}{(1 - \epsilon_B) \mu}$		
11 Tosun (1984b)	$\chi = (\delta_L / \delta_G)^{0.5}$	$(\delta_{GL} / \delta_L)^{0.5} = 1 + 1/\chi + 1.424/\chi^{0.576}$	$0.4 < \chi < 60$

(1) Flujo Escurreído con inundación previa del lecho

### 5.1.1.3 Retención de Líquido.

En un lecho fijo por el que circulan gas y líquido en equicorriente descendente, la fracción del volumen del reactor no ocupada por las partículas ( $\epsilon_B$ ) se reparte entre ambas fases fluidas de forma que  $\epsilon_B = \epsilon_G + \epsilon_L$ , siendo  $\epsilon_L$  la retención específica externa de líquido ( $\text{m}^3$  de líquido /  $\text{m}^3$  de lecho). Si el sólido es poroso, el líquido que pueda contener en su interior es la retención específica interna, cuyo valor máximo es  $[\epsilon_p (1-\epsilon_B)]$  (Goto y Smith, 1975a), siendo  $\epsilon_p$  la porosidad de las partículas. Si se detiene repentinamente el flujo, una parte del líquido que fluye en ese momento a través del lecho ( $\epsilon_L V$ ) permanecerá adherido a las partículas ( $\epsilon_{LS} V$ ), mientras que el resto drenará libremente ( $\epsilon_{LD} V$ ).

El motivo para distinguir entre retención dinámica ( $\epsilon_{LD}$ ) y estática ( $\epsilon_{LS}$ ) se fundamenta en la posibilidad de correlacionar cada una de ellas a partir de parámetros diferentes (Ramachandran y Chaudhari, 1983). Mientras la retención dinámica depende de las condiciones de operación (velocidades de gas y líquido y tamaño y forma de las partículas), la retención estática depende de las propiedades físicas del líquido y del sólido. De acuerdo con Schubert *et al.* (1986) tanto la retención dinámica como la estática juegan un papel importante en la compleja interacción entre los fenómenos hidro-dinámicos y la transferencia de materia en una torre de relleno.

La existencia de un gran número de correlaciones (tabla 5.2) incluyendo muy diferentes parámetros, sugiere que no es fácil predecir el comportamiento fluido-dinámico de los RLFE. Otake y Okada (1953) propusieron correlacionar  $\epsilon_{LD}$  a partir de los números de Reynolds y Galileo. Los mismos números adimensionales han sido utilizados por Specchia y Baldi (1977), Kohler y Richarz (1985), Sáez y Carbonell (1985) y Wammes *et al.* (1991), en sus respectivas correlaciones. El número de Galileo modificado,  $Ga^*$ , propuesto por Specchia y Baldi (1977) (ver tabla 5.2) tiene en cuenta la relación entre fuerzas viscosas y de gravedad.

Tabla 5.2 Correlaciones para la retención de líquido.

Autores	Correlación	Rango y Parámetros	Partículas ( $d_p$ en mm)
Otake y Okada (1953)	$\epsilon_{LD} = 1.25 Re_L^{0.676} Ga^{-0.44} a_p(1 - \epsilon_B) d_p$	$10 < Re_L < 2000$	AR MB
Mersmann (1972)	$\frac{\epsilon_{LS}}{\epsilon_B} = 0.037 B_n^n$	$B_n = \rho_L g \sigma / a_p^2$ $n = -0.07; B_n < 1$ $n = -0.65; B_n > 1$	PV $0.57 \leq d_p \leq 1.13$
Satterfield y Way (1972)	$\epsilon_{LD} = A u_L^{1/3} (100\mu)^{1/4}$	<i>A depende del tipo de partícula</i> $0.02 < Re_L < 7.1; 0 < u_G < 0.023$	
Sato <i>et al.</i> (1973)	$\frac{\epsilon_L}{\epsilon_B} = 0.185 a_t^{1/3} \chi^{0.22}$	$a_t = 6(1 - \epsilon_B) / d_p^*$ $d_p^* = \frac{d_p}{1 + \frac{4d_p}{6d_T(1 - \epsilon_B)}}$	EV $0.6 < d_p < 24.3$
Midoux <i>et al.</i> (1976)	$\frac{\epsilon_L}{\epsilon_B} = \frac{0.66 \chi^{0.81}}{1 + 0.66 \chi^{0.81}}$	$0.1 < \chi < 80$ <i>B.I., A.I. no espumantes</i> <i>B.I. espumantes</i>	EV $d_p = 3$ CC $18.6 \times 4$ CC $1.4 \times 5$
Specchia y Baldi (1977)	$\frac{\epsilon_{LD}}{\epsilon_B} = 3.86 Re_L^{0.545} (Ga^*)^{-0.42} \left[ \frac{a_p d_p}{\epsilon_B} \right]^{0.65}$	$3 < Re_L < 470$ $Ga^* = d_p^3 \rho_L (g \rho_L + \delta_{GL}) / \mu_L^2$ <i>B.I., espumantes y no esp.</i>	EV $d_p = 6$
	$\frac{\epsilon_{LD}}{\epsilon_B} = 0.125 \left[ \frac{Z}{\psi^{1.1}} \right]^{-0.312} \left[ \frac{a_p d_p}{\epsilon_B} \right]^{0.65}$	$1 < Z / \psi^{1.1} < 500$ <i>A.I., no espumantes</i>	CV 2.7 y 5.4

Tabla 5.2 Correlaciones para la retención de líquido (continuación).

Autores	Correlación	Rango y Parámetros	Partículas ( $d_p$ en mm)																					
Specchia y Baldi (1977)	$\frac{\epsilon_{LD}}{\epsilon_B} = 0.0616 \left[ \frac{Z}{\psi^{1.1}} \right]^{-0.312} \left[ \frac{a_p d_p}{\epsilon_B} \right]^{0.65}$	$0.6 < Z/\psi^{1.1} < 80$ <i>A.I., espumantes</i>	<i>AR</i> 6.4, 10.3 y 22																					
Matsuura <i>et al.</i> (1979)	$\frac{\epsilon_{LD}}{\epsilon_B} = 13.5 Re_L^{1/3} (Ga_L^*)^{-1/3} + 1.20 Re_L (Ga_L^*)^{-1/2}$		<i>ES</i>																					
Clements-Schmidt (1976, 1980b)	$\epsilon_{LD} = A \left[ \frac{We_G Re_G}{Re_L} \right]^B$	<table border="0"> <tr> <td><i>A</i></td> <td><i>B</i> (Alta Interacción)</td> </tr> <tr> <td>0.111</td> <td>-0.150 no espumantes</td> </tr> <tr> <td>0.245</td> <td>-0.034 espumantes</td> </tr> <tr> <td>0.840</td> <td>-0.034 aire-acetate silicona</td> </tr> </table>	<i>A</i>	<i>B</i> (Alta Interacción)	0.111	-0.150 no espumantes	0.245	-0.034 espumantes	0.840	-0.034 aire-acetate silicona	<i>CC</i> 1.04, 1.39 y 3.35													
<i>A</i>	<i>B</i> (Alta Interacción)																							
0.111	-0.150 no espumantes																							
0.245	-0.034 espumantes																							
0.840	-0.034 aire-acetate silicona																							
Kohler y Richarz (1985)	$\frac{\epsilon_{LD}}{\epsilon_B} = 3.42 Re_L^{0.545} Ga_L^{-0.42} \left[ \frac{a_p d_p}{\epsilon_B} \right]^{0.65}$	$0.1 < Re_L < 5$ $Ga_L = d_p^3 \rho_L g / \mu_L^2$																						
Sáez y Carbonell (1985)	$\frac{\epsilon_{LD}}{\epsilon_B} = \left[ A \frac{Re_L^*}{Ga_L^*} + B \frac{Re_L^{*2}}{Ga_L^*} \right]^{0.41}$	$0.2 < Re_L^* < 2000$ $Re_L^* = \frac{\rho_L \mu_L d_p \epsilon_B}{(1 - \epsilon_B) \mu_L}$	(*)																					
Ellman <i>et al.</i> (1990)	$\frac{\epsilon_{LD}}{\epsilon_B} = 10^* \quad \kappa = 0.01 - R/\xi^S$ $\xi = \chi^m Re_L^n We_L^p (a_p d_h)^q$ $d_h = d_p \left[ \frac{16 \epsilon_B}{9 \pi (1 - \epsilon_B)^2} \right]^{1/3}$	<table border="0"> <tr> <td><i>R</i></td> <td><i>S</i></td> <td><i>m</i></td> <td><i>n</i></td> <td><i>p</i></td> <td><i>q</i></td> <td><math>\chi_G</math></td> </tr> <tr> <td><i>A.I.</i> 0.16</td> <td>0.65</td> <td>0.5</td> <td>-0.25</td> <td>0.2</td> <td>0.25</td> <td>&gt;1.2</td> </tr> <tr> <td><i>B.I.</i> 0.42</td> <td>0.48</td> <td>0.5</td> <td>-0.30</td> <td>0.0</td> <td>0.30</td> <td>&lt;0.8</td> </tr> </table>	<i>R</i>	<i>S</i>	<i>m</i>	<i>n</i>	<i>p</i>	<i>q</i>	$\chi_G$	<i>A.I.</i> 0.16	0.65	0.5	-0.25	0.2	0.25	>1.2	<i>B.I.</i> 0.42	0.48	0.5	-0.30	0.0	0.30	<0.8	(*)
<i>R</i>	<i>S</i>	<i>m</i>	<i>n</i>	<i>p</i>	<i>q</i>	$\chi_G$																		
<i>A.I.</i> 0.16	0.65	0.5	-0.25	0.2	0.25	>1.2																		
<i>B.I.</i> 0.42	0.48	0.5	-0.30	0.0	0.30	<0.8																		

Tabla 5.2 Correlaciones para la retención de líquido (continuación).

Autores	Correlación	Rango y Parámetros	Partículas ( $d_p$ en mm)
Wammes <i>et al.</i> (1991)	$\frac{\epsilon_{LD}}{\epsilon_B} = 16.3 Re_L^n Ga_L^m$	<p><i>Baja Presión</i> &lt; 0.3 MPa</p> <p><math>Re_L &lt; 11</math> <math>n = 0.36</math> <math>m = -0.39</math> <math>EV</math> <math>d_p = 3</math></p> <p><math>Re_L &gt; 15</math> <math>n = 0.55</math> <math>m = -0.42</math></p>	
	$\frac{\epsilon_{LD}}{\epsilon_B} = 3.8 Re_L^{0.55} Ga_L^{*-0.42} \left[ \frac{a_p d_p}{\epsilon_B} \right]^{0.65}$	<p><i>Alta Presión</i> 0.5 a 6.0 MPa</p>	

PV perlas de vidrio; EV esferas de vidrio; AR anillos Raschig; CC cilindros de catalizador; CV cilindros de vidrio; MB monturas Berl

A.I. alta interacción; B.I. baja interacción

Z y X ver definición en la tabla 5.1

(\*) recopilación de datos de otros autores

Sato *et al.* (1973a) y Midoux *et al.* (1976) correlacionan la retención externa total con el parámetro de Lockhart-Martinelli,  $\chi$ . Esto se justifica en base a la relación entre la retención de líquido y la energía disipada por el flujo bifásico. Midoux *et al.* (1984) confirman el ajuste de la correlación de Midoux *et al.* (1976) a nuevos datos experimentales.

En un trabajo reciente, Ellman *et al.* (1990), estudian a fondo los datos de retención de líquido recogidos durante los últimos 15 años por Charpentier y colaboradores (Bakos y Charpentier, 1970; Charpentier y Favier, 1975; Midoux *et al.* 1976; Morsi, 1979; Morsi *et al.* 1980; Ellman *et al.* 1988; Larachi, 1988). Demuestran que correlacionar  $\epsilon_{LD}$  con  $\chi$  como único parámetro, no es suficiente. Proponen una correlación en la que además incluyen otros números adimensionales ( $Re_G$ ,  $Re_L$  y  $We_G$ ) y parámetros geométricos de las partículas. Los coeficientes y potencias de su correlación son diferentes para el régimen de baja y el de alta interacción. Esta correlación, sin embargo, presenta una desviación máxima del valor calculado sobre los datos experimentales de +/- 50 %.

Wammes *et al.* (1991) estudian el efecto de la presión sobre  $\epsilon_{LD}$ . Para baja presión, observan un cambio en el exponente de  $\epsilon_{LD}$  vs.  $Re_L^n$  para  $11 < Re_L < 15$ . Sugieren que este cambio es debido al paso del líquido de flujo laminar a turbulento. Para presiones por encima de 0.3 MPa, Wammes *et al.* (1991) no observan discontinuidad alguna al representar  $\epsilon_{LD}$  frente al número de Reynolds del líquido. Afirman que no puede hablarse de régimen de baja interacción para el rango de presiones entre 0.3 y 6.0 MPa, debido a que el líquido fluye en régimen turbulento aún a bajas velocidades de líquido.

Levec *et al.* (1986,1988) encuentran que el valor medido para  $\epsilon_{LD}$  depende del modo en cómo se ha establecido el flujo (historia hidro-dinámica). Para unas velocidades dadas de gas y de líquido,  $\epsilon_{LD}$  resulta mayor cuando se establece el flujo por incremento de la velocidad del líquido (por contraposición al ajuste de mayor a menor velocidad). Basándose en diversas observaciones, concluyen que la existencia de múltiples estados hidro-dinámicos es consecuencia del mojado imperfecto del relleno. Al pasar de alta a baja velocidad del líquido, los pequeños canales de líquido son más estables que

cuando se sigue el camino inverso.

## 5.1.2 Transferencia de materia.

### 5.1.2.1 Líquido-Partícula.

En muchos procesos en reactor de lecho fijo escurrido, la resistencia al transporte de materia entre líquido y partícula juega un papel importante en la velocidad efectiva de reacción (Satterfield, 1975; Herskowitz y Smith, 1983). Debido a ello, un gran número de trabajos han sido llevados a cabo para determinar  $k_s$  (ver tabla 5.3). Varias son las correlaciones propuestas (tabla 5.4). Debido a que la resistencia al transporte depende de las propiedades del líquido y de su velocidad, la mayoría de las correlaciones están basadas en diferentes combinaciones de los números de Sherwood, Reynolds y Schmidt para el líquido. Ramachandran y Chaudhari (1983) comparan un gran número de correlaciones mostrando una aceptable coincidencia excepto para las de Hirose *et al.* (1976) y Satterfield *et al.* (1978).

