



Universidad
Zaragoza

Trabajo Fin de Máster

Estudio fluidodinámico de la fase gas en un Reactor
de Lecho Fluidizado de Dos Zonas con Cambio de
Sección (RLFDZ-CS):

Experimentación, modelado matemático y
simulación mediante CFD

Autor

Ignacio Julián Burillo

Directores

Miguel Menéndez Sastre

Javier Herguido Huerta

Escuela de Ingeniería y Arquitectura (EINA)

2012

AGRADECIMIENTOS

Aprovecho estas líneas para agradecer la confianza que los doctores Miguel Menéndez y Javier Herguido han depositado en mí para llevar a cabo el presente Trabajo Fin de Máster, etapa inicial de la Tesis Doctoral que ahora comienzo en el laboratorio de Ingeniería de Reactores Químicos. Agradezco su apoyo y sus consejos, así como su atención y disponibilidad. Agradezco a mis compañeros de laboratorio los buenos ratos que hemos pasado en torno al “dos zonas” y a mi familia y amigos por interesarse y tratar de comprender en qué consisten mis “estudios fluidodinámicos”. Agradezco a Elisa, de modo especial, su apoyo y comprensión en los buenos y malos momentos.

ESTUDIO FLUIDODINÁMICO DE LA FASE GAS EN UN REACTOR DE LECHO FLUIDIZADO DE DOS ZONAS CON CAMBIO DE SECCIÓN (RLFDZ-CS): EXPERIMENTACIÓN, MODELADO MATEMÁTICO Y SIMULACIÓN MEDIANTE CFD

RESUMEN

El Reactor de Lecho Fluidizado de Dos Zonas con Cambio de Sección (RLFDZ-CS), recientemente patentado por la Universidad de Zaragoza, ha sido propuesto como una solución efectiva para llevar a cabo reacciones catalíticas heterogéneas en las cuáles el catalizador sufre una rápida desactivación por deposición de coque sobre su superficie activa.

La integración de reacción catalítica y regeneración del catalizador en un mismo lecho fluidizado es posible debido a la circulación de las partículas de catalizador entre las dos zonas de lecho sometidas a atmósferas reactiva y regenerativa, respectivamente. Dicha circulación de sólido está causada por las burbujas de gas, que generan un transporte axial de partículas en el interior del lecho fluidizado.

El estudio de la formación y el crecimiento de burbujas de gas proporciona una valiosa información sobre el comportamiento fluidodinámico de un reactor de lecho fluidizado y determina las condiciones de diseño del mismo.

Entre las variables que determinan el tamaño de las burbujas de gas y, por tanto, la circulación de catalizador en el lecho, están la velocidad del gas de fluidización introducido en cada una de las entradas de gas al lecho, la geometría del reactor (el ángulo de cambio de sección entre zonas reactiva y regenerativa) y el tipo de partículas de catalizador a utilizar.

El objetivo principal del presente trabajo es llevar a cabo un estudio fluidodinámico de la fase gas en un RLFZ-CS a fin de establecer unas condiciones de trabajo que garanticen el buen comportamiento de la fluidización en dicho reactor.

La metodología utilizada para alcanzar el objetivo final del trabajo se detalla a continuación:

- a) Puesta a punto del sistema de medida experimental de burbujeo.
- b) Determinación del perfil axial de tamaños de burbuja experimental mediante análisis digital de imágenes (DIA).
- c) Post-procesado de imágenes para relacionar la velocidad de las burbujas con su tamaño y posición.
- d) Modelado matemático de la evolución axial del tamaño y velocidad de burbuja. Comparativa de resultados experimentales con correlaciones clásicas.
- e) Validación de simulaciones fluidodinámicas llevadas a cabo en un simulador CFD con los resultados experimentales anteriores.

