

UNA REVISIÓN CRÍTICA DE LA TRANSFERENCIA DE CALOR EN SISTEMAS TRICKLE-BED

María José Taulamet*, Néstor Javier Mariani,

Guillermo F. Barreto, Osvaldo M. Martínez

PROIRQ, Departamento de Ingeniería Química,
Facultad de Ingeniería, Universidad Nacional de La Plata,
La Plata, Argentina,

Centro de Investigación y Desarrollo en Ciencias Aplicadas “Dr. J. J. Ronco”
(CINDECA) CONICET- UNLP - CCT La Plata

Calle 47 No. 257, CP B1900AJK, La Plata, Argentina

Email: mtaulamet@gmail.com

Resumen. En diversos sistemas en los cuales se emplean reactores de lecho fijo con flujo bifásico descendente (trickle-bed) la transferencia de calor cumple un rol significativo en el comportamiento del reactor. La información bibliográfica para predecir la capacidad de transferencia de calor es errática. En este trabajo se ha llevado a cabo una revisión crítica sobre el conocimiento del tema. Se han analizado métodos experimentales para la obtención de datos, modelos empleados para la interpretación de los mismos y correlaciones propuestas. Se determinaron inconsistencias en numerosas correlaciones, falencias en el conocimiento, tanto de información experimental como de correlaciones, y se propusieron nuevas correlaciones para la conductividad térmica efectiva radial del lecho.

Palabras clave: Reactores trickle-bed, Transferencia de calor, modelo bidimensional pseudohomogéneo.

1. Introducción

Los reactores trifásicos de lecho fijo con flujo descendente de gas y líquido, trickle-bed (RTB), son extensamente utilizados en plantas químicas, petroquímicas, en la

* A quien debe enviarse toda la correspondencia

industria petrolera, en procesos bioquímicos, electroquímicos y de tratamiento de efluentes (Ranade y col., 2011).

A pesar de su extensa utilización, la simulación de estas unidades dista de poder llevarse adelante en forma totalmente confiable, siendo la complejidad fluidodinámica una de las principales razones que genera incertidumbre. La fluidodinámica se caracteriza a través de diferentes parámetros que, por su parte, afectan fuertemente los parámetros de transporte destinados a representar el comportamiento del lecho. Entre los mismos, se destacan aquellos que definen la transferencia de calor.

En diversos procesos como la síntesis de MIBK (metil-isobutil cetona), o el proceso SMDS (Shell Middle Distillates Synthesis) que convierte gas natural a hidrocarburos sintéticos mediante una síntesis de tipo Fischer-Tropsch (Krishna y Sie, 1994), es necesario transferir calor con un medio externo, utilizando RTB de tipo multitubular. En estos casos la transferencia de calor se convierte en un proceso determinante del comportamiento global del reactor. En otros sistemas, en los cuales se emplean reactores adiabáticos, se requiere el conocimiento de la capacidad de transferencia de calor en el interior del propio lecho, evaluada a través de una conductividad térmica efectiva radial. En estos casos la problemática se revela a través de la posibilidad de aparición de puntos calientes localizados al llevar a cabo reacciones exotérmicas (Ranade y col., 2011), por una insuficiente capacidad de dispersión de calor del lecho. Finalmente, la transferencia de calor juega un papel relevante en los reactores de escala laboratorio y banco cuando se estudia el comportamiento de un catalizador, dado que suele requerirse que el reactor trabaje en forma isotérmica. A pesar de la importancia que adquiere en estas situaciones una correcta evaluación de la transferencia de calor, no se dispone de herramientas completamente confiables que permitan llevar a cabo la estimación de los parámetros que posibilitan dicha evaluación.

En este contexto, en nuestro grupo se lleva a cabo el estudio de la transferencia de calor en RTB a partir de dos caminos complementarios. Por una parte, se planteó la realización de una revisión crítica de toda la información abierta disponible sobre el tema y, por otra parte, la realización de estudios experimentales sistemáticos, que permitan alcanzar correlaciones confiables de los parámetros de transferencia de calor.

El objetivo de esta contribución es presentar las conclusiones sobre la revisión de la bibliografía abierta disponible y proponer nuevas correlaciones para algunos de los parámetros de transferencia de calor.

La revisión comprende:

- análisis de diferentes métodos experimentales empleados en el estudio de transferencia de calor en RTB,
- características de los sistemas estudiados (fluidos, geometría y tamaños de partícula y tubo, condiciones de trabajo),
- modelos empleados para la regresión de datos experimentales,
- datos experimentales disponibles,
- modelización de los parámetros empleados para representar la transferencia de calor y correlaciones propuestas.

Dado que la mayor parte de los trabajos emplean un modelo bidimensional pseudohomogéneo para la interpretación de los datos experimentales, la revisión se centró en los dos parámetros que presenta dicho modelo: conductividad térmica efectiva radial (k_{er}) y coeficiente de transferencia de calor en la pared (h_w).

2. Sistemas experimentales

Pueden emplearse diferentes tipos de equipos experimentales. La principal diferencia se encuentra al definirse si se estudia la transferencia de calor a nivel local (partícula) o del lecho. Teniendo en cuenta que el interés está centrado en este último nivel, solo se analizarán los sistemas experimentales empleados con este último fin.

El sistema experimental más empleado consiste en transferir calor a través de la pared de un tubo cilíndrico relleno, por el cual circulan en co-corriente descendente ambas fases fluidas. A partir de este esquema tradicional se encuentran diferentes alternativas, las que están vinculadas al funcionamiento del equipo y las medidas de temperatura realizadas. La fuente (o sumidero) externa de energía puede ser un fluido (con o sin cambio de fase) o una fuente que entrega energía a una velocidad definida (por ej. una resistencia eléctrica). Las medidas de temperatura también presentan variantes. Las mediciones de la alimentación pueden ser de una única temperatura o en diferentes posiciones. Aunque para la salida se mide siempre la distribución radial de temperatura,

la misma puede realizarse en una posición angular y axial única o en diferentes posiciones axiales y/o angulares. Finalmente, la última variante se refiere a la medida, realizada o no, y al número de posiciones axiales empleadas, de la temperatura de pared. La información experimental obtenida con este sistema permite calcular un coeficiente global de transferencia de calor (con un medio externo) o bien valores de conductividad térmica efectiva y coeficiente de pared, si se emplea un modelo bidimensional.