Algunos autores proponen correlaciones para el coeficiente  $k_s$  mientras otros lo hacen para el producto  $k_s a_s$ . El área de la interfase líquido-partícula puede definirse como  $a_s = f a_p (1 - \epsilon_B)$ , donde  $a_p$  es el área específica externa de las partículas ( $\text{m}^2$  superficie /  $\text{m}^3$  de partícula),  $(1 - \epsilon_B)$  es la fracción de volumen del lecho ocupado por las partículas y  $f$  es la fracción de la superficie del sólido bañada por el líquido o factor de mojado.

Satterfield *et al.* (1978) justifican la discrepancia de sus resultados con los de otros autores en base a que  $a_s$  es poco reproducible. Postulan que el mojado de las partículas depende de las características del sólido y del líquido e incluso, para un mismo sistema, si el lecho ha sido inundado previamente o no. Esta afirmación coincide con las observaciones de Levec *et al.* (1986, 1988) sobre la influencia de la historia hidro-dinámica sobre la retención de líquido. Este comportamiento justifica la dispersión de valores para el factor de mojado,  $f$ , encontrados (Leung *et al.*, 1987b).

Tabla 5.3 Trabajos publicados sobre el coeficiente líquido partícula.

Autores	Gas	Líquido	Sólido	Tamaño x10 <sup>3</sup> , m	Rég.	$u_L$ x10 <sup>2</sup> m/s	$u_G$ x10 <sup>2</sup> m/s
van Krevelen y Krekels	-	Agua	Ac. Benzóico Pe	2.9-14.5	Mono	0.012-0.37	-
Sato <i>et al.</i>	N <sub>2</sub>	Agua	Ac. Benzóico Es	1.2	E-P	0.01-10	1-100
Goto y Smith	Aire	Agua	$\beta$ -Naftol	0.54-2.41	E	0.05-0.5	0.2-0.85
Lemay <i>et al.</i>	Aire	Agua	Ac. Benzóico Es	6.25	P	1.3-4	29-80
Sylvester y Pitayagulsam	Aire	Agua	Ac. Benzóico Ci	3.17x3.17	E-P	0.35-2	12-52
Goto <i>et al.</i>	Aire	Agua	Naftaleno	0.5-2.4	E-P	0.02-2	0.2-5
Hirose <i>et al.</i>	Aire	Agua	Ac. Benzóico Es	2.8-12	E-P	0.05-25	0.7-100
Specchia <i>et al.</i>	Aire	Agua	Ac. Benzóico Ci	3x3, 6x6	E-P	0.16-0.83	0-160
Satterfield <i>et al.</i>	N <sub>2</sub> , He, Ar	Agua	Ac. Benzóico Ci	3x6, 6x6	E-P	0.05-2.5	0-160
Morita y Smith	H <sub>2</sub>	(1)	Pd/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.41	E	0.1-3	0.1-3
Chou <i>et al.</i>	Aire	(2)	Alúmina	7.8	E-P	0.3-1.5	7-38
Ruether <i>et al.</i>	Aire	Agua	Ac. Benzóico Mo	6.35	E-P-BD	0.21-9.8	33-177
Delaunay <i>et al.</i>	N <sub>2</sub>	(2)	Niquel	4	E	0.05-1.1	1-40
Tan y Smith	He	(3)	Carbón Act.	1.3, 2.4, 4.1	E	0.1-1	1.47-8
Morsi <i>et al.</i>	N <sub>2</sub>	Sol. NaOH	Vidrio	4	E	0.1-0.5	0.9-18
Herskowitz y Abuelhajja	H <sub>2</sub>	Ciclohexano	Pd/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.7	E-P	1.2-4	0, 0.6-10.4
Rao y Drinkenburg	Aire	(2)	Rec. Niquel	3x3, 6x6	E-P	0.3-2.7	7-116
Leung <i>et al.</i>	iButeno	Agua	A-15D	0.45	E-P	0.3-2	1-3.1
Latifi <i>et al.</i>	N <sub>2</sub>	CaCl <sub>2</sub> -DMSO	Vidrio	4	E-P	0.3-1.5	-
Lakota y Levec	Aire	Agua	Naftaleno	6.1x4.7	E-P-BD	0.07-4.3	0.3-30

(a) Cambio significativo de  $k_{L, a_s}$  al pasar de régimen escurrido a pulsante

(1)  $\alpha$ -Metil Estireno; (2) Sol. Electrolito; (3) H<sub>2</sub>O/Benzaldehido

Régimenes: E escurrido, P pulsante, BD burbujas dispersas  
Formas: Es Esferas, Ci Cilindros, Mo Monturas, Pe Perlas

Tabla 5.4 Correlaciones para  $k_s$  y  $k_s a_s$ 

Autores	Rég.	Correlación
Van Krevelen y Krekels	1948 Mono	$f Sh = 4.879(1 - \epsilon_B)^{1/2} Re_L^{1/2} Sc^{1/3}$
Goto y Smith	1975 E	$k_s a_s / D = \alpha (\rho_L u_L / \mu_L)^n Sc^{1/3}$ ; $\alpha$ y $n$ dependen de $d_p$
Lemay <i>et al.</i>	1975 P	$Sh = 0.2 K_0 Sc^{1/3}$ $K_0 = \delta_{GL} u_L \rho_L^2 d_p^4 / (\epsilon_L \mu_L^3)$ $y = u_L \rho_L / 2.15$ $f = a_w / a_p$
Sylvester y Pitayagulsam	1975 E P	$k_s = 3.55 \times 10^{-6} (u_L \rho_L)^{-0.78} (u_G \rho_G)^{0.38} [1 - e^{-y} / (1 + e^y)]$
Hirose <i>et al.</i>	1976 E P	$f Sh = \alpha Re_L^{1/2} Sc^{1/3}$ ; $\alpha$ depende de $d_p$
Dhawadkar y Sylvester	1977	$k_s = 163.7 u_L Re_L^{-0.331} Sc^{-2/3}$ ; $0.2 < Re_L < 2400$
Specchia <i>et al.</i>	1978	$\ln(f Sh Sc^{-1/3}) = 1.84 + 0.311 \ln(We_L) - 6.33 / [\ln(We_L)]^2$
Satterfield <i>et al.</i>	1978 E	$f Sh_{(1)} = 0.815 Re_{L(1)}^{0.822} Sc^{1/3}$ ; $Re_L < 60$
Chou <i>et al.</i>	1979 P	$f Sh_{(1)} = 0.334 K_0^{0.202} Sc^{1/3}$
Chou <i>et al.</i>	1979 P	$f Sh \epsilon_B = 0.72 Re_L^{0.54} Re_G^{0.16} Sc^{1/3}$
Ruether <i>et al.</i>	1980 E	A $\alpha$
Rao y Drinkenburg	1985 E	$f k_s \epsilon_B / D a_p = A (Re_L)^\alpha Sc^{1/3}$ $f Sh_{(1)} = 0.24 Re_L^{0.75} Sc^{1/3}$
Lakota y Levec	1990 E P BD	$\epsilon_B f Sh_{(2)} = 0.58 (Re_{L(2)} / \epsilon_L)^{0.519} Sc^{1/3}$ $Sh_{(3)} = 0.487 (Re_L / \beta)^{0.495} Sc^{1/3}$ $\beta = \epsilon_L / \epsilon_B$

diámetro utilizado: (1) equivalente a una esfera de la misma superficie; (2) efectivo:  $d_e = 6(1 - \epsilon_B) / a_p$ ; (3)  $d_e \epsilon_B / (1 - \epsilon_B)$

Separar  $k_s$  y  $a_s$  es ventajoso ya que, aunque  $f$  depende sólo de la velocidad del líquido, las correlaciones pueden ser bastante complejas (Mills y Duduković, 1981; El Hisnawi *et al.*, 1982). A partir de datos de  $k_s a_s$  obtenidos en lecho inundado y en lecho escurrido, Lakota y Levec (1990) separan  $k_s$  y el factor de mojado. Sus datos de  $f$  concuerdan con los calculados según la correlación de Mills y Duduković (1981).

Tal como se observa en la tabla 5.3, los primeros trabajos sobre la transferencia de materia líquido-partícula utilizan la técnica de disolución en agua de partículas de diferentes formas (perlas, granos, esferas y cilindros) y diferentes materiales (ácido benzoico y naftaleno).

Morita y Smith (1978), utilizando un catalizador poroso para la hidrogenación de  $\alpha$ -metil-estireno, obtienen valores de  $k_s a_s$  cuatro veces inferiores a los predichos por van Krevelen y Krekels (1948). Postulan que el coeficiente  $k_s a_s$  es inferior para reacciones con catalizador poroso debido a un área efectiva menor (bocas de los poros). Tan y Smith (1982), sin embargo, encuentran resultados concordantes con la correlación de van Krevelen y Krekels (1948) para la adsorción de benzaldehído sobre partículas de carbón activado. Sus resultados son superiores a los calculados mediante las correlaciones de Goto y Smith (1975a), Specchia *et al.* (1978) y Satterfield *et al.* (1978). Leung *et al.* (1986) a partir de datos de hidratación de isobuteno sobre catalizador poroso (Amberlyst-15) encuentran valores de  $k_s a_s$  comparables a los predichos por la correlación de Goto y Smith (1975). Los resultados de Delaunay *et al.* (1982) concuerdan con la correlación de Dhawadkar y Sylvester (1977). Los de Herskowitz y Abuelhaija (1985) ajustan bien al las correlaciones de Chou *et al.* (1979) y Ruether *et al.* (1980).

Utilizando técnicas completamente diferentes, Satterfield *et al.* (1978) y Chou *et al.* (1979) observan un cambio significativo en el valor de  $k_s a_s$  al pasar del flujo escurrido al flujo pulsante. Chou *et al.* (1979) afirman que el incremento brusco observado para  $k_s f$  se debe probablemente a un gran cambio en el factor de mojado. Este fenómeno ha sido confirmado con posterioridad por Ruether *et al.* (1980), Herskowitz y Abuelhaija (1985) y Rao y Drinkeburg (1985). Otros autores, sin embargo, no observan ningún cambio brusco en la

zona de transición entre el flujo escurrido y el pulsante (Leung *et al.*, 1986, 1987b; Lakota y Levec, 1990).

Chou *et al.* (1979), utilizando una nueva técnica electroquímica, determinan los coeficientes instantáneos. Encuentran que en el régimen de flujo pulsante, el coeficiente  $k_s a_s$  oscila alrededor de un valor promedio que depende de la velocidad del gas. Ruether *et al.* (1980), utilizando la técnica de disolución de partículas, observan también una cierta dependencia de  $k_s a_s$  con la velocidad del gas. Rao y Drinkeburg (1985) consideran por primera vez la velocidad intersticial o real del líquido,  $u_L^* = u_L/\epsilon_L$ . Obtienen una correlación de  $k_s a_s$  que no depende de  $u_G$ , sino sólo de  $u_L^*$ . Lakota y Levec (1990) obtienen un resultado semejante para el número de Sherwood. Concluyen que el gas afecta al coeficiente  $k_s$ , únicamente en la medida en que la velocidad de gas afecta a la retención específica de líquido ( $\epsilon_L$ ) y por tanto a  $u_L^*$ .

### 5.1.2.2 Gas-Líquido.

La velocidad de transferencia de materia gas-líquido puede expresarse según la ecuación 3.19, donde los coeficientes globales cumplen la relación 3.20. Así, la teoría de la doble capa postula que la resistencia a la transferencia de materia es una combinación de la resistencia en el lado líquido y la resistencia en el lado gas. En determinadas condiciones, cuando una de las resistencias es muy inferior a la otra, el coeficiente global puede considerarse como aproximadamente igual a uno de los coeficientes peliculares,  $k_L$  o  $k_G$ .

En los procesos comerciales más comunes entre los que utilizan un lecho fijo escurrido (hidrotratamiento, hidrogenación y oxidación), la resistencia en lado líquido juega un papel preponderante. Esto justifica la existencia de un mayor número de trabajos publicados sobre  $k_L a$  que sobre  $k_G a$ . No obstante, para aquellos procesos en los que ambas resistencias son comparables, la evaluación del coeficiente global requiere conocer ambos coeficientes peliculares además de la constante de la ley de Henry.

Tabla 5.5 Trabajos publicados sobre el coeficiente gas-líquido, lado líquido.