ÍNDICE

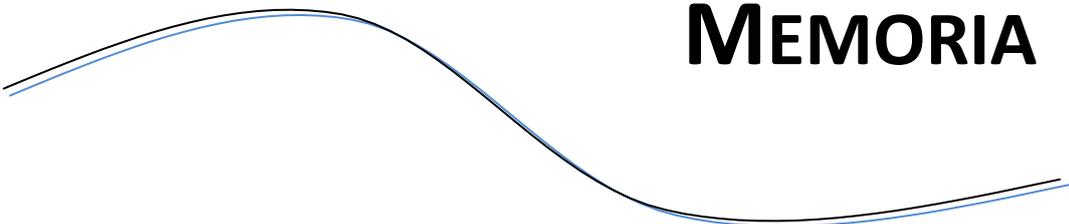
MEMORIA

CAPÍTULO I: Introducción y Objetivos	1
<i>I.1 Introducción.....</i>	1
<i>I.2 Objetivos.....</i>	2
CAPÍTULO II: Antecedentes	3
CAPÍTULO III: Procedimiento experimental.....	7
<i>III.1 Sistema experimental.....</i>	7
<i>III.2 Análisis digital de vídeos de burbujeo</i>	8
<i>III.3 Modelado matemático.....</i>	10
<i>III.4 Simulación fluidodinámica con software CFD</i>	12
CAPÍTULO IV: Resultados y Discusión	15
<i>IV.1 Perfil axial de tamaños de burbuja</i>	15
<i>IV.2 Perfil de velocidades de burbuja</i>	21
CAPÍTULO V: Conclusiones y Propuestas de futuro.....	27
<i>V.1 Conclusiones.....</i>	27
<i>V.2 Propuestas de futuro.....</i>	28
NOMENCLATURA.....	29
BIBLIOGRAFÍA.....	33

ANEXOS

ANEXO A: Reactores de lecho fluidizado.....	43
<i>A.1 Reactores de lecho fluidizado. Generalidades</i>	43
<i>A.2 Aplicación y desarrollo de los reactores de lecho fluidizado</i>	45
<i>A.3 Reactores de lecho fluidizado de dos zonas</i>	46
<i>A.4 Reactores de membrana</i>	49
ANEXO B: Líneas de investigación en RLFZ.....	51
<i>B.1 RLFZ como solución a la desactivación catalítica</i>	51
<i>B.2 Resultados relevantes en RLFZ.....</i>	54
ANEXO C: Caracterización de las partículas fluidizadas.....	57
<i>C.1 Distribución de tamaños de partícula (d_p).....</i>	57

C.2 Determinación de u_{mf}	59
C.3 Densidad y porosidad del lecho	60
C.4 Clasificación de los sólidos de Geldart.....	60
ANEXO D: Análisis digital de imágenes	63
D.1 Análisis digital de burbujeo en grabaciones experimentales.....	63
D.2 Análisis digital de burbujeo en simulaciones fluidodinámicas.....	71
D.3 Estacionalidad en el régimen de burbujeo simulado	76
ANEXO E: Modelado hidrodinámico para un RLFZD-CS.....	79
E.1 Generación de perfiles axiales del tamaño de burbuja promedio.....	79
E.2 Comparativa de perfiles $d_b(z)$ experimentales con correlaciones empíricas	80
E.3 Descripción del comportamiento hidrodinámico en la zona de transición de un RLFZD-CS.....	82
E.4 Descripción del modelo matemático para predecir el perfil $d_b(z)$ en un RLFZD-CS	83
E.5 Adaptación del modelo propuesto para predecir el perfil $u_b(z)$ en un RLFZD-CS.....	88
ANEXO F: Simulación fluidodinámica en Ansys CFX.....	91
F.1 Etapa de pre-procesado.....	91
F.2 Etapa de resolución	95
F.3 Etapa de post-procesado	97
ANEXO G: Análisis hidrodinámico. Resultados adicionales	99
G.1 Influencia de la geometría del RLFZD-CS en el perfil de tamaños de burbuja para la zona de transición en el lecho.	99
G.2 Limitaciones del modelo MW + J en condiciones de fluidización extremas.....	101



MEMORIA

CAPÍTULO I

INTRODUCCIÓN Y OBJETIVOS

1.1 Introducción

El Reactor de Lecho Fluidizado de Dos Zonas con Cambio de Sección (RLFDZ-CS), patentado por la Universidad de Zaragoza, ha sido propuesto como una solución efectiva para integrar reacción catalítica y regeneración del catalizador en un mismo lecho fluidizado. Esta integración de procesos resulta especialmente útil en aquellas reacciones catalíticas en las que intervienen hidrocarburos y el catalizador sufre una rápida desactivación por deposición de coque sobre su superficie activa.