Una segunda alternativa empleada para analizar exclusivamente la conductividad térmica efectiva radial ha sido trabajar con un lecho adiabático, alimentado, al menos, con dos corrientes de líquido. En una posición se ingresan la corriente líquida fría y en otra la caliente. Crine (1982) utilizó un lecho cilíndrico, alimentando la corriente caliente en el centro y la fría en una corona circular. De acuerdo a la descripción de su procedimiento experimental el gas tenía una entrada común de ambas regiones y por lo tanto una única temperatura. Grosser y col. (1996), en cambio, utilizaron un lecho de sección cuadrada, introduciendo en una mitad ambas corrientes frías (gas y líquido) y en la otra mitad ambas corrientes calientes. Con cualquiera de las variantes, al fluir por el lecho, se produce la mezcla lateral de las corrientes, generándose un perfil de temperatura en la dirección perpendicular al flujo de los fluidos. Se debe verificar que los efectos de mezclado no alcancen las paredes laterales del recipiente. Las medidas de temperatura en las posiciones adecuadas permiten estimar un valor para la conductividad térmica efectiva radial del lecho en dirección perpendicular al flujo principal.

A pesar de las diferencias experimentales, los valores de conductividad térmica efectiva radial obtenidos mediante las diferentes alternativas pueden ser comparados. Detalles adicionales se encuentran en las publicaciones originales. En la Tabla 1 se presentan los trabajos experimentales relevados en bibliografía y las condiciones de trabajo utilizadas.

3. Modelos utilizados para la interpretación de los datos experimentales

Cuando se emplea la primera de las alternativas experimentales mencionadas, transferencia de calor con un medio externo, el modelo unidimensional pseudohomogéneo es el más simple que puede plantearse para ajustar los datos

experimentales. Este modelo, de un único coeficiente global de transferencia de calor, ha sido extensamente empleado en lechos rellenos con flujo de una única fase. El parámetro obtenido es un excelente indicador para evaluar la capacidad global de transferencia de calor de un lecho. Sin embargo, ha sido escasamente empleado en los estudios con flujo bifásico, donde mayoritariamente se ha empleado un modelo bidimensional pseudohomogéneo, que se retendrá para la continuidad de la revisión.

Tabla 1: Características geométricas y del relleno

Autor	Geometría del relleno	d_p [mm]	L [m]	$a = d_t / d_p$
Hashimoto y col. (1976) (H76)	Esferas	2.6/4.8/4.4	1	28.38/15.38/ 16.77
Specchia y Baldi (1979) (SB79)	Esferas	6/12.9	0.35	23.5/10.93 16.79
	Anillos	6 x 6		
Matsuura y col. (1979a y b) (M79)	Esferas	1.2/2.6/4.3	0.6	63.33/29.23/ 17.67
Crine (1982)	Esferas	2.2	0.97	272.73
Grosser y col. (1996) (G96)	Esferas	11.1/15.0/25.4/ 5.5/4.5/2.0	1.06	18.92/14/8.27/ 38.18/46.67/105
Lamine y col. (1996) (L96)	Esferas	2.0/6.0	1	50/16.67
Babu y col. (2007a y b) (B07)	Esferas	4.05/6.75/ 2.59	0.715	12.35/7.41/ 1.93
	Anillos Raschig	4.0/6.75		
Mariani y col. (2001) (M01)	Esferas	1.5/3.0/6.3/ 11.0	0.27/0.47/ 0.87	34.27/17.13/ 8.16/4.67
		3.0	1	33.33
Borremans y col. (2003)	Esferas	1.5 (Largo: 3.5)	1	43.48 26.32/16.13/
	Cilindros			
Pinto Moreira (2004) (PM04)	Esferas	1.9/3.1/4.4	0.1/0.2 /	11.36
	Cilindros	5 (Largo: 3.5)	0.3	10
	Paralelepípedos	2.9 x 5.5 x 5.5		9.26

La ecuación utilizada en la representación del modelo bidimensional pseudohomogéneo es:

$$(G_L C_{PL} + G_G C_{PG}^*) \left[\frac{\partial T}{\partial z} \right] = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[k_{er} r \frac{\partial T}{\partial r} \right] \quad (1)$$

G_L y G_G son los flujos de gas y líquido, C_{PL} la capacidad calorífica del líquido y C_{PG}^* una capacidad calorífica modificada de la corriente gaseosa (Mariani, 2000)

Dado que el flujo de calor en el eje del tubo es nulo (simetría angular), es:

$$\frac{\partial T}{\partial r} = 0 \quad \text{en } r=0 \quad (1a)$$

La otra condición de borde y la de entrada ameritan un análisis más detallado. La estructura de los lechos rellenos presenta una marcada diferenciación en la zona cercana a la pared, producto del efecto "ordenador" de la misma sobre el acomodamiento de las partículas. Esta condición modifica el comportamiento fluidodinámico y, en consecuencia, afecta los parámetros de transporte (Dixon, 2012). La alternativa más utilizada para tener en cuenta esta característica ha sido la incorporación de un coeficiente de transferencia de calor en la pared, simultáneamente con el empleo de un valor constante de conductividad térmica efectiva radial (Lemcoff y col., 1990). Este enfoque ha sido extendido a sistemas con flujo bifásico. Tomando como referencia la temperatura de pared resulta:

$$k_{er} \frac{\partial T}{\partial r} = h_w (T_w - T) \quad \text{en } r = R_T \quad (1b)$$

Para la condición de entrada, la situación más sencilla es asumir una temperatura de entrada uniforme en cualquier posición radial y angular y, en el caso de flujo bifásico, que además existe equilibrio térmico entre el gas y el líquido, lo que se expresa como:

$$T(r) = \bar{T}_0 \quad \forall r, \quad \text{en } z = 0 \quad (1c)$$

Con esta condición de entrada y asumiendo en la (1b) un valor constante para la temperatura de pared, T_w , situación que requiere ser verificada experimentalmente, el perfil de temperatura en el lecho resulta:

$$\frac{T_w - T}{T_w - \bar{T}_0} = 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{J_0(b_n r/R_T) \exp(-b_n^2 y)}{b_n [1 + (b_n/Bi)^2]} J_1(b_n) \quad (2)$$

siendo $y = \frac{\pi k_{er}}{(G_L C_{PL} + G_G C_{PG}^*) A_T} z$; $Bi = (h_w R_T) / k_{er}$

$$b_n \text{ son las raíces positivas de la ecuación: } Bi J_0(b_n) = b_n J_1(b_n) \quad (2a)$$

En este caso aparecen dos parámetros de ajuste, k_{er} y h_w . Esta ha sido una de las alternativas más empleada en el estudio de transferencia de calor en lechos rellenos con

flujo bifásico descendente. Variantes a este modelo básico han sido considerar que la temperatura de entrada no es uniforme (Mariani, 2000; Pinto Moreira y col., 2006) o emplear como referencia la temperatura del fluido de intercambio en lugar de la de pared (Mariani, 2000).