Autores	Mét.	Gas	Líquido	Sólido	Forma	Tamaño $\times 10^3$ , m	Rég. $u_L \times 10^2$ m/s	$u_G \times 10^2$ m/s
Reiss	1967 D	Aire	Agua + O <sub>2</sub>	p-Etileno	AR	12.2-76.2	E P 0-0.3	6
Sato <i>et al.</i>	1972 D	N <sub>2</sub>	Agua + O <sub>2</sub>	Vidrio	Es	2.5-12.2	P BD 1-2	5-100
Ufford y Perona	1973 A	Aire + CO <sub>2</sub>	Agua		AR MB	6.3-12.7, 19	0.45-9	4.5-13
Gianetto <i>et al.</i>	1973 D	Aire	Sol. NaOH + O <sub>2</sub>	Vid./Cer.	Es AR	6	0.25-4.3	38-222
Hirose <i>et al.</i>	1974 D	N <sub>2</sub>	Agua + O <sub>2</sub>	Vidrio	Pe	2.59-12.2	P BD 1-20	5-100
Goto <i>et al.</i>	1975 D	N <sub>2</sub>	Agua + O <sub>2</sub>	CuO.ZnO	Ci	0.54-2.92	0.02-2	0.2-5 (b)
Sylvestre, Pitayagulsam	1975 A	CO <sub>2</sub>	Agua		Ci	3.18x3.18	P BD 0.35-2	12-52
Goto y Smith	1975a A [D]	N <sub>2</sub> [O <sub>2</sub> ]	Agua + O <sub>2</sub>	Cat./Vid.	Es	0.54, 2.9/4.1	E	0.2-0.8
Fukushima y Kusaka	1977b A (a)	Aire	Sol. Elect.	Cerámica	Es AR	12.2, 3.18	Todos 0.2-1	2-200 (c)
Mahajani y Sharma	1979 A + R	CO <sub>2</sub>	Sol. varias	Carb. Act.	An Mo	25.4, 38.1	0.1-0.35	6-30
Serafi y Smith	1980 D (a)	He	Agua + Benceno	Carb. Act.	Pe	1.08	E P 0.51-1.25	6.74 (c)
Martin <i>et al.</i>	1980 A	CO <sub>2</sub>	isoOctano	Vidrio	Pe	0.16-0.20	E	.001-.007
Turek y Lange	1981 A + R	H <sub>2</sub>	$\alpha$ -Met Estireno	Cataliz.	molido	0.0054-0.03	0-0.05	0.02-0.2
Midoux <i>et al.</i>	1984 A + R	CO <sub>2</sub>	EtOH, EtGOH	Vidrio/Cat.	Es/Es Ci	2.4/0.9x5	E P	0.04-1.18
Morsi <i>et al.</i>	1984 A + R	CO <sub>2</sub>	DEA + Sol.org.	Vidrio/Cat.	Es AR/Es	1.2, 4, 6/2.4	E	0.5-1
Goenaga <i>et al.</i> (*)	1989 A (a)	N <sub>2</sub> + SO <sub>2</sub>	Agua	Vidrio	Es	0.813	E P	0.65-2.61
Morsi	1989 A + R	N <sub>2</sub> + CO <sub>2</sub>	DEA + alcohol	Cataliz.	Es	2.4	0.1-1.0	2.5-13

(\*) Coeficiente global  $K_L a$

(a) Técnicas Dinámicas

(b)  $k_L a$  independiente de  $u_G$  en flujo escurrido

(c) Cambio significativo al cambiar de régimen

METODOS

A Absorción

D Desorción

A + R Absorción con reacción

FORMAS

AR Anillos Raschig

Es Esferas

Mo Monturas

Ci Cilindros

Pe Perlas

REGIMENES

E Escurrido

P Pulsante

BD Burbujas Dispersas

En la tabla 5.5 se muestra un resumen de los trabajos publicados para el coeficiente pelicular lado líquido,  $k_L a$  y en la tabla 5.6 algunas de las correlaciones propuestas. Existen dos tipos principales de correlaciones: las del tipo propuesto por Reiss (1967), que incluyen el término de energía disipada por el flujo bifásico ( $E_L = u_L \delta_{GL}$ ) y las del tipo propuesto por Ufford y Perona (1973) que utilizan potencias de  $u_L$  y  $u_G$  o de los correspondientes números de Reynolds. Lo mismo puede decirse para área de la interfase gas-líquido (tabla 5.7). Goto y Smith (1975a) incluyen el número de Schmidt y Fukushima y Kusaka (1977b) la retención de líquido,  $\epsilon_L$ .

A diferencia de la pérdida de carga y del coeficiente  $k_S a_S$ , las correlaciones propuestas para  $k_L a$  predicen valores muy diferentes (Ramachandran y Chaudhari, 1983). Estas divergencias pueden justificarse en base a la íntima relación entre la transferencia de materia y los complejos fenómenos fluido-dinámicos de un lecho fijo escurrido (Ellman *et al.*, 1990). Además, varios son los factores que pueden distorsionar los resultados obtenidos si no se evitan o se tienen en cuenta: efecto pared, distribución de flujo no uniforme, dispersión axial y efectos terminales.

En los primeros trabajos se utilizaron tipos de relleno semejantes a los de las torres de absorción. Ufford y Perona (1973) proponen correlaciones diferentes para  $k_L a$  según se trate de anillos Raschig o monturas Berl. Morsi *et al.* (1980) postulan que el área específica de la interfase,  $a$ , es diferente para este tipo de rellenos (anillos y monturas) que para las pequeñas partículas empleadas en procesos catalíticos (cilindros, esferas y placas). Estudios posteriores han revelado que incluso para esferas de diferente tamaño, puede encontrarse un comportamiento fluido-dinámico diferente. Esto se debe a que para esferas pequeñas ( $d_p \leq 2$  mm), las fuerzas de superficie juegan un papel mucho más importante que para las esferas de gran tamaño.

Fukushima y Kusaka (1977b) y Serafi y Smith (1980) encuentran un cambio acusado en  $k_L a$  al pasar del régimen de baja al de alta interacción. Así, la comparación hecha por Ramachandran y Chaudhari (1983) no es correcta, ya que cada una de las correlaciones consideradas es aplicable en un rango de velocidades de gas y líquido diferente. Gianetto *et al.* (1970) observan un fuerte

Tabla 5.6 Correlaciones para  $k_L$  y  $k_L a$

Autores	Rég.	Correlación
Reiss	1967 E P	$k_L a = 0.0173 E_L^{1/2}$ ; $50 < E_L < 10^4 \text{ W/m}^3$ ; $E_L = u_L \delta_{GL}$
Sato <i>et al.</i>	1972 P BD	$k_L a = 0.98 d_p^{-0.5} u_L^{0.8} u_G^{0.8}$
Ufford y Perona	1973	$k_L a = A (\rho_L u_L)^m (\rho_G u_G)^n$ ; $0.46 < m < 0.75$ ; $0.82 < n < 1.06$
Gianetto <i>et al.</i>	1973	$k_L = 0.0305 \left\{ [\epsilon_B \delta_{GL} / (a_p \rho_L u_L^2)]^{0.068} - 1 \right\} u_L / \epsilon_B$
Hirose <i>et al.</i>	1974 P	$k_L a = 0.163 [E_L / (\epsilon_L \epsilon_B)]^{0.31} (u_G / \epsilon_B)^{0.6} \epsilon_B$
Goto <i>et al.</i>	1975	$k_L a / D = A (u_L \rho_L / \mu_L)^n Sc^{1/2}$ ; $n$ depende de la forma del sólido
Sylvester y Pitayagulsarn	1975 P BD	$k_L a = 0.0259 (u_L \rho_L)^{1.2} (u_G \rho_G)^{0.3}$
Goto y Smith	1975a E	$k_L a = A D (u_L \rho_L / \mu_L)^n Sc^{1/2}$ ; $n \approx 0.4$ depende de la forma del sólido
Lemay <i>et al.</i>	1975 P	$k_L a Sc^{1/2}$ vs $E_L$ ; gráfico
Satterfield	1975 (*)	$k_L a = 0.0173 (D / 2.4 \times 10^{-9})^{1/2} E_L^{0.5}$

Tabla 5.6 Correlaciones para  $k_L$  y  $k_L a$  (continuación)

Autores	Rég.	Correlación
Charpentier	1975 (*)	$k_L a = 0.0011 (D/2.4 \times 10^{-9}) E_L ; 5 < E_L < 100 \text{ W/m}^3$
Fukushima y Kusaka	1977b E	$\frac{k_L a d_p^2}{D(1-\beta)} = 2 (S_p/d_p^2)^{0.2} Re_L^{0.73} Re_G^{0.2} Sc^{0.5} (d_p/d_T)^{0.2}$
	P	$\frac{k_L a d_p^2}{D(1-\beta)} = 0.11 Re_L Re_G^{0.4} Sc^{0.5} (d_p/d_T)^{-0.3}$
Mahajani y Sharma	1979 E	$k_L \propto u_L^{0.2} ; k_L a/D = 1.22 \times 10^4 Sc^{1/2} (u_L \rho_L / \mu_L)^{0.41}$
Martin <i>et al.</i>	1980 E	$k_L a = 0.0011 (D/2.4 \times 10^{-9}) E_L / (1 - \epsilon_B)$
Turek y Langué	1981	$k_L a/D = 1.68 \times 10^5 Sc^{1/2} Re_L^{0.25} Ga^{-0.22} \quad Ga = d_p^2 \rho^2 g / \mu^2$
Midoux <i>et al.</i>	1984 EP	$k_L a = 7.22 \times 10^7 \epsilon_B D^{1/2} N^{1.23} \quad N = \epsilon_B^2 \xi_{GL} / [a_P (u_L + u_G)]$ $\xi_{GL} = (E_L + E_G) / \epsilon_B + (u_L \rho_L + u_G \rho_G) / (\epsilon_B \rho_e)$
Morsi <i>et al.</i>	1984 E	$k_L a = 6.50 \times 10^8 [\epsilon_B / (a_P \delta_{GL})]^{2.5} Sc^{-1/2} ; 10^{-4} < \epsilon_B \delta_{GL} / a_P < 2 \times 10^{-3} \quad (1)$
Morsi	1989 E	$k_L a = 0.0014 D^{1/2} \lambda_{LG}^{1.46} \quad \lambda_{GL} = \delta_{LG} + g (u_L \rho_L + u_G \rho_G) / (u_L + u_G)$

$\xi_{GL}$  = potencia disipada por unidad de volumen de lecho (m de agua /s);  $\rho_e$  = densidad del fluido manométrico  
(1)  $\delta_{GL}$  en metros de columna de agua por metro ; (\*) recopilación de datos de otros autores

Tabla 5.7 Correlaciones para el área específica de la interfase gas-líquido,  $a$

Autores	Rég.	Correlación
Gianetto <i>et al.</i>	1970 P	$\frac{a}{a_p(1-\epsilon_B)} = \left[ \frac{\delta_{GL}\epsilon_B}{a_p(1-\epsilon_B)} \right]^{1/2}$
Hirose <i>et al.</i>	1974 P BD	$a = 175 d_p^{-0.8} u_L^{-0.5} u_G^{0.6} \quad u_G < 0.6 \text{ m/s}$
Charpentier	1976 E	$\frac{a}{a_p(1-\epsilon_B)} = 0.05 \left[ \frac{\delta_{GL}\epsilon_B}{a_p(1-\epsilon_B)} \right]^{1/2}$
Fuskushima y Kusaka	1977a E P BD	$\frac{a d_p}{1-\beta} = A \left[ \frac{S_p}{d_p^2} \right]^q Re_L^m Re_G^n$
Mahajani y Sharma	1980 E	$a = A u_L^m u_G^n \quad m=0.4 ; n=0.1$
Morsi <i>et al.</i>	1980 E	$a = 4.05 Re_L^{0.817} Re_G^{0.062} (S_p/d_p^2)^{-0.243}$
Midoux <i>et al.</i>	1980	$a = 7.75 \times 10^5 \epsilon_B \delta_{GL} / [a_p(1-\epsilon_B)]$
	1980	$a = 8.0 \times 10^5 \epsilon_B \delta_{GL} / [a_p(1-\epsilon_B)]$

(a) incremento acusado de  $a$  en la proximidad del cambio de régimen

Rég.	A	q	m	n
E	$3.9 \times 10^{-3}$	-0.1	0.4	0.0
P	$2.2 \times 10^{-4}$	-0.3	2/3	0.2
BD	$2.8 \times 10^{-7}$	-0.9	1.8	0.0

incremento en la interfase  $a$  cerca de la transición entre flujo escurrido y pulsante.

En el régimen de flujo escurrido, las correlaciones propuestas para  $k_L$  (Mahajani y Sharma, 1979),  $k_L a$  (Goto *et al.*, 1975; Goto y Smith, 1975; Turek y Langué, 1981) y  $a$  (Fukushima y Kusaka, 1977a; Mahajani y Sharma, 1980) no dependen de la velocidad del gas. Fukushima y Kusaka (1977b) proponen que el término  $k_L a / (1 - \epsilon_L / \epsilon_B)$  es proporcional a  $u_G$  elevado a la potencia 0.2. Esta correlación es de dudosa validez ya que está basada en pocos puntos experimentales y ha sido deducida por extrapolación de la correlación del régimen pulsante, según reconocen Fukushima y Kusaka (1977b).

Para el flujo pulsante, donde la interacción de las dos fases es importante, todas las correlaciones (tablas 5.6 y 5.7) tienen en cuenta ambas fases, bien a través de potencias de  $u_L$  y  $u_G$ , bien a través de la pérdida de carga por fricción del flujo bifásico,  $\delta_{GL}$ .

Fukushima y Kusaka (1977a,b) encuentran que la retención de líquido es un factor importante en la correlación del área de la interfase y, por tanto, del coeficiente  $k_L a$ . Este factor puede añadirse a la justificación de dispersión entre los resultados de diferentes autores. En efecto, la retención de líquido varía significativamente de un sistema a otro (Ellman *et al.*, 1990) e incluso puede depender de la historia fluido-dinámica del lecho (Satterfield, 1975). Morsi *et al.* (1984) demuestran que los valores de  $k_L a$  para sistemas con líquidos orgánicos son sensiblemente inferiores a los correspondientes a sistemas acuosos. Sus valores de  $a$  no concuerdan con las correlaciones de Gianetto *et al.* (1970), Hirose *et al.* (1974), Charpentier (1976) y Fukushima y Kusaka (1977a).

En comparación con el coeficiente  $k_L a$ , los trabajos publicados sobre  $k_G a$  son realmente escasos (tabla 5.8). La mayoría de las correlaciones para  $k_G$  en lecho fijo con flujo bifásico corresponden a la operación en contracorriente.

Goto *et al.* (1977) comparan las tres primeras correlaciones de la tabla 5.9 y muestran como la correlación de Reiss (1967) predice valores de  $k_G a$  muy superiores a los obtenidos según las correlaciones de Gianetto *et al.* (1973) y Shende y Sharma (1974).

Tabla 5.8 Trabajos publicados sobre el coeficiente gas-líquido, lado gas.

Autores	Mét.	Gas	Líquido	Sólido	Forma	Tamaño $\times 10^3$ , m	Rég.	$u_L \times 10^2$ m/s	$u_G \times 10^2$ m/s	$k_G a$ 1/s
Reiss	1967 A	Aire+NH <sub>3</sub>	Agua	p-Etileno	AR	12,25,75	P	4-30	60-450	2.5-34
Gianetto <i>et al.</i>	1973 D	Aire+NH <sub>3</sub>	Sol.ac.Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	V/Cer	Es/Mo,AR	6	P	0.63-2.15	39-228	5-80
Shende y Sharma	1974 A	Aire+SO <sub>2</sub>	Sol.ac.NaOH	(a)	An,Mo	16-25	E,P,A	0.1-2	5-200	4-15
Goto <i>et al.</i>	1975 D	Aire	H <sub>2</sub> O-Naftaleno	Cat	Ci	0.5-2.9	E	.048-.51	0-0.77	.004-.04
Fukushima-Kusaka	1978 A	Aire+SO <sub>2</sub>	Agua	Cer	Es	12.7	P	2.5-15	130-280	4.3-14.5
Eroglu y Dogu	1983 T	N <sub>2</sub> (SO <sub>2</sub> )	Agua	CA	Ci	3x5	E	.06-.15	.09-.17	(b)
Yaici <i>et al.</i>	1988 A+R	Aire+SO <sub>2</sub>	NaOH-NNDMA	V/Cat	Pe/Ci	1.35,2.4	E P	0.1-0.75	2.5-27	0.3-4.5

MÉTODOS	SOLIDO	FORMAS	REGIMENES
A Absorción	V Vidrio	AR Anillos Raschig	E Escurreido
D Desorción	Cer Cerámica	Mo Monturas	P Pulsante
A+R Absorción con reacción	Cat Catalizador	An Anillos	A Atomizado
T Trazador	CA Carbón Activado	Es Esferas	
		Ci Cilindros	

(a) Cerámica, Acero inox. y Plástico

(b) Coeficiente  $K_G a$  global

Sharma y colaboradores (Sahay y Sharma, 1973; Shende y Sharma, 1974) postulan que  $k_G$  no depende de la velocidad del líquido, tanto si se trata de flujo en equicorriente como en contracorriente. Goto *et al.* (1975) encuentran que  $k_G a$  varía moderadamente con la velocidad  $u_L$ .