El fundamento radica en la alimentación fraccionada de gas en el lecho. Por un punto intermedio de éste se introduce una corriente de gas reactivo, mientras que por la parte inferior del mismo se alimenta una corriente de gas oxidante. De este modo se inducen dos atmósferas diferentes en un mismo lecho fluidizado (reductora y oxidante) y la circulación de partículas de catalizador entre ambas zonas del lecho permite mantener una actividad catalítica constante a lo largo del tiempo. En la zona superior del lecho tiene lugar la reacción catalítica que genera, como subproducto, un depósito carbonoso (coque) sobre la superficie activa del catalizador mientras que en la zona inferior del lecho se produce la combustión de dicho coque obteniéndose partículas de catalizador regeneradas y nuevamente activas para desarrollar la actividad catalítica en la zona superior.

Dado que la formación y el crecimiento de burbujas de gas en el lecho de partículas son los causantes de la fluidización y, por tanto, los responsables de la circulación axial de sólidos entre las distintas regiones del lecho fluidizado, el régimen de burbujeo determina la eficiencia de la integración de procesos en un RLFZD-CS.

Ante la inexistencia de estudios previos sobre el comportamiento fluidodinámico de reactores RLFZD con alimentación fraccionada de gas y un cambio de sección localizado en un punto intermedio del lecho, el presente proyecto constituye una primera aproximación al análisis del fenómeno de burbujeo en este tipo de reactores.

Para llevar a cabo el estudio hidrodinámico en esta novedosa configuración de reactor, se han realizado mediciones de burbujeo en frío en RLFZD-CS pseudo-bidimensionales. Mediante un método no invasivo (análisis óptico) se ha cuantificado el tamaño, la posición y la forma de las burbujas de gas en el lecho así como su velocidad ascensional en función de distintas variables de operación (velocidad de gas de fluidización, geometría del reactor o tipo de partículas utilizado). El análisis de imágenes en régimen de fluidización es una técnica ampliamente utilizada para llevar a cabo estudios fluidodinámicos en lechos burbujeantes [1-7].

El uso de un reactor pseudo-bidimensional puede considerarse representativo del comportamiento de una rodaja aislada de un lecho cilíndrico tridimensional, sin entrar a

valorar el efecto de las paredes frontal y trasera sobre la hidrodinámica del lecho. Así, con un análisis digital de imágenes de burbujeo, es posible realizar un estudio estadístico del perfil de tamaños de burbuja en función de la posición axial en el lecho y de la velocidad promedio de las burbujas en función de su tamaño y posición.

Los perfiles experimentales obtenidos se han comparado con diversas correlaciones empíricas existentes [8-9] para estimar los parámetros característicos de burbuja, diámetro equivalente (d_b) y velocidad (u_b), en lechos de sección constante. Las discrepancias encontradas en la predicción se deben a la singular geometría del RLFZD-CS. Para mejorar la estimación del perfil axial de d_b y u_b , en este trabajo se propone una nueva correlación basada en un modelo de flujo que tiene en cuenta la introducción de gas en un punto intermedio del lecho y el cambio de sección entre zonas del reactor. La mejora sustancial en la predicción de las propiedades de burbuja valida el modelo implementado.

El trabajo experimental se ha complementado con la realización de simulaciones fluidodinámicas en Ansys-CFX, un software comercial de fluidodinámica computacional (CFD). Estas simulaciones basadas en la resolución de ecuaciones diferenciales no lineales de Navier-Stokes estiman, para cada paso temporal, la fracción volumétrica ocupada por el gas y por el lecho (sólido disperso) en función de la posición en el reactor. Se establece un valor umbral de porosidad del lecho ($\varepsilon_{\text{lecho}}$) de modo que si éste se supera en una determinada región del lecho, dicha región se considera burbuja de gas [10]. De esta forma, es posible llevar a cabo el estudio de las propiedades de burbuja para el lecho simulado y establecer una comparativa entre los valores obtenidos experimentalmente, a partir de las simulaciones y según el modelo matemático propuesto.

La predicción satisfactoria de la evolución del tamaño y la velocidad de burbuja experimentales permite validar el método de simulación utilizado y lo convierte en una herramienta eficaz para evaluar el comportamiento fluidodinámico del RLFZD-CS en función de unas determinadas condiciones de operación.