Una alternativa para la condición de borde en la pared es imponer un valor del flujo de calor q_c , resultando la expresión:

$$k_{er} (\partial T / \partial r) = q_c \quad \text{en } r = R_T \quad (3)$$

Midiendo T_w es posible calcular el coeficiente de transferencia de calor en la pared:

$$h_w = q_c / [T_w - T(r=R_t)] \quad (4)$$

El segundo de los procedimientos experimentales corresponde a la utilización de un equipo adiabático donde se alimentan dos corrientes de fluidos (esencialmente la fase líquida) a diferentes temperaturas. Para el sistema experimental empleado por Crine (1982) (un recipiente cilíndrico, alimentando en un disco central la corriente caliente y en la corona circundante la corriente fría), la ecuación diferencial del sistema sigue siendo la (1), y la condición en el eje la (1a). En $r=R_t$ se establece una condición de adiabaticidad, mientras que la condición de entrada es la que "identifica" la diferencia de temperatura en las dos corrientes de alimentación, resultando:

$$T = T_1 \quad z=0 \quad 0 \leq r \leq R_1 \quad (5a)$$

$$T = T_0 \quad z=0 \quad R_1 \leq r \leq R_t \quad (5b)$$

siendo R_1 el radio limitante entre la zona de alimentación de fluido caliente (T_1) y frío (T_0). La resolución de la ecuación diferencial con estas condiciones de contorno conduce a una serie infinita, aunque algo diferente a la de la ec. (2) (Crine, 1982).

Por su parte, Grosser y col. (1996) emplearon un recipiente de sección cuadrada (lo que les permitió emplear coordenadas cartesianas), alimentando en cada mitad del mismo la corriente fría o la corriente caliente. La ecuación diferencial empleada fue:

$$(G_L C_{PL}) \left[\frac{\partial T}{\partial z} \right] = k_{er} \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} \quad (6)$$

Para la condición de borde en la dirección y se asumió que cada corriente permanece con su temperatura de alimentación en una condición suficientemente alejada del límite entre corriente fría y caliente. La condición inicial, acorde a la alimentación del sistema

experimental, es $T = T_1$ ($y < 0$) y $T = T_0$ ($y > 0$). La resolución de este sistema se encuentra en Grosser y col. (1996).

Las alternativas que emplean un lecho adiabático solo permiten obtener la conductividad térmica efectiva radial.

4. Discusión y análisis de resultados de los datos experimentales y correlaciones disponibles

Del análisis previo surge que en la literatura se encuentra una oferta relativamente importante de datos experimentales de los parámetros de transferencia de calor en RTB. Asimismo, se han alcanzado correlaciones de los parámetros de transferencia de calor, a partir de datos experimentales de los propios autores, a partir de desarrollos teóricos o empleando metodologías específicas, como redes neuronales y una gran base de datos. La posibilidad de comparar resultados, correlaciones y/o generar una base de datos, requiere de un análisis meticuloso y a partir de ciertos criterios. Un aspecto esencial es definir cual es el significado físico del parámetro de transferencia de calor, dentro del modelo planteado en el cual aparece dicho parámetro. Esto genera que el modelo empleado y el análisis de los datos experimentales son más determinantes que el propio sistema experimental.

4.1. Conductividad térmica efectiva radial

4.1.1. Correlaciones propuestas

El enfoque mayoritariamente utilizado para correlacionar la conductividad térmica efectiva radial del modelo bidimensional pseudohomogéneo, es el de proponer una correlación del tipo polinómica, donde se visualizan los aportes de las distintas fases. Una alternativa propuesta por Larachi y col. (2003), ha sido la utilización del método *ANN* (Artificial Neural Network). Un procedimiento alternativo fue empleado por Crine (1982), pero no se retendrá para su análisis porque los parámetros del modelo solo son aplicables a las condiciones de trabajo del propio autor. Otro procedimiento para alcanzar correlaciones de los parámetros de transferencia de calor fue propuesto por Babu y col. (2007b), donde se propone el modelado del sistema a través de un modelo

de resistencias. Este enfoque fue empleado correctamente por Dixon (1985) en lechos rellenos con flujo monofásico. La aplicación realizada por Babu y col. (2007b) en lechos con flujo bifásico presenta errores en su desarrollo, por lo que las correlaciones resultantes no serán retenidas en la continuidad de esta revisión.

Expresiones de tipo polinómicas

En diversos trabajos se ha extendido el enfoque empleado para sistemas con flujo monofásico (Lemcoff y col., 1990), incluyendo el aporte de la segunda fase fluida; de esta manera pueden identificarse tres aportes a la conductividad térmica efectiva radial:

- ❖ k_{e0} : conductividad efectiva estanca (sin flujo de fluidos).
- ❖ k_{eL} : contribución del flujo de líquido debida a la mezcla lateral
- ❖ k_{eG} : contribución del flujo de gas debida a la mezcla lateral

Una forma generalizada y abarcativa de este tipo de enfoque conduce a la expresión

$$k_{er} = k_{e0} + a \gamma \text{Re}_G^c \text{Pr}_G^d k_G + b \text{Re}_L^e \text{Pr}_L^f k_L \quad (7)$$

donde k_G y k_L las conductividades de gas y líquido, γ una relación de capacidades caloríficas (Mariani, 2000), a y b son funciones de los parámetros fluidodinámicos y de la estructura y forma del relleno y al igual que c , d , e y f deben, en principio, ajustarse.