Fukushima y Kusaka (1978) proponen la corrección del coeficiente  $k_G a$  con la retención de líquido. No obstante, encuentran una fuerte dependencia del cociente  $k_G a / (1 - \epsilon_L / \epsilon_B)$  con la velocidad de líquido.

La correlación de Yaici *et al.* (1984, 1988) es semejante a la anterior pero con una potencia para el número de Reynolds del líquido que indica una menor influencia de éste sobre  $k_G a$ .

Las velocidades de líquido empleadas por Gianetto *et al.* (1973), Shende y Sharma (1974) y Yaici *et al.* (1984, 1988) incluyen la zona de transición entre el flujo escurrido y el flujo pulsante. Solamente Shende y Sharma (1974) apuntan ligeras diferencias para las potencias de  $u_L$  y  $u_G$  al cambiar de tipo de flujo (escurrido, pulsante y burbujas dispersas).

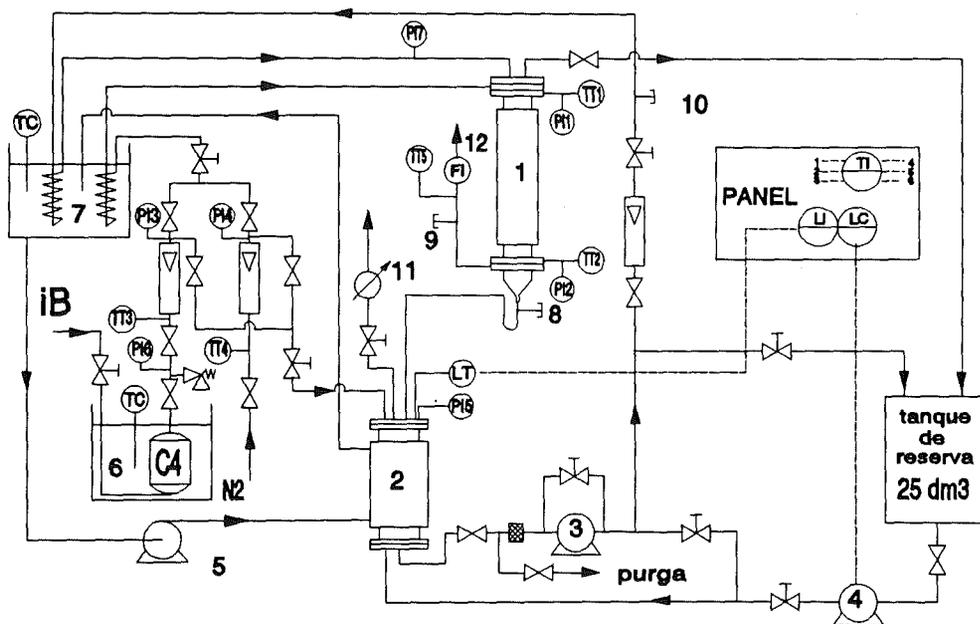
**Tabla 5.9** Correlaciones para  $k_G a$ .

Autores	Rég.	Correlación
Reiss	1967 P	$k_G a = 2.0 + 0.069 E_G^{2/3}$
Gianetto <i>et al.</i>	1973 P	$k_G = 0.035 \left[ \frac{\delta_{GL} g d_p^2}{S_p (\rho_G u_G^2 + \rho_L u_L^2)} \right]^{0.98} u_G \epsilon_B$
Shende y Sharma	1974 E P A	$k_G a = A u_G^m u_L^n$
Goto <i>et al.</i>	1975 E	$k_G \propto u_G^m u_L^n ; m > 1 ; n \approx 0$
Fukushima y Kusaka	1978 P	$\frac{k_G a d_p^2}{D (1 - \beta)} = 0.127 \left[ \frac{S_p}{d_p^2} \right]^{-0.7} Re_L^{0.7} Re_G^{0.6} Sc_G^{0.5} \left[ \frac{d_p}{d_T} \right]^{-0.2}$
Eroğlu y Doğu	1983 E	$K_G a = 0.020 u_G^{0.67} u_L^{0.33}$
Yaici <i>et al.</i>	1988 E P	$\frac{k_G a d_p^2}{D (1 - \beta)} = 0.03 \left[ \frac{S_p}{d_p^2} \right]^{-1.56} Re_L^{0.33} Re_G^{0.87} Sc_G^{0.5} \left[ \frac{d_p}{d_T} \right]^{-0.67}$

## 5.2 Ensayos Experimentales.

### 5.2.1 Instalación.

Los ensayos de absorción y desorción, tanto de isobuteno como de *ter*-butanol se llevaron a cabo en la instalación que se ilustra en la figura 5.1. El componente principal es el reactor de lecho fijo escurrido (ANSI 316), cuyo esquema descriptivo se ilustra en la figura 5.2. El cuerpo es un tubo embridado de 200 mm de longitud y 45 mm de diámetro interior. La superficie externa del tubo está calorifugada mediante un recubrimiento de espuma de poliuretano de 10 mm de espesor. En el interior del tubo se dispone el lecho fijo soportado por una malla de acero inoxidable fijada por las dos bridas inferiores.



- |       |                      |        |                     |    |                              |
|-------|----------------------|--------|---------------------|----|------------------------------|
| 1     | Reactor LFE          | 6,7    | Baños termostáticos | 11 | Condensador de reflujo       |
| 2     | Depósito-borboteador | 8,9,10 | Septa               | 12 | Contador hidráulico de gases |
| 3,4,5 | Bombas               |        |                     |    |                              |

Figura 5.1 Instalación experimental para el reactor de lecho fijo escurrido.



La parte inferior del reactor (figura 5.2c) está destinada a separar la corriente de gas y la de líquido. Consta de un anillo soldado a un cono truncado. El líquido cae a la parte inferior (cono), siendo evacuado por el tubo de drenaje. El gas tiende a permanecer en la parte superior (cilindro), siendo evacuado por el tubo conectado a la salida lateral de la brida. Para obtener una correcta separación, el cono debe estar parcialmente inundado de líquido, actuando como cierre hidráulico. Para conseguir el nivel adecuado de líquido en el cono de drenaje, se dispone de un sifón conectado a la salida del reactor (ver figura 5.1). La altura de descarga del sifón es regulable con el fin de compensar las diferencias de presión entre el reactor y el depósito de descarga.

El depósito-borboteador (2) es un tubo encamisado cerrado por dos bridas ciegas. Está construido en acero inoxidable ANSI 316 y su capacidad nominal es de  $3 \text{ dm}^3$ . Su temperatura se puede controlar mediante circulación del agua procedente del baño termostático (5). El nivel en el depósito-borboteador se mantiene constante mediante un regulador (VEGAMET 406-A) que actúa sobre la bomba de adición de líquido (4). Esta es una bomba de flujo continuo (engranajes de teflon) y cabezal de acero inoxidable (Micropump 120). El depósito está abierto a la atmósfera mediante un condensador de reflujo refrigerado por agua a  $2 \text{ }^\circ\text{C}$ .

Para la recirculación de líquido, se emplea una bomba de flujo continuo (no pulsante) de engranajes de teflon con cabezal de acero inoxidable (3) (Micropump 220). El caudal de líquido alimentado al reactor se regula mediante apertura de las válvulas que conectan la aspiración de la bomba con la descarga. La lectura del caudal se efectúa mediante rotámetro.

El circuito de gas permite alimentar isobuteno o nitrógeno tanto al reactor (1) como al depósito de líquido (2). En el depósito de líquido, el gas entra por un distribuidor situado en la parte inferior, obteniéndose así un burbujeo continuo en su interior. La función de este dispositivo se tratará más adelante al exponer los ensayos de absorción y desorción. Los caudales de ambos gases se regulan mediante válvulas de estrangulamiento, efectuándose la lectura en sendos rotámetros. El ajuste fino del caudal del gas del reactor se lleva a cabo con una válvula micrométrica de aguja. Los rotámetros disponen de indicadores

de presión y de temperatura para corrección de los caudales. La medición del caudal de gas a la salida del reactor se efectúa mediante un contador hidráulico de precisión (Flonic Schlumberger, 1 dm<sup>3</sup>/vuelta).

El isobuteno se almacena en un cilindro de acero inoxidable ANSI-316 de 2.5 dm<sup>3</sup> de capacidad, que se mantiene sumergido en un baño a temperatura constante (20°C). El circuito de isobuteno cuenta con una válvula de seguridad (Swagelok) tarada a 3 bar. La carga del cilindro se efectúa por conexión con una botella de gases dotada con sifón. La diferencia de presión de vapor entre la botella y el cilindro, debida a la diferencia de temperaturas entre ambas, permite el trasiego del isobuteno licuado.

El rotámetro de líquido (Fluidal, PB-15-120) cuenta con dos tubos de medida de diferente escala (4-40 dm<sup>3</sup>/h y 10-100 dm<sup>3</sup>/h), calibrados por el suministrador para agua a 20°C. Los rotámetros de gases (Serrano, serie 2000) están calibrados por el fabricante para nitrógeno entre 10 y 150 dm<sup>3</sup>(c.n.)/h. Los indicadores de presión son manómetros de aguja (Wika 232.03.063) de diferente rango: 0 a 1 bar (PI1, PI2), 0 a 10 bar (PI3, PI4, PI6) y -1 a 3 bar (PI5). Los sensores de temperatura (TT1 a TT6) son sondas Pt-100 Ω (Crison Instruments) montadas en vainas de acero inoxidable. Están conectadas a un termómetro digital de seis entradas (Crison Instruments, mod. 641). Los tubos de conexión son de acero inoxidable ANSI 316 o de teflon. Los racores y conexiones (Swagelok), así como las partes de los instrumentos en contacto con las corrientes fluidas, son también de acero inoxidable.

La instalación experimental cuenta, para el análisis químico de las corrientes de gas y líquido, con un equipo de cromatografía de gases (Shimadzu GC-8A) conectado a un registrador-integrador (Shimadzu C-R3A). El cromatógrafo está dotado con una columna Porapak Q (80/100 mallas, diámetro exterior 3.18 mm, longitud 1.8 m). La toma de muestras se efectúa en los septa de silicona mostrados en la figura 5.1. Las muestras de líquido (8,10) se recogen e inyectan con una jeringa de 10 microlitros (Hamilton #1801 RNE) y las de gas (9) con una jeringa de 250 microlitros (Hamilton #1725), ambas con émbolo de punta de teflon.

### 5.2.2 Ensayos de absorción y desorción.

La determinación experimental de los coeficientes de transferencia de materia entre gas y líquido se lleva a cabo mediante diversos ensayos de absorción y desorción de isobuteno y de desorción de *ter*-butanol, según los principios expuestos en el capítulo 3. Las condiciones experimentales se ilustran en la tabla 3.5. El lecho sólido está constituido por esferas de vidrio tamizadas entre 0.9 y 1.1 mm.

Previamente, se han recalibrado los diversos instrumentos en el rango de condiciones de operación expuestos. En el análisis químico de las corrientes fluidas, se sigue la técnica de patrón externo. Para el *ter*-butanol se ha obtenido una recta de calibrado a partir de soluciones acuosas de *ter*-butanol de composición conocida. El patrón de isobuteno es agua saturada con isobuteno a 20°C cuya composición es conocida (Leung *et al.*, 1987a). Para minimizar el error debido al uso de patrón externo, se han inyectado seis muestras como mínimo en cada caso (6 microlitros para el isobuteno disuelto en la fase líquida, 1 microlitro para el *ter*-butanol disuelto en agua y 125 microlitros para el *ter*-butanol en la fase vapor).

Los ensayos de absorción de isobuteno se han llevado a cabo haciendo pasar por el reactor agua como corriente líquida e isobuteno puro como corriente gaseosa, analizándose la concentración de isobuteno en la corriente líquida de salida. En este caso, el líquido circula en circuito abierto.

En los ensayos de desorción de isobuteno, el reactor opera con recirculación de líquido y se utiliza nitrógeno puro en la fase gas. El agua contenida en el depósito (2) se satura por borboteo con isobuteno. Al pasar por el reactor junto con la corriente de nitrógeno, parte del isobuteno se desorbe, pasando a la fase gas. El líquido se devuelve al depósito donde se resatura. El líquido del depósito se mantiene fuertemente agitado mediante la corriente de recirculación de la propia bomba. En realidad, el líquido del depósito no llega a saturarse de isobuteno sino que alcanzaba, en estado estacionario, un cierto valor más o menos próximo a la saturación, dependiendo de las condiciones particulares de operación de cada ensayo. Por este motivo, se analiza el

contenido de isobuteno de la fase líquida a la entrada y a la salida del reactor.

En la desorción de *ter*-butanol se utiliza nitrógeno como corriente gaseosa y soluciones acuosas en el rango de 1 kmol/m<sup>3</sup> de *ter*-butanol como corriente líquida. Como quiera que el *ter*-butanol es muy soluble en agua, la concentración de *ter*-butanol en el líquido varía muy poco (porcentualmente) a su paso por el reactor, aunque se llegue al equilibrio entre fases. Debido a ello, se ha optado por analizar el *ter*-butanol contenido en la fase gas.