1.2 Objetivos

El objetivo principal del presente trabajo es llevar a cabo un estudio fluidodinámico de la fase gas en un RLFZD-CS a fin de establecer unas condiciones de trabajo que garanticen el buen comportamiento de la fluidización en dicho reactor y detectar las posibles limitaciones del sistema. Para alcanzar el objetivo principal se presenta una relación de objetivos parciales:

- 1º) Puesta a punto del sistema de medida experimental de burbujeo.
- 2º) Determinación del perfil axial de tamaños de burbuja experimental mediante análisis digital de imágenes (DIA).
- 3º) Post-procesado de imágenes para relacionar la velocidad de las burbujas con su tamaño y posición.
- 4º) Modelado matemático de la evolución axial del tamaño y velocidad de burbuja. Comparativa de resultados experimentales con correlaciones clásicas.
- 5º) Validación de simulaciones fluidodinámicas llevadas a cabo en un simulador CFD con los resultados experimentales anteriores.

CAPÍTULO II

ANTECEDENTES

El reactor de lecho fluidizado de dos zonas (RLFDZ) ha sido ampliamente investigado durante la última década en los laboratorios del grupo de Catálisis, Separaciones Moleculares e Ingeniería de Reactores (CREG) de la Universidad de Zaragoza. Este tipo de reactor fue concebido con el propósito de integrar los procesos de reacción catalítica heterogénea y regeneración del catalizador [11-12]. La regeneración in-situ del catalizador cobra especial interés en aquellas reacciones en las que intervienen hidrocarburos a alta temperatura. En muchas de estas reacciones gas-sólido catalíticas se genera un residuo carbonoso altamente deshidrogenado (coque), que se deposita sobre la superficie activa del catalizador desactivándolo [13-17]. Como consecuencia, la conversión del gas reactivo se ve disminuida en función del grado de cubrimiento por coque del catalizador. En función de las condiciones de operación, esta desactivación puede tener lugar tras unos días, horas o incluso segundos [18-20]. Un claro ejemplo es el proceso de craqueo catalítico de petróleo (FCC) en el cuál el catalizador se desactiva en fracciones de segundo y debe ser regenerado en continuo para mantener constante la actividad del mismo [21-22]. En el caso del RLFDZ, la regeneración en continuo tiene lugar en un único lecho fluidizado, con el consiguiente ahorro en equipamiento, materiales y energía que supone la compacidad del sistema. Como ventaja adicional, el RLFDZ puede llegar a ser térmicamente autosuficiente, ya que la combustión de coque genera calor para llevar a cabo la reacción del hidrocarburo, generalmente endotérmica [11]. Para una mayor información acerca del fenómeno de la fluidización y de la tecnología de los lechos fluidizados, se remite al lector al *Anexo A: "Reactores de lecho fluidizado"*.

La integración de procesos es posible al implementar una alimentación separada de gases oxidante y reactivo en el lecho catalítico [11]. De este modo, se generan dos zonas de lecho con atmósferas reactiva y regenerativa tales que la circulación de partículas entre ellas permite la regeneración en continuo del sólido desactivado (Figura 1.a). Con el fin de ganar en versatilidad y poder mantener el régimen de fluidización (la velocidad del gas) entre ambas zonas del lecho aún trabajando con caudales muy diferentes de corriente reactiva y de regeneración, el diseño original del RLFDZ se modificó añadiendo un cambio de sección (Figura 1.b), resultando un nuevo Reactor de Lecho Fluidizado de Dos Zonas con Cambio de Sección (RLFDZ-CS) que fue objeto de patente española por la Universidad de Zaragoza en el año 2009 (PCT/ES2009/070241). En dicha patente se recoge, asimismo, la inclusión de membranas para la retirada selectiva de productos de reacción. La integración de una membrana permeoselectiva a H₂ en el RLFDZ-CS con el fin de desplazar el equilibrio termodinámico en reacciones limitadas por éste, como la deshidrogenación de alcanos [23] (Figura 1.c), se encuentra en su primera fase de estudio.