Si bien esta expresión general es la base de diferentes correlaciones, existen diferencias apreciables entre las mismas. El aporte estanco ha sido despreciado ($k_{e0}=0$) por Grosser y col. (1996) y por Pinto Moreira (2004). Otros autores lo incluyen, pero no existe un único enfoque. El aporte de la fase gaseosa, incluido como un término en el polinomio, ha sido despreciada (o sea se consideró $a=0$) por Chu y Ng (1985), Grosser y col. (1996), Lamine y col. (1996), Mariani y col. (2001) y Pinto Moreira (2004). Los autores que han retenido este término consideraron en todos los casos $c=d=1$. La influencia de la fase gaseosa también ha sido considerada en algunos casos en forma indirecta, afectando parámetros fluidodinámicos, como la retención de líquido, o el término del polinomio que considera el aporte de la fase líquida. Todos los autores incluyeron el aporte de la fase líquida como un término en el polinomio; las expresiones propuestas por cada autor, se presenta en la Tabla 2. Otra diferencia entre las correlaciones está referida al régimen de flujo. Algunas son aplicables a solo un

regimen, otras a todos los regimenes y en otros casos se presentan alternativas para régimen de baja (LIR) o alta (HIR) interacción.

Tabla 2: Correlaciones para la conductividad térmica efectiva radial

Autores	Régimen	Parámetro	
		b	e / f
H76 (*)	LIR / HIR	$\{0.197+[1.9 + 0.0264[d_e G_L / (\varepsilon \beta_T \mu_L)(\mu_L/\mu_o)]]^{-1}\}$	$\frac{d_e}{d_p}$ 1 / 1
SB79 (*)	LIR	$24.4 (\varepsilon \beta_T)^{0.87}$	0.13 / 1
	HIR	$0.003(\varepsilon \beta_T)^{-0.29} [a_v d_p / \varepsilon]^{2.7}$	0.325 / 1
M79 (*)	LIR / HIR	$0.2084 d_p^{-0.2207} [1 + 0.0492 \exp(-0.4821 d_p) Re_g]$	1 / 1
CN85 (**)	LIR	0.167	1 / 1
L96 (*)	LIR	$\{8 \beta_T [2 - (1 - 2/a)^2]\}^{-1}$	1 / 1
	HIR	$1.76 \beta_T^{2/3}$	(2/3)/(2/3)
G96 (*)	HIR	$2.1 Re_g^{-0.13} / (1-\varepsilon)^{0.57}$	0.7 / 0.2
M01 (*)	LIR	$0.281 (1 + 5.3 \cdot 10^{-3} Re_G)$	0.81 / 1
PM04 (*)	LIR / HIR	$7.59 \beta_T^{0.7} (d_p/d_i)^{0.08} (Z/d_i)^{-0.51} \phi^{-0.16} k_L^{-1}$	0.62 / 0
B07 (*)	LIR / HIR	$0.928 \varepsilon^{0.379} \beta_T^{0.342} (1-\beta_T)^{0.037} a_v^{0.008} Re_G^{-0.037}$	0.658 / 1

(*) Ver código en Tabla 1

(**) Chu y Ng (1985)

Correlaciones basadas en ANN (Artificial Neural Network)

La utilización de las ANN (*Artificial Neural Network*) para alcanzar una correlación de cualquier parámetro, y en particular los correspondientes a la transferencia de calor en RTB, ofrece algunas oportunidades de interés, aunque su desarrollo requiere de un análisis riguroso para asegurar el producto alcanzado. Dentro de la información abierta se puede citar el trabajo de Larachi et al. (2003) que emplea ANN para desarrollar una herramienta predictiva para el cálculo de la conductividad térmica efectiva radial. Se debe señalar que en el trabajo hay errores de tipeo. Estos fueron corregidos posteriormente por los propios autores, en consecuencia, se debe observar el *erratum* proporcionado en el sitio <http://www.gch.ulaval.ca/bgrandjean/tbr-pbc/tbr-pbc.html>.

4.1.2. Discusión sobre las correlaciones propuestas

Del análisis previo y la mera comparación de la evaluación de la conductividad térmica efectiva radial, empleando las correlaciones presentadas, se verifica la disparidad de valores estimados. En consecuencia, uno de los objetivos propuestos fue intentar dilucidar la validez de las correlaciones disponibles. Con este fin se emplearon tres herramientas. Una fue determinar si la predicción de la correlación analizada, respecto a la modificación de una variable, especialmente geométrica u operativa, era consistente con la tendencia general de los datos experimentales y el significado físico del parámetro. Incluso, aunque se lo tome con carácter cualitativo, este criterio es muy importante. La segunda herramienta fue apelar a la similitud del sistema con lechos rellenos con flujo monofásico, donde la información acumulada es mucho mayor (Dixon, 2012). Finalmente, la tercera herramienta fue comparar la predicción de las correlaciones con datos experimentales disponibles, para lo cual se buscó generar una base de datos, lo más amplia posible, tratando de verificar, hasta donde la información publicada lo permite, la consistencia de los mismos. La aplicación de estas herramientas se limitó a sistemas donde se empleaban como fluidos agua y aire y esferas como relleno. Esta elección se fundó exclusivamente en el volumen de información disponible para dicho sistema. Por razones de extensión, solo se presentarán las conclusiones alcanzadas para diferentes correlaciones, sin presentar el detalle del análisis realizado.

En la correlación de Pinto Moreira (2004) se presenta la siguiente dependencia de la conductividad térmica efectiva radial con d_t : $k_{er} \propto d_t^{0.43}$. La dependencia de la conductividad con el diámetro de tubo es inversa a la postulada para sistemas monofásicos, donde al aumentar la relación de aspecto (d_t/d_p), se verifica que k_{er} es independiente de d_t , y no encuentra ningún sustento físico. Asimismo, esta dependencia es inversa a la observada tomando datos experimentales de Crine (1982) y Borremans y col. (2003), obtenidos en recipientes con un diámetro muy diferente. Es consecuencia, no es posible retener la correlación de Pinto Moreira (2004) como una propuesta válida para la predicción de la conductividad térmica efectiva radial.