Los efectos terminales se determinaron según el método expuesto en el apartado 3.3.2. Se repitieron todas las experiencias pero esta vez sin el lecho. El distribuidor de gas y líquido se montó sobre el separador de fases. Para simular las mismas condiciones de distribución se situó una capa de esferas de vidrio de 2 a 3 partículas de espesor.

Las velocidades de gas y líquido mostradas en la tabla 3.5 corresponden a los regímenes de flujo escurrido (baja interacción entre fases) y flujo pulsante (alta interacción entre fases). Como es conocido (Satterfield, 1975; Herskowitz y Smith, 1978), el comportamiento de los reactores de LFE depende de su historia fluido-dinámica. Para evitar este problema, se ha seguido el método recomendado por Herskowitz y Smith (1978), consistente en realizar una inundación previa del lecho antes de cada serie de ensayos. La preinundación consiste en poner el reactor en condiciones de flujo pulsante (alto caudal de gas y de líquido) y reducir luego los caudales de gas y líquido a los valores de trabajo. Por supuesto, esto sólo tiene sentido cuando las condiciones de trabajo corresponden al flujo escurrido o al de transición.

### 5.2.3 Reactivos.

Se emplean: *ter*-butanol (Panreac, calidad análisis), isopropanol (Probus, calidad análisis), isobuteno (Carbueros Metálicos, 99% de pureza) y nitrógeno (Abelló Oxígeno Linde, calidad puro 4.0). El agua utilizada era previamente descalcificada y bidestilada (Aquatron 4WD).

### 5.3 Resultados y Discusión.

Los coeficientes de transferencia de materia medidos se muestran en la tabla 5.10 para el isobuteno y en la tabla 5.11 para el *ter*-butanol.

**Tabla 5.10** Coeficientes volumétricos de transferencia de materia para la desorción y absorción de isobuteno.

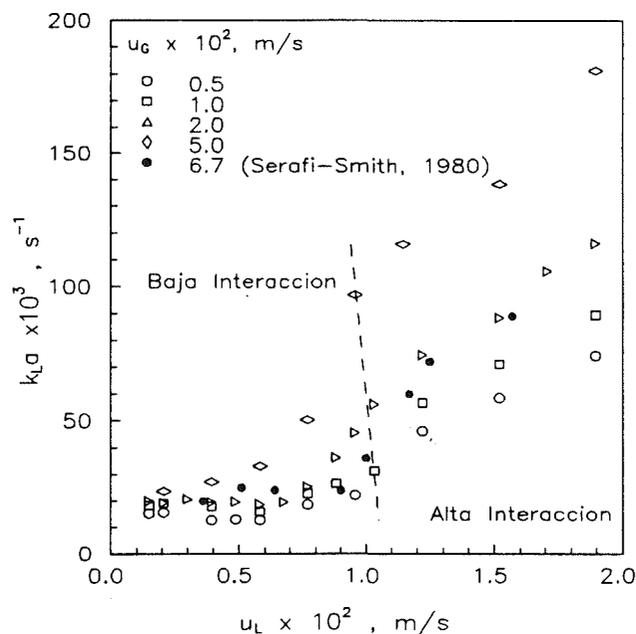
$u_G \times 10^2, \text{ m/s}$	0.5 (a)	1.0 (a)	(a)	2.0 (b)	(c)	5.0 (a)	
$u_L, \times 10^2, \text{ m/s}$	$(k_L a)_B \times 10^3, \text{ s}^{-1}$						
0.149	15.3	18.3		20.1			
0.205	15.7	19.0		19.2		23.6	
0.299			20.6				
0.393	12.8	18.0		19.6	20.6	27.3	
0.487	13.1			19.7			
0.581	12.7	15.9		18.6	21.5	33.0	B.I.
0.675				19.5			
0.769	18.6	22.8	25.3	19.1		50.3	
0.882		26.6	36.2	18.7			
0.957	22.2		45.5	18.0	19.3	96.8	
1.032		31.4	56.2				
1.145						115.9	
1.220	46.2	56.7	74.5				A.I.
1.520	58.6	71.1	88.5			138.4	
1.708			105.9				
1.896	74.2	89.5	116.2			181.4	
(a)	desorción con pre-inundación		B.I.zona de baja interacción (figura 5.4a)				
(b)	desorción sin pre-inundación		A.I.zona de alta interacción (figura 5.4a)				
(c)	absorción sin pre-inundación						

#### 5.3.1 Coeficiente lado líquido, $k_L a$ .

En el capítulo 3, se argumentó que el coeficiente global de desorción del isobuteno corresponde al coeficiente pelicular del lado líquido. Esto puede confirmarse a partir de los resultados obtenidos, utilizando los coeficientes peliculares de las tablas 5.10 y 5.11. Aunque estos resultados no son

directamente comparables, se observa que las  $k_L a$  son menores que las  $k_G a$ . En el peor de los casos, baja velocidad de gas y alta velocidad de líquido, aún suponiendo que ambos coeficientes son iguales, se obtiene:  $k_L a / (k_G a H_B) < 0.05$ , debido al valor de la constante de la ley de Henry,  $H_B$ . Por lo que al menos el 95 % de la resistencia a la transferencia de materia en la interfase G/L es debida al lado líquido.

En las pruebas de absorción de isobuteno puro, la resistencia controlante es la del lado líquido, ya que no hay gradiente de concentración en el lado gas. Las pequeñas diferencias entre los resultados de las pruebas de absorción y los de las pruebas de desorción de isobuteno (inferiores al 15% y atribuibles al error experimental) confirman la hipótesis de resistencia en el lado líquido para la desorción.

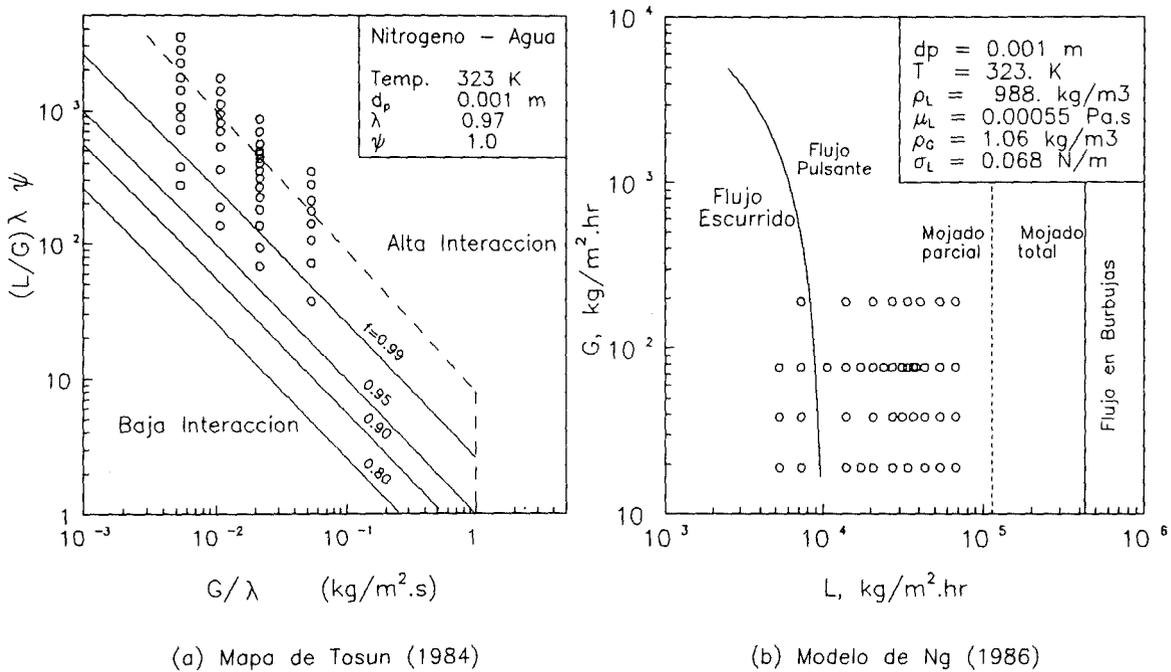


**Figura 5.3** Coeficientes de transferencia de materia para la desorción de isobuteno.

En la figura 5.3 se representan los datos de  $k_L a$  para la desorción de isobuteno y diferentes velocidades de gas y líquido. Como es de esperar, a baja interacción y bajas velocidades del gas ( $< 0.05 \text{ m/s}$ )  $k_L a$  depende poco de  $u_G$ . Se supone que a partir de esta velocidad, el perfil de velocidades del líquido

está afectado por el flujo del gas.

Se observa, para altas velocidades superficiales del líquido, un aumento de la pendiente de  $k_L a$  respecto a  $u_L$ , semejante al encontrado por Serafi y Smith (1980). Este fenómeno, que como más adelante se verá depende de la historia del lecho, puede estar provocado por un cambio en el régimen fluido-dinámico del flujo bifásico. En efecto, situando los puntos experimentales sobre el mapa de Tosun (1984a), figura 5.4a, los puntos de velocidad de líquido menor corresponden a la zona de baja interacción (flujo escurrido), mientras que los puntos de velocidad de líquido mayor corresponden a la zona de alta interacción (flujo pulsante).



**Figura 5.4** Situación de los puntos experimentales en los mapas hidro-dinámicos.  $f$  según la correlación de Mills-Duduković (1981).

En la figura 5.4b se han situado los puntos experimentales sobre el diagrama construido a partir del modelo teórico de Ng (1986). En este caso el cambio de régimen del diagrama no coincide con el cambio observado en el coeficiente de transferencia de materia.

En la zona de flujo pulsante, los valores de  $k_L a$  son significativamente superiores, tal como cabe esperar de una mayor interacción entre las dos fases fluidas. Sin embargo, el cambio en la pendiente de  $k_L a$  no presenta una clara discontinuidad. Existe una zona intermedia entre ambos tipos de flujo (flujo ondulante). Debido al cambio de orden de magnitud de  $k_L a$  al pasar de un régimen a otro, la pendiente respecto a  $u_L$  en la zona intermedia es muy superior a las pendientes de las zonas de baja y alta interacción. Este fenómeno fue ya descrito por Satterfield *et al.* (1978) y Chou *et al.* (1979) para  $k_S a_S$  y por Fukushima y Kusaka (1977b) para  $k_L a$ .

Existen dos tipos principales de correlaciones, la propuesta por Reiss (1967) en función del término de disipación de energía,  $E_G = u_G \delta_{GL}$ , y la propuesta por Ufford y Perona (1973) en función de potencias de  $u_G$  y  $u_L$ .

La correlación propuesta por Fukushima y Kusaka (1977b), ecuación 5.1, es del segundo tipo. No obstante, el coeficiente se corrige con la retención de líquido ( $\epsilon_L = \beta \epsilon_B$ ). Las potencias del número de Reynolds del gas y del líquido, dependen del régimen de flujo.

$$\frac{k_L a d_p^2}{D (1-\beta)} = K Re_L^a Re_G^b Sc_L^{0.5} \left[ \frac{d_p}{d_T} \right]^c \quad (5.1)$$

La influencia de la velocidad del gas sobre el coeficiente volumétrico,  $k_L a$ , puede justificarse a través de la variación del área interfacial gas-líquido y de la variación de  $k_L$  debida a alteraciones locales de la turbulencia de la fase líquida (Velo *et al.*, 1991b).

La retención de líquido no ha sido medida experimentalmente en este trabajo, por lo que se estima a partir de las correlaciones existentes en la literatura. Se han considerado la correlación de Midoux *et al.* (1976) que predice la retención externa total y la más reciente de Ellman *et al.* (1990) que únicamente considera la retención dinámica.

En la figura 5.5a se representa  $k_L a/(1-\beta)$  vs  $u_L$ . Todos los puntos experimentales, excepto los de mayor velocidad de gas, pueden ajustarse a una única línea ( $b = 0$  en la ecn. 5.1), si se consideran separadamente los puntos

correspondientes a cada régimen (escurrido, transición y pulsante). El peor ajuste observado en los puntos de la zona intermedia, puede atribuirse a la inestabilidad del flujo propia de un régimen de transición. La figura 5.5b difiere de la anterior en la estimación de la retención de líquido. En este caso,  $\beta$  ( $= \epsilon_L/\epsilon_B$ ) se calcula a partir de la correlación de Ellman *et al.* (1990) y, por tanto, corresponde a la retención dinámica. Los puntos para la zona de alta interacción no coinciden en una única línea, sino que se disponen según rectas casi paralelas para cada velocidad de gas. En efecto, en la figura 5.6, donde se representa  $k_L a/(1-\beta)/u_L^n$  vs.  $u_G$ , se obtienen dos únicas rectas, una para cada régimen de flujo. La recta correspondiente a la zona de baja interacción es prácticamente plana, indicando una influencia despreciable de  $u_G$  sobre el término  $k_L a/(1-\beta)$ . La recta correspondiente a la zona de alta interacción depende de  $u_G$  según una potencia de 0.223. Utilizando la correlación de Midoux *et al.* (1976) esta potencia es sólo del orden de 0.1.