El RLFDZ se ha utilizado con éxito para llevar a cabo diversas reacciones gas-sólido catalíticas fuertemente limitadas por la rápida desactivación del catalizador, como son: deshidrogenación de alcanos [13,15-16,23-24], aromatización de metano [12], reformado oxidativo de etanol y reformado de glicerol con vapor de agua. Un uso alternativo de este

reactor en reacciones de oxidación catalítica selectiva está basado en utilizar el catalizador para transportar oxígeno entre las dos zonas, oxidándolo en la zona inferior y reduciéndolo en la zona superior, donde se cede el oxígeno para la reacción deseada. De esta forma se ha usado el RLFZD en acoplamiento oxidativo de metano [25], deshidrogenación oxidativa de alcanos y oxidación de butano a anhídrido maleico. En el *Anexo B: "Líneas de investigación en RLFZD"* se detallan cronológicamente las investigaciones llevadas a cabo así como resultados más relevantes entre los obtenidos para este novedoso tipo de reactor.

Precisamente, la circulación de partículas de catalizador entre las distintas zonas del lecho constituye el aspecto más importante a tener en cuenta en un RLFZD. Una mezcla axial de sólidos apropiada conlleva la posibilidad de alcanzar una actividad catalítica constante en el proceso: las partículas parcialmente coquizadas por efecto de la reacción química circularían hacia la zona inferior del lecho donde una corriente oxidante quemaría el coque depositado recuperando la actividad inicial del catalizador [11]. Las partículas regeneradas ascenderían a la zona superior, volviendo a actuar como sustancias activas en la reacción catalítica, cerrando así el ciclo de reacción [11].

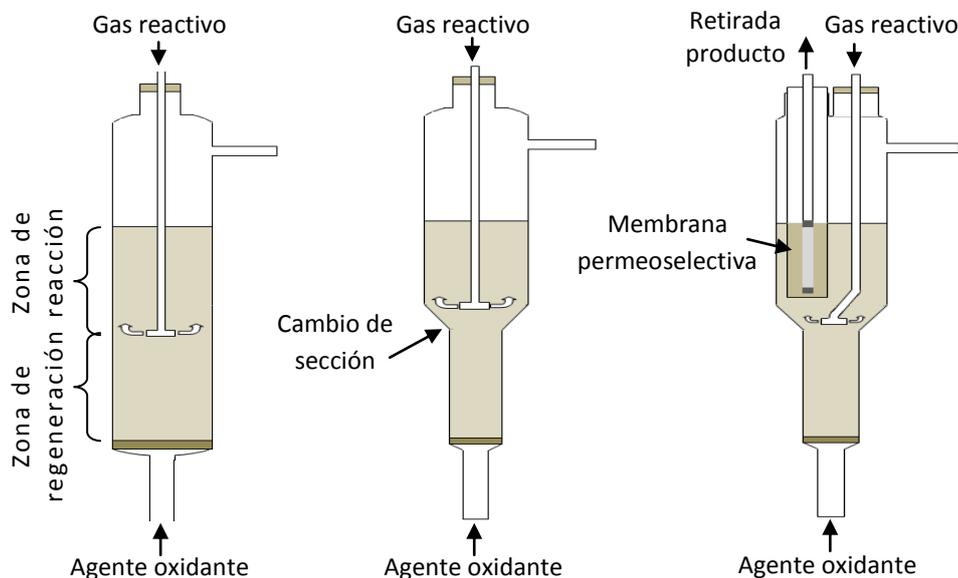


Figura 1. a) RLFZD, b) RLFZD-CS, c) RLFZD-CS + Membrana

El agente que causa la circulación axial de partículas en un lecho fluidizado es el exceso de gas sobre el de mínima fluidización [26]. Este exceso genera burbujas de gas que ascienden hacia la superficie libre del sólido arrastrando consigo una cierta cantidad de partículas en su estela. Así mismo, las partículas que se encuentran fuera de alcance de las burbujas de gas, caen por gravedad en lo que constituye la fase densa o emulsión [26-27].

Por este motivo, multitud de autores han estudiado desde mediados de los años 50 el comportamiento hidrodinámico de las burbujas de gas en lechos burbujeantes para entender y controlar el fenómeno de la fluidización. En las diversas investigaciones se han desarrollado modelos matemáticos de mezcla de sólidos [27-33], técnicas experimentales para detección y medición de burbujas [1-2,5-7,34-40], correlaciones empíricas para predecir ciertas características de las burbujas en función de las condiciones de operación aplicadas [9,41-43], etc. Análogamente, en las últimas décadas se han desarrollado herramientas computacionales

para simular el comportamiento fluidodinámico de lechos multifásicos a partir de leyes básicas de la física de fluidos [10,44-49]. Todos estos esfuerzos han ido encaminados a lograr un mayor conocimiento del complejo fenómeno de la fluidización.