Chu y Ng (1985), a partir de un desarrollo teórico indican que hay un aumento de la conductividad térmica efectiva radial con el aumento de diámetro de partícula, d_p . En

lechos rellenos con flujo monofásico las correlaciones disponibles invariablemente conducen a que la conductividad térmica efectiva radial aumenta al aumentar d_p (Lemcoff y col., 1990), llegándose a que, para altas relaciones de aspecto, la relación es lineal. En trabajos experimentales en los cuales se analizó el impacto de d_p , por ej. Mariani y col., (2001) para LIR y Grosser y col. (1996) para HIR, se verificó un aumento de la conductividad térmica efectiva radial con d_p . La correlación de Specchia y Baldi (1979) para LIR predice una disminución, aunque no muy marcada, de la conductividad térmica efectiva radial al aumentar d_p , aunque este tipo de dependencia no se mantiene en HIR. Dado que las correlaciones presentadas por Specchia y Baldi (1979) fueron obtenidas a partir de sus propios datos experimentales, y presentan este tipo de inconsistencia, ni los datos experimentales ni sus correlaciones serán retenidos en la continuidad de la revisión. Al evaluar la conductividad térmica efectiva radial con la correlación de Larachi y col. (2003), basada en ANN, para diferentes diámetros de partícula (entre 1.5 y 6 mm) se verifica que al duplicar d_p , prácticamente se reduce a la mitad el valor predicho de la conductividad térmica efectiva radial. Nuevamente el comportamiento de la correlación es opuesto al esperable a partir de los desarrollos teóricos, datos experimentales e información de flujos monofásicos. En consecuencia, esta correlación tampoco puede retenerse como válida para análisis ulteriores.

En las correlaciones retenidas se verifica que, en forma cualitativa, la conductividad térmica efectiva radial aumenta con el caudal de líquido. En cambio, no existe ninguna tendencia definida respecto a la incidencia del caudal de gas.

Para analizar la capacidad predictiva de las correlaciones retenidas, se colectó una base de datos correspondiente al sistema agua/aire (o N_2) como fluidos y esferas como relleno. Se dividieron los datos en LIR y HIR empleando la correlación de Larachi y col. (1993) para identificar el régimen de flujo. Dado que el cambio de régimen entre LIR y HIR no siempre es perfectamente definido (suelen darse condiciones donde parte del lecho trabaja en LIR, la superior, y la inferior en HIR), se tomó el siguiente criterio: los datos de LIR son los que determina la correlación de Larachi y col. (1993) e incorporando, además, aquellos de HIR que están hasta un 20% de la zona de transición. En HIR solo se incorporaron los que efectivamente define la correlación como correspondientes a dicho régimen.

Para LIR los datos retenidos son 128. Las seis correlaciones analizadas (Hashimoto y col., 1976; Matsuura y col., 1979, Chu y Ng, 1985; Lamine y col., 1996; Mariani y col., 2001 y Babu y col, 2007a) presentaron errores promedios entre 20 y 30 %, siendo las correlaciones de Lamine y col. (1996) y Mariani y col. (2001), las que tienen menores errores. En general no se observó una adecuada distribución de errores, con tendencias a subestimar o sobreestimar, los valores calculados respecto a los experimentales.

Para el análisis de datos experimentales en HIR se retuvieron 221 datos experimentales. Las cinco correlaciones analizadas (Hashimoto y col., 1976; Matsuura y col., 1979, Lamine y col., 1996; Grosser y col., 1996; y Babu y col, 2007a) presentaron errores promedios entre 15 y 40 %, siendo claramente la correlación de Lamine y col. (1996) la que presenta menores errores. Nuevamente no se observó una adecuada distribución de errores.

Los datos de Grosser y col. (1996) fueron retenidos en una primera instancia pero, dado que introducían errores muy importantes en todas las estimaciones y con comportamientos diferenciados respecto al otro conjunto de datos, se eliminaron.

4.1.3. Propuesta de nuevas correlaciones

Teniendo en cuenta el análisis previo, disponiendo de una base de datos más amplia que la utilizada para la generación de las correlaciones de Tabla 2, se consideró apropiado realizar la propuesta de nuevas correlaciones para la predicción de la conductividad térmica efectiva radial. Para LIR, se propuso la siguiente expresión:

$$k_{er} = k_{e0} + b^* \beta^p Re_L^e Pr_L^f k_L \quad (8)$$

Por la base de datos empleadas, donde el líquido era siempre agua, el exponente del Pr_L se fijó como $f=1$ (Mariani y col., 2001). El término k_{e0} se calcula con la expresión propuesta por Mariani (2000). La correlación de Larachi y col. (1991) es la propuesta para evaluar la saturación del líquido (β). El ajuste de los datos experimentales condujo a los siguientes valores de los parámetros:

$$b^* = 0.1057 \quad ; \quad p = -0.9354 \quad ; \quad e = 0.9745 \quad (8a, b, c)$$

En la Figura 1 se presenta el *parity plot*, señalando la fuente de cada dato experimental. El error promedio resulta del 17.77 %, no observándose desviaciones

marcadas (77 desviaciones positivas y 53 negativas). El aporte del líquido resulta dominante en el proceso de transferencia de calor representado por la conductividad térmica efectiva radial. La no inclusión de un término que contemple la influencia del gas en el término del aporte del líquido (fijar $p=0$) conduce a un ajuste con una menor dependencia de la conductividad efectiva con Re_L , para "compensar" la no inclusión del holdup, y a un error mayor. Este tipo de inclusión de la fase gaseosa, o sea sin un término propio en el polinomio de la ec. (8), y la necesidad de incluirlo en el término del líquido, sugiere que en estas condiciones la incidencia de la fase gaseosa se debe esencialmente a su impacto sobre la fluidodinámica del sistema y no a su aporte directo sobre la transferencia de calor.