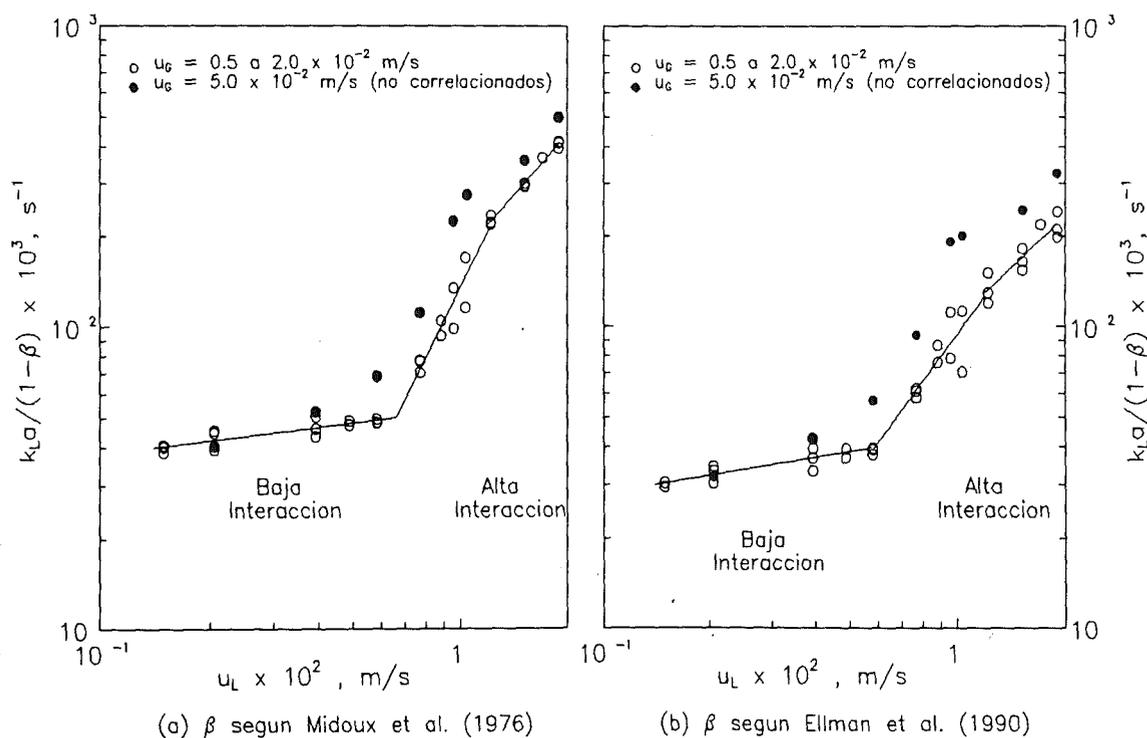
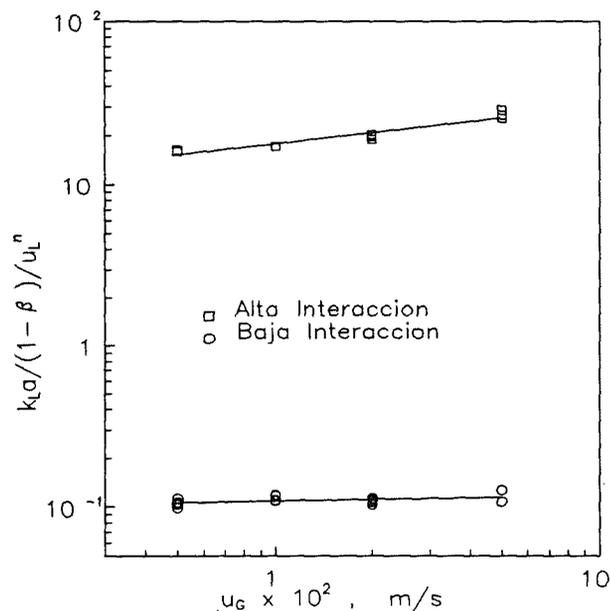


Figura 5.5 Coeficientes  $k_L a$  corregidos por la retención de líquido.

Desde el punto de vista práctico, es preferible tener una correlación de  $k_L a$  que sólo dependa de la velocidad del líquido. Se ha visto que para la zona de baja interacción, es suficiente considerar el cociente  $k_L a / (1 - \beta)$  para eliminar los efectos de la velocidad del gas. En efecto, en esta zona el gas tiene poca influencia sobre el líquido, que se supone fluye en régimen laminar, haciendo que  $k_L$  permanezca casi constante.



$\beta$  según la correlación de Ellman et al. (1990)

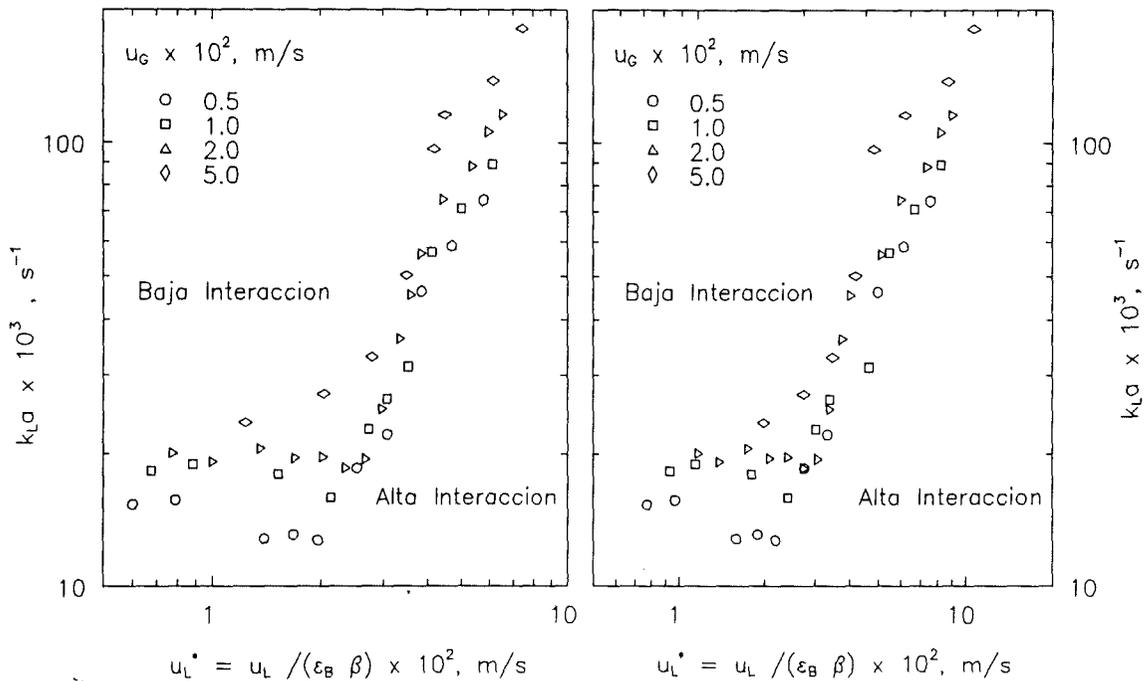
**Figura 5.6** Representación de  $k_L a / [(1 - \beta) u_L^n]$  frente a  $u_G$ .

Por otro lado, Fukushima y Kusaka (1977a) encuentran, a partir de mediciones experimentales del área específica de la interfase gas-líquido, que el cociente  $a / (1 - \beta)$  sólo depende de la velocidad del líquido. El cociente  $a / [(1 - \beta) \epsilon_B]$  es la superficie de la interfase gas-líquido por unidad de volumen de lecho ocupada por la fase gas ( $\epsilon_G$ ). Así pues, resta únicamente encontrar un medio de corregir el efecto de la velocidad del gas en la zona de alta interacción.

Lakota y Levec (1990) demuestran que el coeficiente  $k_S$  sólo depende de la velocidad real del líquido,  $u_L^* = u_L / \epsilon_L = u_L / (\epsilon_B \beta)$ . A partir de sus resultados, concluyen que el coeficiente  $k_S$  está afectado por la velocidad del gas

únicamente en la medida que  $u_G$  afecta a la retención dinámica de líquido.

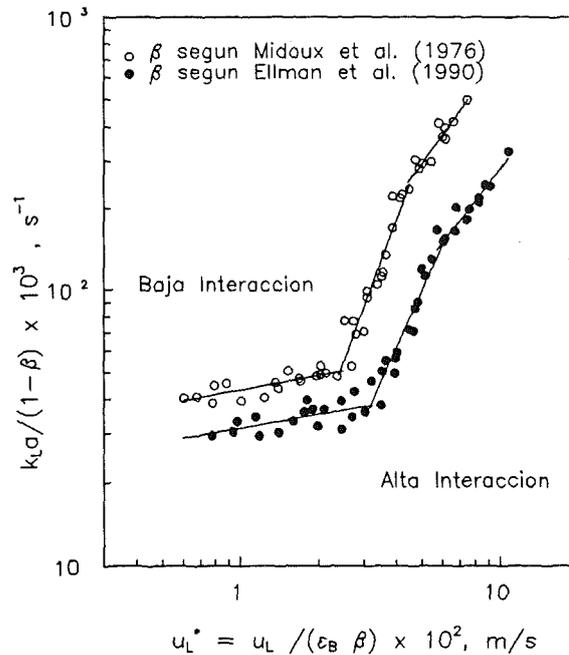
Proponemos aquí que  $k_L$  depende de la velocidad real de la fase líquida y, por tanto, del número de Reynolds calculado a partir de  $u_L^*$ . No obstante, en la figura 5.7, donde se representa  $k_L a$  frente a  $u_L^*$ , se observa una clara diferencia entre los valores para cada velocidad de gas, incluso para la zona de baja interacción.



(a)  $\beta$  según la correl. de Midoux et al. (1976) (b)  $\beta$  según la correl. de Ellman et al. (1990)

**Figura 5.7** Coeficientes volumétricos en función de la velocidad real del líquido.

La figura 5.8 es una combinación de las dos anteriores, representando el cociente  $k_L a / (1 - \beta)$  frente a  $u_L^*$ . Mediante esta representación gráfica, los datos experimentales convergen sobre una única recta para cada régimen de flujo (escurrido, transición y pulsante). Estos resultados coinciden con los de Ruether *et al.* (1980) para  $k_S a_S$  (ver tabla 5.6). En la figura 5.8 se observa una dispersión de los puntos menor cuando se utiliza la retención externa total (correlación de Midoux *et al.*, 1976). Las rectas son, sin embargo, prácticamente paralelas para los dos casos considerados.



**Figura 5.8** Coeficientes volumétricos corregidos por la retención del líquido en función de la velocidad del líquido.

$$k_L a / (1 - \beta) = A (u_L^*)^B.$$

Se concluye que la influencia de la velocidad del gas sobre  $k_L a$  puede justificarse en términos de la variación de la retención dinámica de líquido, incluso en la zona de transición. No obstante, debe remarcarse que, en esta zona, los valores del coeficiente de transferencia de materia dependen de la historia fluido-dinámica del lecho. En efecto, la figura 5.9 muestra valores de  $k_L a$  obtenidos para  $u_G = 0.02$  m/s. Para esta velocidad de gas, se obtuvieron datos en condiciones diferentes de operación, con y sin inundación previa del lecho.

La dependencia del comportamiento del lecho escurrido de su historia fluido-dinámica ha sido comentada anteriormente. Herskowitz y Smith (1978) recomiendan la preinundación del lecho para obtener mejor reproducibilidad de los datos de distribución del flujo de líquido. Es asimismo conocido, el fenómeno de histéresis en la pérdida de carga del flujo bifásico a través del lecho en el régimen de baja interacción (Kan y Greenfield, 1978; Christensen *et al.*, 1986; Levec *et al.*, 1988). Los datos correlacionados en las figuras 5.3 a 5.8 corresponden a los obtenidos con preinundación del lecho.

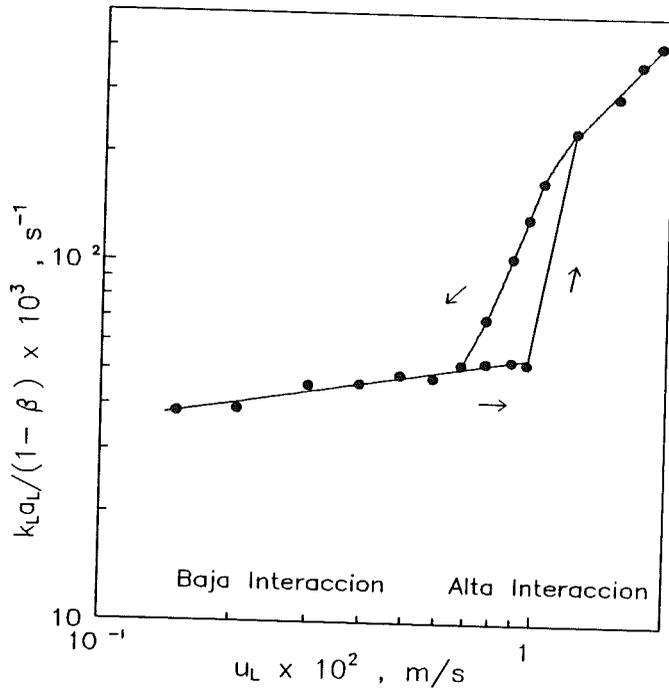


Figura 5.9 Datos de  $k_L a$  con y sin preinundación ( $u_G = 0.02$  m/s).

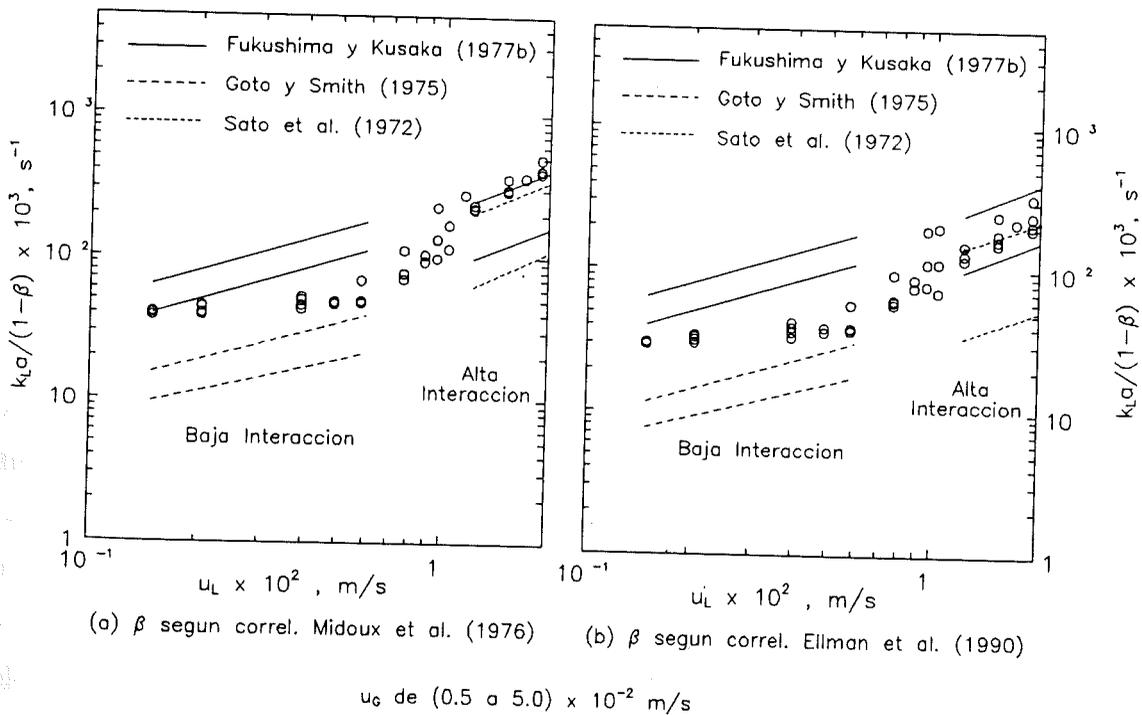


Figura 5.10 Comparación de los datos propios con los predichos por diferentes correlaciones.