Si bien existen varias publicaciones sobre estudios fluidodinámicos en lechos fluidizados burbujeantes con sección variable (*'tapered beds'*) [50-53] y con múltiples entradas de gas [54-56], la coexistencia de un cambio de sección y una alimentación de gas extra en la novedosa geometría del RLDZ-CS motivan el estudio fluidodinámico de este tipo de reactor [11]. Como producto del estudio, se pretende mitigar las limitaciones hidrodinámicas del reactor así como establecer una ventana de operación que permita un adecuado comportamiento del sistema en función de los caudales de gas alimentados, la geometría del reactor y el tipo de partículas utilizado.

pared frontal del reactor. La iluminación trasera del lecho mediante tubos fluorescentes permite la detección de burbujas de gas gracias a la luz que las atraviesa y llega al visor de la videocámara. La luz no atraviesa la fase densa del lecho (emulsión) por lo que las distintas fases son fácilmente identificables. La videocámara está situada frente al lecho a una distancia tal que no se distorsionen las medidas en los extremos de la imagen (Figura 3). Los controladores de flujo utilizados en los distribuidores de gas inferior y superior proporcionan caudales en el rango 0-5 LN_{N₂}/min y 0-3 LN_{aire}/min, respectivamente. La corriente de aire que abandona el lecho es conducida hacia una campana de extracción.

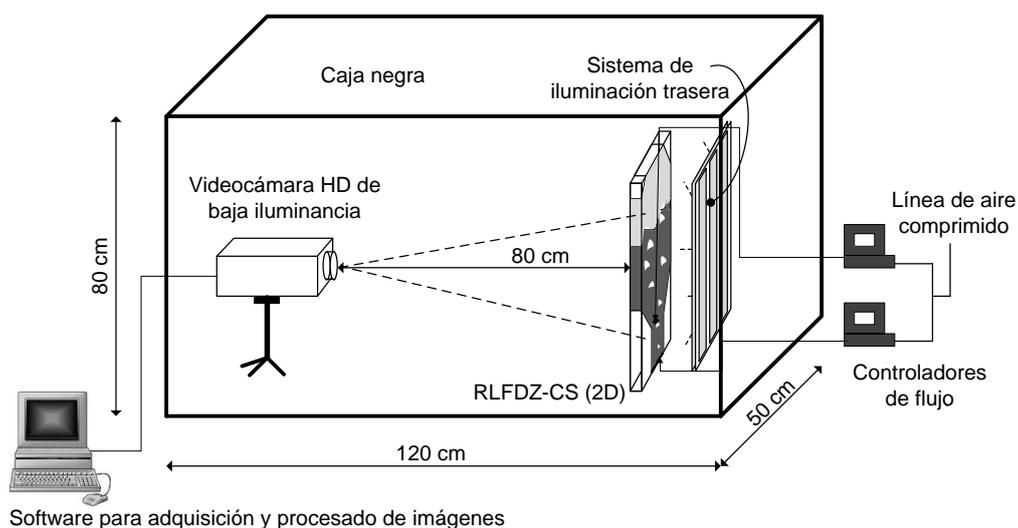


Figura 3. Esquema de la planta de análisis fluidodinámico de RLFZD-CS

Tabla 1. Listado de partículas fluidizadas

	d_p (μm)	ρ_{lecho} (g/cm^3)	ϵ_{lecho} (-)	u_{mf} (cm/s)
Esferas de vidrio	480 ± 60	1.5	0.40	20.5
γ-Alumina	135 ± 30	0.8	0.47	1.2
Partículas fosforescentes A	195 ± 50	1.5	0.58	10.1
Partículas fosforescentes B	680 ± 100	1.3	0.64	48.5

III.2 Análisis digital de vídeos de burbujeo

Los vídeos de fluidización recopilados para diferentes condiciones experimentales se han analizado, a partir de una rutina implementada en Matlab 2010a®, para llevar a cabo el estudio estadístico de las características hidrodinámicas en un RLFZD-CS. El post-procesado de imágenes que lleva a cabo dicho algoritmo tiene como objetivo establecer un perfil de tamaños de burbuja en función de la posición vertical en el lecho y relacionar la velocidad ascensional de burbujas con su tamaño. La secuencia de operaciones que lleva a cabo el algoritmo se detalla en la Figura 4.