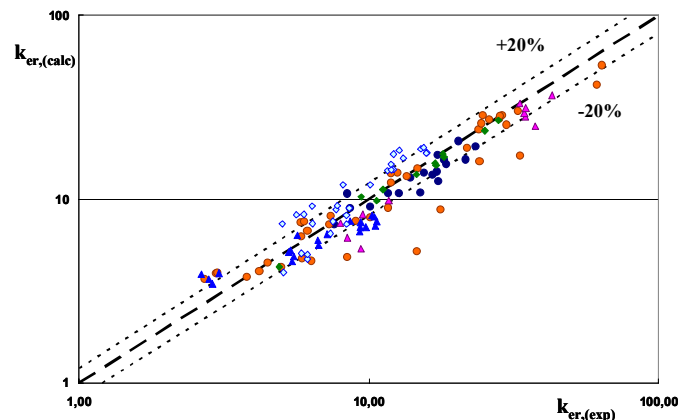


Figura 1: Comparación de datos de k_{er} experimentales y calculados con la ec. (8).

Régimen LIR. Fuente de datos experimentales:

- Hashimoto y col. (1976)
- Matsuura y col. (1979)
- ▲ Crine (1982)
- ▲ Lamine y col. (1996)
- ◇ Mariani y col. (2001)
- ◆ Borremans y col. (2003)

El régimen HIR engloba condiciones fluidodinámicas más variadas (régimenes pulsante, pero que pueden aproximarse a niebla o burbuja) que LIR, lo que hace más complejo definir un modelo con una base física razonable. En estas condiciones, se propuso la siguiente expresión empírica a efectos de realizar el ajuste:

$$k_{er} = k_{e0} + b_h^* \beta^{hp} Re_G^{hg} Re_L^{he} Pr_L^f k_L \quad (9)$$

Nuevamente el exponente del Pr_L se fijó como $f=1$. El término k_{e0} se calcula con la expresión de Mariani (2000) y se utiliza la correlación de Larachi y col. (1991) para evaluar la saturación del líquido. El ajuste de los datos experimentales condujo a los siguientes valores de los parámetros:

$$b_h^* = 0.07692 \quad hp = - 2.1441 \quad hg = - 0.2292 \quad he = 1.0013 \quad (9a, b, c, d)$$

En la Figura 2 se presenta el *parity plot* de valores calculado versus experimentales, individualizándose la fuente de cada dato experimental (el sistema experimental de Colli Serrano, 1993, es idéntico al de Lamine y col., 1996). El error promedio es de 9.85 %, con 121 errores positivos y 98 negativos.

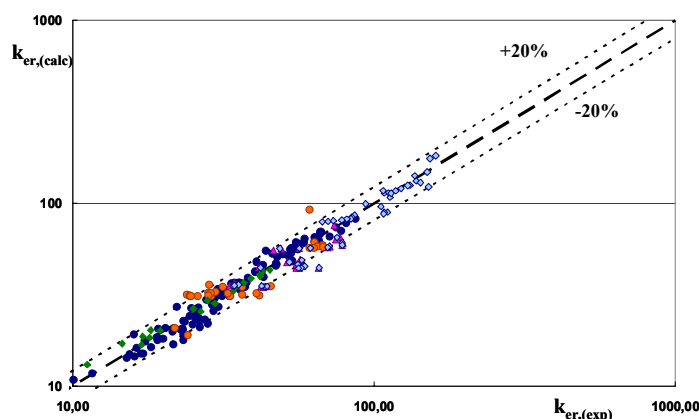


Figura 2: Comparación de datos de k_{er} experimentales y calculados con la ec. (9). Régimen: HIR. Fuente de datos experimentales:

- Hashimoto y col. (1976) ● Matsuura y col. (1979) ◆ Colli Serrano (1993)
- ▲ Lamine y col. (1996) ◆ Borremans y col. (2003)

4.2. Coeficiente de transferencia de calor en la pared

4.2.1. Correlaciones propuestas

Los resultados y correlaciones de sistemas de una única fase fluida, que están razonablemente bien desarrollados para la evaluación de la conductividad efectiva, presentan mucha mayor dispersión para la evaluación del coeficiente de transferencia de calor en la pared. No hay modelos mecanísticos plenamente aceptados y en general se adoptan expresiones equivalentes del Nusselt a las obtenidas en tubos sin relleno (Dixon, 2012). Sin duda se puede esperar una situación menos definida en un sistema más complejo como el de un lecho relleno con flujo bifásico, donde la influencia de las fases no solo se refleja en la transferencia de calor sino en el régimen de flujo y en la distribución de líquido en dirección radial (Ranade y col., 2011). Es esperable, y así sucede, una situación bastante caótica en cuanto al tipo de correlación propuesta y las predicciones que arrojen las mismas. Existen dos alternativas para presentar las

correlaciones: aquellas, mayoritarias, expresadas como un número de Nusselt (Muroyama y col., 1977; Matsuura y col., 1979b; Specchia y Baldi, 1979; Lamine y col., 1996; Mariani y col., 2001; Pinto Moreira, 2004) o presentarse como *ANN* (Larachi y col., 2003). Las expresiones propuestas se encuentran en los trabajos de los respectivos autores.

4.2.2. Discusión sobre las correlaciones propuestas

Para el régimen de baja interacción se analizó el comportamiento cuantitativo al modificar diferentes variables: caudal de líquido, de gas, diámetro de tubo y diámetro de partícula. Se consideró un sistema con partículas esféricas y tomando agua y aire como fluidos. En la Figura 3 se compara la predicción de las seis correlaciones mencionadas previamente (la correlación de Lamine y col., 1996 es válida solo para HIR).

Teniendo en cuenta las discrepancias en los valores predichos que muestra la Figura 3, y a efectos de determinar la consistencia de las correlaciones disponibles, se analizó su respuesta ante modificaciones de las características geométricas del sistema, d_p y d_t . Para lechos rellenos con flujo monofásico está aceptado, al menos cualitativamente, que h_w es poco sensible al valor de d_t (aumenta ligeramente), y que h_w disminuye cuando d_p aumenta. De acuerdo a la correlación de Pinto Moreira (2004) h_w aumenta significativamente al aumentar d_t , y sin posibilidades de que ese efecto se atenúe. Para la correlación de Specchia y Baldi (1979) h_w es independiente de d_t , pero se incrementa al aumentar d_p . La correlación de Muroyama y col (1977) presenta un comportamiento similar, verificándose una relación $h_w \propto d_p^{0.7}$ para $Re_L < 30$. La correlación de Matsuura y col. (1979) no tiene un comportamiento claramente identificable, porque depende fuertemente de las condiciones de trabajo. La correlación de Larachi y col. (2003) tiene un comportamiento totalmente errático ante variaciones en d_t y d_p , sin posibilidad de una explicación física, por tratarse del tipo *ANN*. De acuerdo a la correlación de Mariani y col. (2001), h_w es independiente de d_t (situación lógica para altas relaciones de aspecto) y aumenta al disminuir d_p , en acuerdo con las observaciones de flujo monofásico. Este análisis sugiere que las correlaciones disponibles, con excepción de la de Mariani y col. (2001) no presentan una dependencia consistente del coeficiente de

transferencia de calor en la pared con las variables geométricas, d_t y d_p , lo que las torna poco confiables a los fines predictivos.