En la figura 5.10 se comparan los resultados con algunas de las correlaciones de la literatura. Se utilizan las correlaciones disponibles en función de  $u_L$  y  $u_G$ . Para la zona de baja interacción, los datos se encuentran entre el intervalo predicho por la correlación de Goto y Smith (1975a) y el correspondiente a la de Fukushima y Kusaka (1977b). Para la zona de alta interacción, la correlación de Fukushima y Kusaka (1977b) predice relativamente bien el margen de datos obtenidos. Los coeficientes calculados con la correlación de Sato *et al.* (1972), son menores a los medidos experimentalmente para el rango inferior de velocidades de gas.

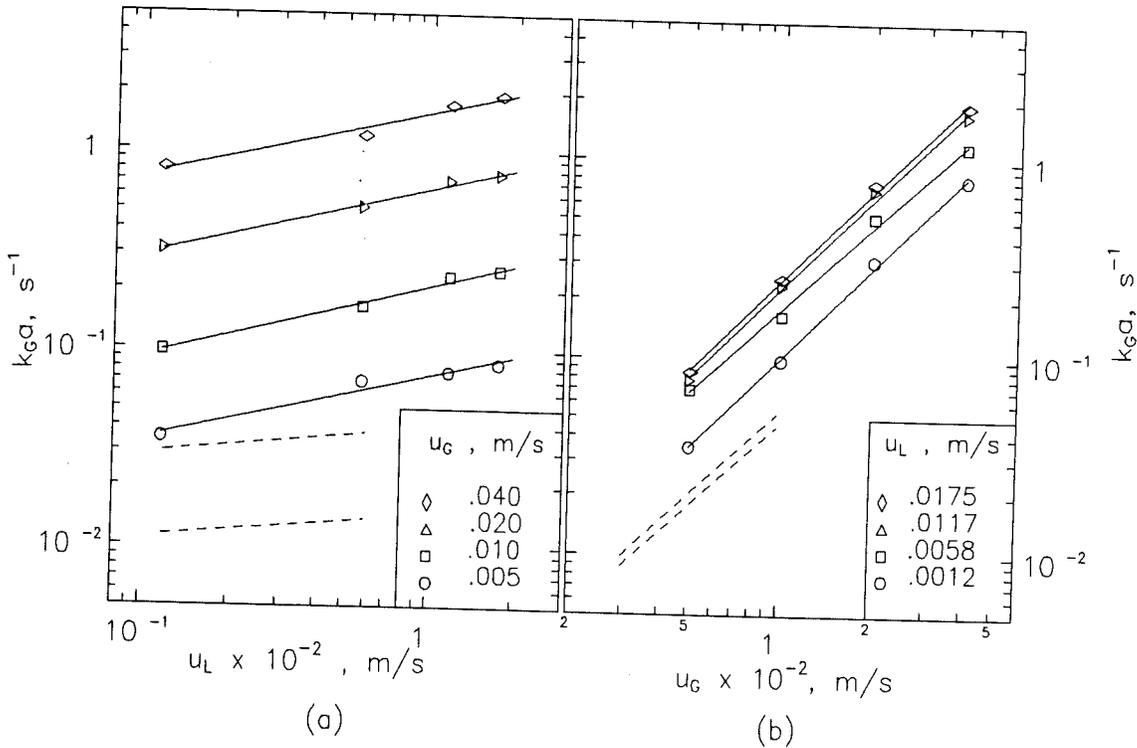
### 5.3.2 Coeficiente lado gas, $k_G a$ .

En el capítulo 3, se argumentó que el coeficiente medido para la desorción de *ter*-butanol, corresponde al coeficiente pelicular lado gas. Esto puede confirmarse a partir de los resultados obtenidos del mismo modo que el apartado anterior. En el peor de los casos, alta velocidad de gas y baja velocidad de líquido, se obtiene:  $k_G a H_A / k_L a < 0.10$ . Por lo que, al menos el 90 % de la resistencia a la transferencia de materia en la interfase G/L es debida al lado gas.

**Tabla 5.11** Coeficientes volumétricos de transferencia de materia para la desorción de *ter*-butanol (lecho preinundado).

$u_G \times 10^2$ , m/s	0.5	1.0	2.0	5.0	
$u_L \times 10^2$ , m/s	$(k_G a)_A \times 10^3$ , s <sup>-1</sup>				
0.117	35	98	313	808	baja
0.580	69	164	517	1187	interacción
1.170	77	232	711	1706	alta
1.750	85	251	765	1914	interacción

En la figura 5.11 se representan los valores experimentales de  $k_G a$ . En primer lugar cabe resaltar que los puntos se ajustan a rectas prácticamente paralelas. Esto sugiere que puede utilizarse una correlación en función de potencias de  $u_G$  y  $u_L$ .



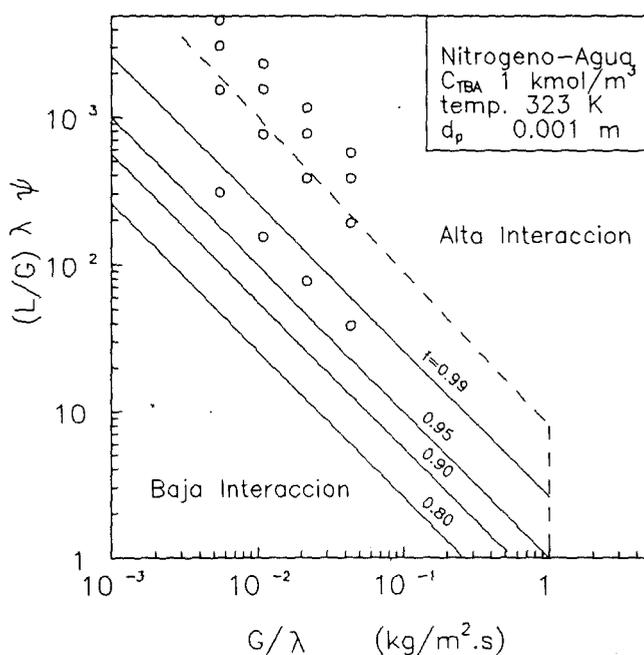
**Figura 5.11** Coeficientes volumétricos de desorción de *ter*-butanol. Línea discontinua: Goto *et al.* (1975) ( $d_p=0.541$  mm); (a)  $u_G = 0.004$  y  $0.008$  m/s; (b)  $u_L = 0.0021$  y  $0.0058$  m/s).

Se comparan los resultados con los de Goto *et al.* (1975). Aunque éstos son sensiblemente inferiores, su variación con  $u_L$  y  $u_G$  es semejante a la de los valores experimentales de este trabajo. Los puntos obtenidos corresponden a diferentes regímenes de flujo, tal como se observa en la figura 5.12. Sin embargo, no se aprecia ningún cambio en el orden de magnitud de  $k_G a$  o en la pendiente respecto a las velocidades de gas y líquido dentro del margen de error experimental. Debido a esto, se utiliza una única correlación para ambos tipos de régimen, tal como hicieron Yaici *et al.* (1988).

En las figuras 5.13a y 5.13b, se observa una fuerte influencia de las

velocidades del gas y del líquido sobre el cociente  $k_G a / (1-\beta)$ . Se comparan los valores experimentales con los predichos por las correlaciones de Fukushima y Kusaka (1978) y Yaici *et al.* (1988). Los puntos experimentales se sitúan entre ambas predicciones cuando se utiliza la retención externa total de líquido (correlación de Midoux *et al.*, 1976). Las potencias de  $u_G$  y  $u_L$  son las siguientes:

	$u_G$	$u_L$
Fukushima y Kusaka (1978)	0.6	0.7
Yaici <i>et al.</i> (1988)	0.9	0.3
este trabajo	1.0	0.75

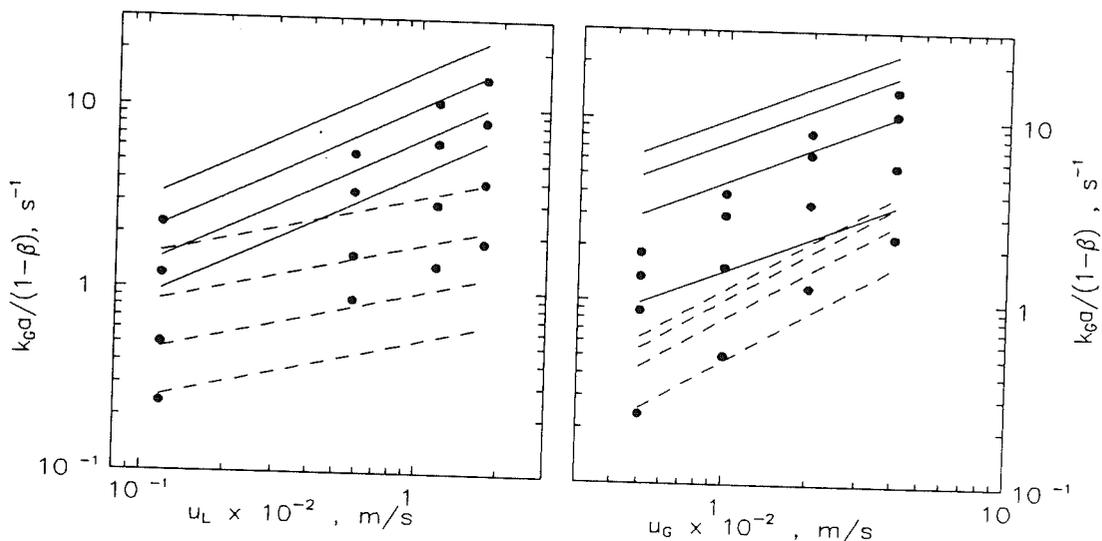


**Figura 5.12** Situación de los puntos experimentales en el mapa de Tosun (1984a) en la desorción de *ter*-butanol ( $f$  según la correlación de Mills y Duduković (1981);  $\lambda$ ,  $\psi$  ver definición en la nomenclatura).

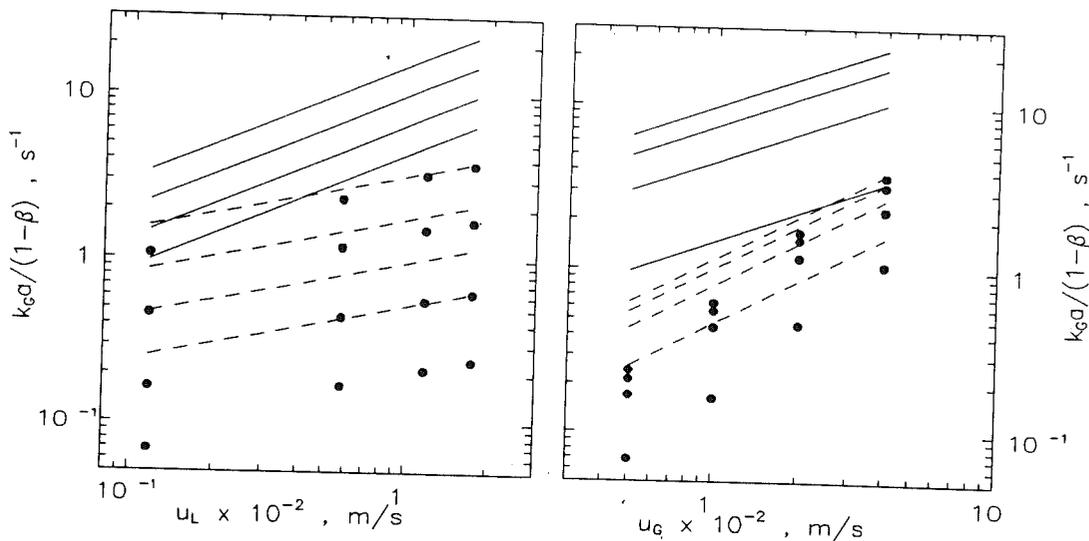
Los resultados experimentales muestran una variación con  $u_G$  semejante a la propuesta por Fukushima y Kusaka (1978) (obtenida en el régimen de flujo pulsante) y una potencia de  $u_L$  parecida a la propuesta por Yaici *et al.* (1988), quienes determinaron  $k_G a$  en la transición entre el flujo escurrido y pulsante.

Siguiendo el mismo criterio expuesto para  $k_L$  y apoyándonos en los

trabajos de Sharma y colaboradores (ver revisión bibliográfica), se propone aquí que  $k_G$  sólo depende de la turbulencia real de la fase gas y, por tanto, de la velocidad real del gas,  $u_G^* = u_G/[\epsilon_B(1-\beta)] = u_G/\epsilon_G$ . En la figura 5.14, se representa  $k_G a/(1-\beta)$  frente a  $u_G^*$ . Los puntos experimentales no ajustan a una sola recta, por tanto  $k_G a/(1-\beta)$  depende de la velocidad del líquido.