El factor más influyente en la calidad de los perfiles de tamaño de burbuja obtenidos es la elección de un adecuado valor umbral de luminosidad (I_u) para discriminar las fases burbuja y emulsión y, por tanto, para describir los límites de contorno de las burbujas en el lecho [1-2].

Dicho valor umbral ha sido cuidadosamente seleccionado en cada video de burbujeo a partir de la observación de fotogramas discretos y sus imágenes binarias correspondientes (blanco y negro) obtenidas con diferentes I_u . La iluminación umbral que mejor describe los contornos de burbuja a lo largo de todo el lecho, de acuerdo con la determinación visual de los fotogramas de burbujeo, es la elegida como óptima. De modo general, la I_u óptima no coincide con la obtenida según el método de Otsu [57], que es el utilizado por defecto en Matlab. Por tanto, este método no resulta válido para describir la luminosidad umbral a utilizar en cada caso, siendo preciso establecer I_u visualmente para cada video de burbujeo.

Para medir el tamaño de una burbuja se describe un diámetro de burbuja equivalente (d_b) que implica el diámetro de la esfera que ocuparía el mismo volumen que la burbuja considerada. En términos bidimensionales, $d_{b,i}$ representa el diámetro de una burbuja circular, i , que ocupa la misma área que una burbuja real (A_i) en el lecho.