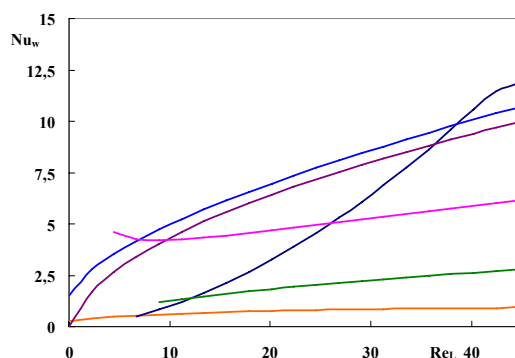


Figura 3: Comparación de valores de coeficiente de transferencia de calor en la pared evaluados a partir de diferentes correlaciones. Condiciones: fluidos aire y agua; $Re_G=4.3$; partículas esféricas de $d_p=0.003$ m; $d_t=0.00514$

— Muroyama y col. (1976) — Matsuura y col. (1979b) — Specchia y Baldi (1979)
 — Mariani y col. (2001) — Larachi y col. (2003) — Pinto Moreira (2004)

La cantidad, y calidad, de la información experimental es sustancialmente menor para el coeficiente de transferencia de calor en la pared que para la conductividad térmica efectiva radial. A pesar de esta situación, se pudo obtener una base de datos relativamente amplia (142 datos experimentales) para el sistema agua/aire con partículas esféricas en LIR. Sin embargo, la dispersión de datos experimentales es muy grande como para esperar un ajuste razonable con las correlaciones disponible, e incluso para buscar una nueva correlación, como se realizó para la conductividad térmica efectiva radial. En este contexto, la correlación de Mariani y col. (2001) aparece como una herramienta predictiva razonable, atento a la consistencia en cuanto a la dependencia de las variables geométricas y el rango de relaciones de aspecto empleado para la obtención de datos experimentales sobre los cuales se basó la obtención de la correlación.

Dentro de las correlaciones específicas para el régimen de alta interacción, cuyo número es escaso, la dependencia del coeficiente con el caudal de líquido (teniendo en cuenta que la retención aumenta, pero no fuertemente, con el caudal de líquido) es nula para Specchia y Baldi (1979), es algo menor a 0.8 para Muroyama y col. (1977) y es

mayor que uno para Lamine y col. (1996). Sumado a que la correlación de Lamine et al. (1996) es válida solo para sus condiciones de trabajo, parece poco probable adoptar una correlación como "recomendable" para el régimen de alta interacción.

4.2.3. Modelo de dos zonas para bajas relaciones de aspecto

Mariani y col. (2003) emplearon satisfactoriamente una condición de borde similar a la ec. (1b) cuando las relaciones de aspecto eran suficientemente altas (17.2 y 34.3), pero ese enfoque fallaba al utilizarlo en bajas (8.2) o muy bajas (4.7) relaciones de aspecto. Para la reevaluación de los datos de transferencia de calor a las menores relaciones de aspecto se propuso un modelo de dos zonas. Para la zona central el planteo fue similar al expuesto previamente, con una conductividad térmica efectiva radial constante. La zona cercana a la pared se extiende hasta un radio de partícula. En la misma se propone un perfil plano de temperatura, incluyéndose un coeficiente de transferencia de calor entre esta zona y la pared, correspondiente al que surge al considerar un film que moja la superficie. Entre ambas zonas se define un coeficiente de transferencia de calor entre el centro del lecho y la zona de la pared. La velocidad de líquido es diferente en ambas zonas, siendo mayor en la zona cercana a la pared. Este es un aspecto que debe incorporarse como información adicional para el tratamiento de los datos experimentales. Las ecuaciones del modelo y su resolución se encuentran en Mariani y col. (2003). Con este modelo se logró una adecuada interpretación de los resultados experimentales. Esta alternativa de tratamiento de la transferencia de calor en un lecho con flujo bifásico requiere estudios adicionales para otras condiciones de trabajo de las ya empleadas por Mariani y col. (2003), pero abre una perspectiva de interés para alcanzar mayor consistencia en el tratamiento del tema.

5. Conclusiones

Se llevó a cabo una revisión crítica sobre transferencia de calor en lechos rellenos con flujo bifásico descendente (trickle-bed). Se analizaron los métodos experimentales utilizados, modelos empleados para el análisis de los datos experimentales, reteniéndose el modelo bidimensional pseudohomogéneo y revisándose las correlaciones disponibles

de los parámetros de dicho modelo: conductividad térmica efectiva radial y coeficiente de transferencia de calor en la pared.

Se detectaron fuertes inconsistencias en correlaciones de bibliografía, lo que las torna poco confiables con fines predictivos. Esta misma inconsistencia da lugar al cuestionamiento de algunos de los datos experimentales a partir de los cuales se generaron dichas correlaciones.

La información experimental disponible se agrupó en una base de datos a partir de la cual se propusieron nuevas correlaciones para evaluar la conductividad térmica efectiva radial, tanto en régimen de baja como de alta interacción, cuando el relleno son partículas esféricas. En cambio, la información experimental, y correlaciones disponibles, del coeficiente de transferencia de calor en la pared presentan gran dispersión. Solo la correlación de Mariani y col (2001) presenta consistencia y resulta recomendable para relaciones de aspecto superiores a 15. Para menores relaciones de aspecto se ha planteado un modelo alternativo (Mariani y col., 2003) que tiene en cuenta la distribución no uniforme de líquido en dirección radial y resulta una alternativa de interés para el análisis de transferencia de calor en este sistema.