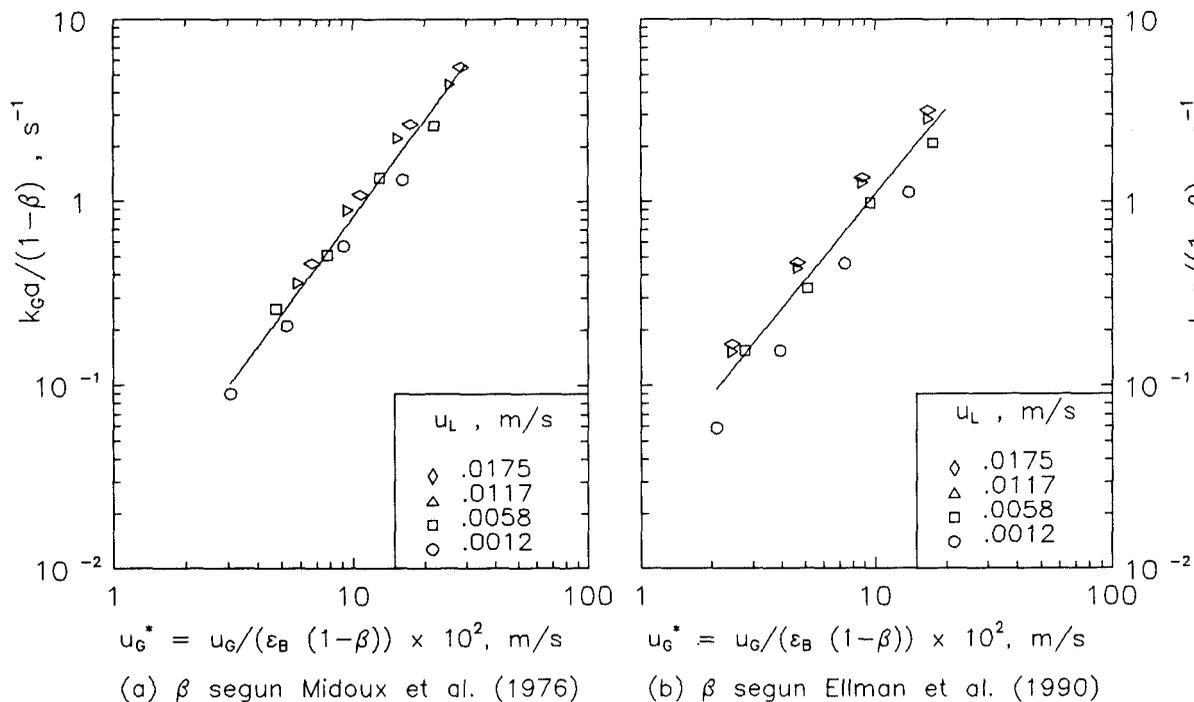
(a)  $\beta$  según Midoux et al. (1976).



(b)  $\beta$  según Ellman et al. (1990).

**Figura 5.13. Coeficientes lado gas para la desorción de *ter*-butanol corregidos por la retención de líquido.**

línea continua: según correlación de Fukushima y Kusaka (1978).  
 línea de trazos: según correlación de Yaici *et al.* (1988).



**Figura 5.14** Coeficientes lado gas, corregidos con la retención de líquido, en función de la velocidad real del gas.

### 5.3.3 Correlaciones Propuestas.

A partir de la consideración conjunta de los datos propios para  $k_L a$  y  $k_G a$  y de los datos de otros autores para  $k_S a_S$ ,  $k_L a$  y  $k_G a$  comentados en la revisión bibliográfica, se pueden hacer varias observaciones sobre el transporte de materia entre fases en un reactor de lecho fijo escurrido.

Los coeficientes  $k_S a$  y  $k_L a$  experimentan un cambio en el orden de magnitud al pasar del flujo escurrido al pulsante. Este fenómeno no ha sido observado para  $k_G a$ .

En los mapas fluido-dinámicos, el cambio de régimen depende principalmente de la velocidad del líquido, estando poco afectado por la velocidad del gas.

La variación de  $a/(1-\beta)$  respecto a  $u_L$  y  $u_G$  debe ser la misma, tanto si se mide  $k_L a$  como si se mide  $k_G a$ . Como el cambio de  $k_G a$  es gradual entre ambos

tipos de flujo, se deduce que no hay un cambio brusco en  $a/(1-\beta)$ . Entonces, el salto observado en  $k_L a$ , puede atribuirse al coeficiente  $k_L$ . Lo mismo ocurre para  $k_S a_S$ . La superficie interfacial líquido-sólido cambia gradualmente al cambiar el factor de mojado dentro del régimen de flujo escurrido y se mantiene constante una vez alcanzado el mojado total, lo que ocurre antes de alcanzar el flujo pulsante. Como tanto  $k_S$  como  $k_L$  dependen principalmente de la turbulencia de la fase líquida, concluiremos que al pasar de la zona de baja a la de alta interacción, la turbulencia del líquido aumenta significativamente, mientras que la del gas cambia gradualmente.

Esta conclusión coincide con Satterfield *et al.* (1978) quienes afirman que el líquido circula en régimen laminar para el flujo escurrido y turbulento para el flujo pulsante y el gas circula siempre en régimen turbulento.

Se propone aquí que  $k_L$  está controlado por difusión molecular en la zona de baja interacción, no dependiendo de  $u_L$  ni de  $u_G$ . En tal caso, a partir de los datos experimentales (figura 5.8), puede deducirse la variación de  $a/(1-\beta)$  respecto a  $u_L^*$ . Utilizando la correlación de Midoux *et al.* (1976) para el cálculo de  $\beta$ , se obtiene.

$$\frac{a}{1-\beta} \propto (u_L^*)^{0.174} \quad (5.2)$$

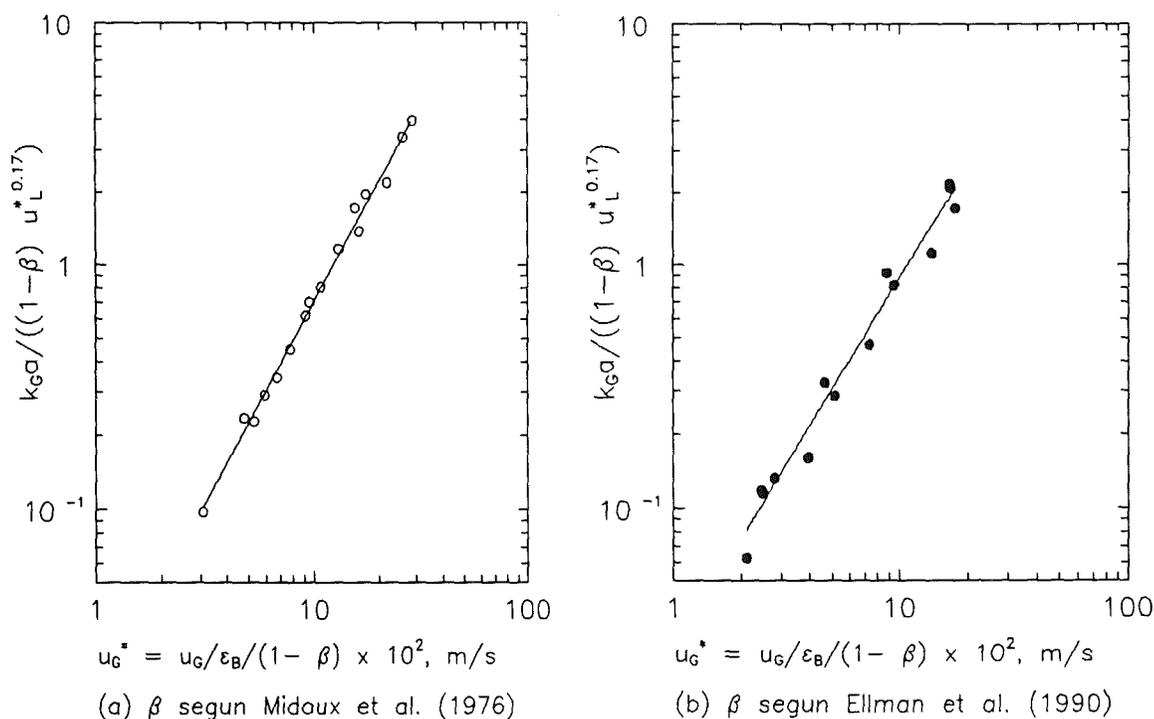
y en consecuencia,

$$k_L \propto (u_L^*)^{2.40} \quad \text{flujo de transición} \quad (5.3)$$

$$k_L \propto (u_L^*)^{1.15} \quad \text{flujo pulsante} \quad (5.4)$$

Se propone, además, que  $k_G$  sólo depende de  $u_G^*$ . En tal caso, al representar  $k_G a / [(1-\beta)u_L^{*0.174}]$  frente a  $u_G^*$ , debe obtenerse una sola recta para todos los puntos experimentales. En efecto, en la figura 5.15 se observa un excelente ajuste que confirma todo lo anterior, obteniéndose:

$$k_G \propto (u_G^*)^{1.65} \quad (5.5)$$



**Figura 5.15** Correlación de los coeficientes lado gas en función de la velocidad real del gas.

Goto *et al.* (1975) obtuvieron, también, una potencia mayor que la unidad para la velocidad del gas, afirmando que no existe explicación teórica para ello. Goenaga *et al.* (1986) obtuvieron un resultado semejante para el coeficiente global  $K_L a$  en función de la velocidad del gas en el régimen de alta interacción. En el modelo propuesto para la hidratación de isobuteno en reactor de lecho fijo escurrido (capítulo 6), se utilizan las siguientes correlaciones:

$$\frac{k_L a d_p}{1 - \beta} = 0.09594 (u_L^*)^{0.174} \quad 0.006 < u_L^* < 0.024 \quad (5.6)$$

$$\frac{k_L a d_p}{1 - \beta} = 716.7 (u_L^*)^{2.572} \quad 0.024 < u_L^* < 0.046 \quad (5.7)$$

$$\frac{k_L a d_p}{1 - \beta} = 15.16 (u_L^*)^{1.317} \quad 0.046 < u_L^* < 0.090 \quad (5.8)$$

$$\frac{k_G a d_p}{1 - \beta} = 70.43 (u_L^*)^{0.174} (u_G^*)^{1.65} \quad 0.03 < u_G^* < 0.30 \quad (5.9)$$

donde  $\beta$  ( $= \epsilon_L/\epsilon_B$ ) está estimada a partir de la correlación de Midoux *et al.* (1976) y las velocidades de gas y líquido se definen según:

$$u_L^* = \frac{u_L}{\epsilon_L} \quad (5.10)$$

$$u_G^* = \frac{u_G}{\epsilon_B - \epsilon_L} \quad (5.11)$$

## 5.4 Nomenclatura.

$a$	Area específica de la interfase gas-líquido, m <sup>2</sup> de interfase / m <sup>3</sup> de lecho
$a_p$	Area específica de las partículas, m <sup>2</sup> de superficie / m <sup>3</sup> de partícula
$a_s$	Area específica efectiva de la interfase líquido-sólido, m <sup>2</sup> de interfase / m <sup>3</sup> de lecho
$a_t$	Area específica del sólido corregida por $d_p^*$ , tabla 5.2, m <sup>-1</sup>
$B_n$	Número de Bond, tabla 5.2.
$C$	Concentración molar, kmol/m <sup>3</sup>
$D$	Difusividad molecular del gas en el líquido, m <sup>2</sup> /s
$d_e$	Diámetro efectivo de partícula, $6/a_p$
$d_h$	Diámetro hidráulico, tabla 5.2
$d_p$	Diámetro de partícula, m
$d_p^*$	Diámetro de partícula corregido por el efecto pared
$d_T$	Diámetro del tubo, m
$E$	Energía disipada por el flujo mono o bifásico, W/m <sup>3</sup>
$f$	Factor de mojado, fracción de la superficie de las partículas bañada por el líquido
$g$	Aceleración de la gravedad, m/s <sup>2</sup>
$f_{GL}$	Factor de fricción para el flujo bifásico
$G$	Caudal másico superficial del gas, kg/m <sup>2</sup> .s

$Ga$	Número de Galileo, tabla 5.2
$H$	Constante de la ley de Henry [= $(C_G / C_L)_{eq}$ ]
$K_0$	Número de Kolmogorov, tabla 5.4
$k_G$	Coefficiente de transferencia de materia en la interfase gas-líquido, lado gas, m/s
$k_L$	Coefficiente de transferencia de materia en la interfase gas-líquido, lado líquido, m/s
$K_G$	Coefficiente global de transferencia de materia en la interfase gas-líquido, m/s
$K_L$	Coefficiente global de transferencia de materia en la interfase gas-líquido, m/s
$k_s$	Coefficiente de transferencia de materia en la interfase líquido-partícula.
$L$	Caudal másico superficial del líquido, kg/m <sup>2</sup> .s
LFE	Lecho Fijo Escurrido
$Re$	Número de Reynolds, tablas 5.1, 5.2 y 5.4
RLFE	Reactor de Lecho Fijo Escurrido
$Sh$	Número de Sherwood, tabla 5.4
$Sc$	Número de Schmidt, tabla 5.1
$S_p$	Superficie de partícula, m <sup>2</sup> $S_p/d_p^2$ = factor de forma del sólido
$T$	Temperatura, K
$u$	Velocidad de flujo, m/s
$u^*$	Velocidad real, ecuaciones 5.10 y 5.11, m/s
$V$	Volumen de lecho, m <sup>3</sup>
$We$	Número de Weber, tablas 5.1 y 5.4
$Z$	Parámetro para la correlación de $\delta_{LG}$ , tabla 5.1
$\beta$	Cociente $\epsilon_L/\epsilon_B$ , m <sup>3</sup> de líquido / m <sup>3</sup> de lecho no ocupado por el relleno
$\delta$	Gradiente de presión por fricción, Pa/m

$\epsilon_B$	Fracción del volumen de lecho libre de partículas sólidas, $m^3$ espacio vacío / $m^3$ de lecho
$\epsilon_G$	Retención externa de gas, fracción del volumen de lecho ocupado por el gas no alojado en el interior de las partículas, $m^3$ gas / $m^3$ lecho
$\epsilon_L$	Retención externa de líquido, fracción del volumen de lecho ocupado por el líquido no alojado en el interior de las partículas, ( S = estática, D = dinámica ) $m^3$ líquido / $m^3$ lecho
$\epsilon_p$	Porosidad de las partículas
$\kappa$	Parámetro de la correlación de Ellman <i>et al.</i> (1990), tabla 5.2
$\lambda$	Parámetro de las coordenadas de Baker, fig. 5.4 $\lambda = [(\rho_G \rho_L) / (\rho_{aire} \rho_{agua})]^{1/2}$
$\mu$	Viscosidad dinámica, Pa.s
$\xi$	Parámetro de la correlación de Ellman <i>et al.</i> (1990), tabla 5.2
$\xi_{GL}$	Potencia disipada por el flujo bifásico por unidad de volumen de lecho, m.c.a./ $m^3$
$\rho$	Densidad, $kg/m^3$
$\rho_e$	Densidad del fluido manométrico, $kg/m^3$
$\sigma$	Tensión superficial, N/m
$\chi$	Parámetro de Lockhart-Martinelli, $(\delta_L/\delta_G)^{0.5}$
$\psi$	Parámetro de las coordenadas de Baker, fig.5.4 $\psi = (\sigma_{agua}/\sigma_L) [(\mu_L/\mu_{agua}) (\rho_{agua}/\rho_L)^2]^{1/2}$

## Subíndices:

A, TBA	Alcohol butílico terciario
B	Isobuteno
L	Líquido
G	Gas
GL	Flujo bifásico gas-líquido