El relevamiento de la información experimental muestra una apreciable falencia de datos para partículas con geometrías diferentes a la esférica, lo que constituye un déficit importante, dado que en reactores trickle bed el empleo de partículas cilíndricas y multilobulares es frecuente. Asimismo, se destaca la escasa utilización otro tipo de fluidos, fuera de agua y aire, o estudios en condiciones diferentes a las ambientales.

Reconocimientos

Los autores agradecen el aporte financiero de las instituciones: ANPCyT- MINCyT (PICT'11 - 1641), CONICET (PIP 0304) y UNLP (PID). N.J.Mariani, O.M.Martínez y G.F.Barreto son investigadores del CONICET, M.J.Taulamet es becaria del CONICET.

Referencias

- Babu B. V., Rao V. G. (2007a). Thermal Resistance Models for Effective Heat Transfer Parameters in Trickle Bed Reactors. *Proceedings of Sixth International Symposium on Catalysis in Multiphase Reactors (CAMURE-6) and fifth International Symposium on Multifunctional Reactors (ISMR-5)*. NCL-Pune, January 14.
- Babu B. V., Shah K. J., Rao V. G. (2007b). Lateral mixing in trickle bed reactors. *Chem. Eng. Sci.*, 62, 7053.
- Borremans D., Rode S., Carré P. y Wild G. (2003). The influence of the periodic operation on the effective radial thermal conductivity in trickle bed reactors. *Can. J. Chem. Eng.*, 81 (3-4), 795.

- Chu C. F., Ng K. M. (1985) .Effective Thermal Conductivity in Trickle-Bed Reactors: Application of Effective Medium Theory and Random Walk Analysis. *Chem. Eng. Commun.*, 37, 127-140.
- Crine M. (1982). Heat Transfer Phenomena in Trickle-Bed Reactors, *Chem. Eng. Commun.*, 19, 99.
- Colli Serrano M.T. (1993). Hydrodynamique et transfert de chaleur dans un reacteur a lit fixe gas-liquide-solide., Ph.D. Thesis, *Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy (Francia)*.
- Dixon A.G. (1985). Thermal resistance models of packed-bed effective heat transfer parameters. *AIChE J.*, 31(5), 826
- Dixon A.G. (2012). Fixed bed catalytic reactor modeling - the radial heat transfer problem, *Can. J. Chem. Eng.*, 90, No 3, 505
- Grosser K., Carbonell R. G., Cavero A., Sáez A. E. (1996). Lateral Thermal Dispersion in Gas-Liquid Cocurrent Downflow through Packed Beds. *AIChE J.*, 42 (10), 2977.
- Hashimoto K., Murayoma K., Nagata S., Fujiyoshi K. (1976). Effective Radial Thermal Conductivity in Concurrent Flow of Gas and Liquid Through Packed Bed. *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 2, 53.
- Krishna R., Sie S. T. (1994). Strategies for Multiphase Reactor Selection. *Chem. Eng. Sci.*, 49 (24A), 4029.
- Lamine A. S., Gerth L., Le Gall H., Wild G. (1996). Heat Transfer in a Packed Bed Reactor with Cocurrent Downflow of a Gas and a Liquid. *Chem. Eng. Sci.*, 51 (15), 3813.
- Larachi F., Laurent A., Midoux N., Wild G. (1991). Experimental study of a trickle-bed reactor operating at high pressure: two-phase pressure drop and liquid saturation, *Chem. Eng. Sci.*, 46, No 5-6, 1233.
- Larachi F., Laurent A., Wild G., Midoux N. (1993). Effet de la pression sur la transition ruisselant-pulsé dans les réacteurs catalytiques à lit fixe arrosé. *Can. J. Chem. Eng.*, 71, No 2, 319.
- Larachi F., Belfares L., Iliuta I., Grandjean B. P. A. (2003) Heat and Mass Transfer in Cocurrent Gas-Liquid Packed Beds. Analysis, Recommendations, and New Correlations. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 42, 222
- Lemcoff N.O., Pereira Duarte S.I., Martínez O.M. (1990). Heat Transfer in fixed bed, Rev. in Chem. Eng., 6, 229
- Mariani N.J. (2000). Transferencia de calor en sistemas multifásicos, *Tesis Doctoral, Universidad Nacional de La Plata*.
- Mariani N. J., Martínez O. M., Barreto G. F. (2001) Evaluation of Heat Transfer Parameters in Packed Beds with Cocurrent Downflow of Liquid and Gas. *Chem. Eng. Sci.*, 56 No.21-22, 5995
- Mariani N.J., Mazza G.D., Martínez O.M., Cukierman A.L., Barreto G.F. (2003). On the influence of liquid distribution on heat transfer parameters in trickle bed systems, *Can. J. Chem. Eng.*, 81, No 3, 814
- Matsuura A., Hitaka Y., Akehata T., Shirai T. (1979a). Effective Radial Thermal Conductivity in Packed Beds with Gas-Liquid Downflow. *Kagaku Kogaku Rombunshu*, 5, 269.
- Matsuura A., Hitaka Y., Akehata T., Shirai T. (1979b). Aparent Wall Heat Transfer Coefficient in Packed Beds with Donward Cocurrent Gas-Liquid Flow., *Kagaku Kogaku Rombunshu*, 5, 263.
- Muroyama K., Hashimoto K., Tomita T. (1977). Heat Transfer from the Wall in Gas-Liquid Cocurrent Packed Beds. *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 3, 612.
- Pinto Moreira, M. F. (2004). Avaliação de aspectos fluidodinâmicos e da transferência de calor em leito fixo com escoamento gás – líquido concorrente vertical. *Tesis Doctoral, Universidad Federal de São Carlos*.
- Pinto Moreira M.F., Ferreira M.C., Teixeira Freire J. (2006). Evaluation of pseudohomogeneous models for heat transfer in packed beds with gas flow and gas–liquid cocurrent downflow and upflow, *Chem. Eng. Sci.*, 56, 6, 5995
- Ranade V. V., Chaudhari R. V., Gunjal, P. R. (2011) *Trickle Bed Reactors - Reactor Engineering and Applications*, Elsevier.
- Specchia V., Baldi G. (1979). Heat Transfer in Trickle-bed Reactors. *Chem. Eng. Commun.*, 3, 483.