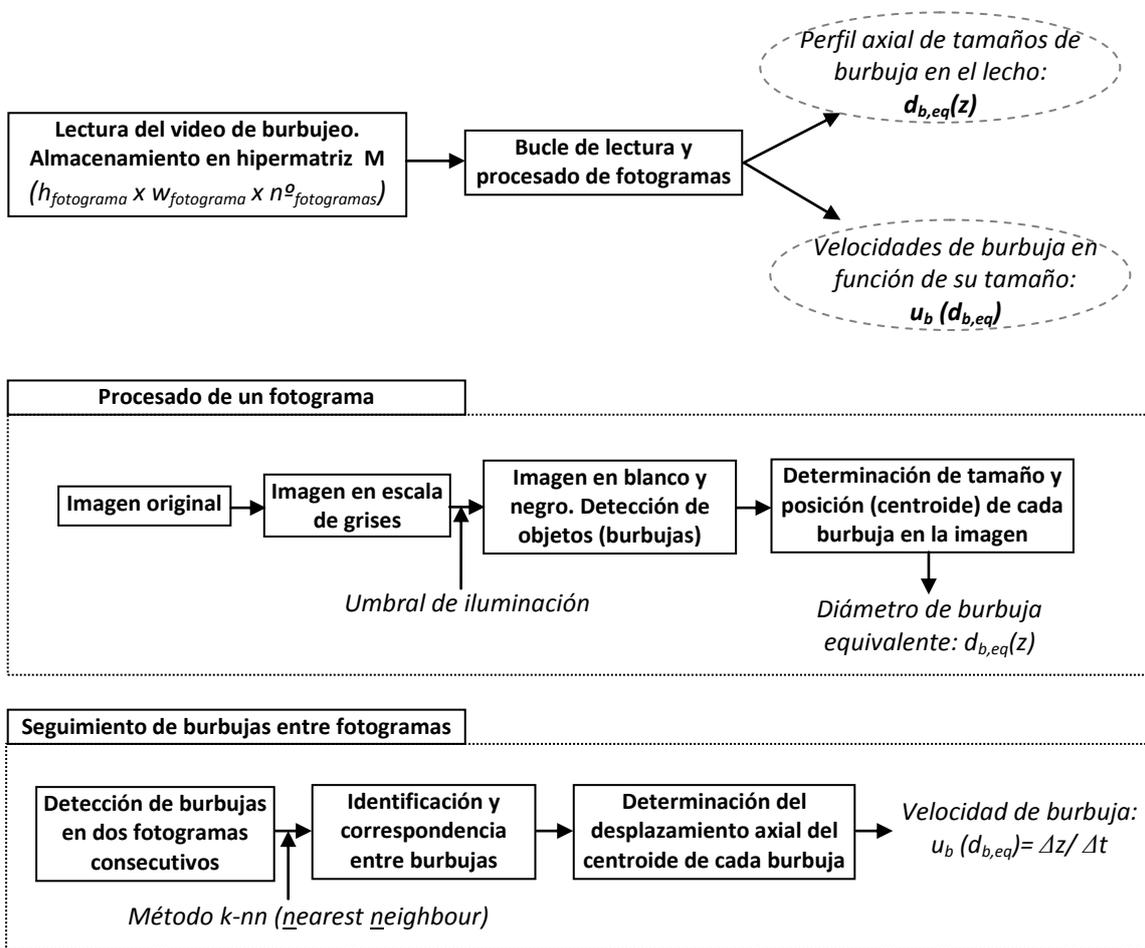


Figura 4. Diagrama de bloques para la lectura y el procesamiento de los vídeos de burbujeo en Matlab

La Ecuación 1 describe la relación entre el área de burbuja (A_i , medida en píxeles) y su diámetro de burbuja equivalente, $d_{b,eq}$, en función del factor de resolución de imagen (rr , transformación de píxeles a cm^2).

$$(d_{b,eq})_i = \sqrt{\frac{4 A_i}{\pi} rr^2} \tag{1}$$

En este trabajo, se considera que las burbujas grandes son más representativas del flujo de gas que las pequeñas. Por este motivo, el d_b medio en cada fracción de lecho se ha promediado en función del tamaño de burbuja, siendo este tamaño el factor de peso aplicado. La Ecuación 2 muestra la manera en la que se ha calculado el valor de d_b equivalente promedio en cada “rodaja axial” de reactor.

$$\overline{d_{b,i}} = \frac{\sum_{j=1}^N d_{b,j}^2}{\sum_{j=1}^N d_{b,j}} \quad (2)$$

El método utilizado para identificar burbujas entre fotogramas consecutivos y, por tanto, para medir la velocidad de estas es el del “vecino más próximo” (*k-nearest neighbour method*) [58]. Este método relaciona burbujas entre distintos fotogramas en función de su tamaño y posición. Si la velocidad ascensional de las burbujas es suficientemente baja con respecto a la velocidad de adquisición de imágenes de burbujeo, es posible llevar a cabo el seguimiento de la velocidad de burbujas discretas en función de su diámetro de burbuja equivalente y posición axial de su centroide en el lecho fluidizado. En el *Anexo D: “Análisis digital de imágenes”* se muestran los códigos implementados en Matlab para obtener los perfiles de tamaño y velocidad de burbuja en las distintas configuraciones de RLFZD-CS analizadas. Asimismo, se incluye una explicación detallada de dichos códigos y diversos gráficos que ilustran el tratamiento de imágenes realizado en las órdenes de cada algoritmo.

III.3 Modelado matemático

Existen numerosos modelos empíricos para predecir la evolución los perfiles de diámetro de burbuja equivalente en función de la posición axial en lechos fluidizados con sección constante y una única entrada inferior de gas. Entre los más comúnmente aceptados se encuentran las correlaciones de Darton [59] o Mori y Wen [9]. Estos últimos establecieron una correlación empírica aplicable a lechos fluidizados estrechos con velocidades de gas relativamente bajas, similares a las consideradas en el presente estudio. De acuerdo con los perfiles experimentales obtenidos (ver sección 3. *Resultados*), la correlación de Mori y Wen es capaz de predecir razonablemente bien el perfil de d_b equivalente en las zonas de lecho con sección constante. Esto no ocurre en la zona de transición, donde el área de paso y la velocidad de gas varían en función del ángulo de cambio de sección y el caudal de gas introducido a través del distribuidor secundario. En esta zona del lecho, el tamaño promedio de burbuja se ha calculado a partir de la contribución de las burbujas incipientes formadas desde el distribuidor secundario y de la contracción de las burbujas de gas provenientes de la zona inferior del lecho por aumento de la sección y disminución del exceso de gas sobre el de mínima fluidización. Asimismo, en caso de geometrías de reactor con cambio brusco de sección (ángulos α bajos), la sección considerada en el cómputo del balance de materia al gas en la zona de transición no es la real del lecho sino la efectiva (S_e). Dicha S_e implica la región fluidizada por el gas, teniendo en cuenta la generación de zonas defluidizadas o “muertas” en el lecho sobre el cambio de sección. El ángulo de talud, β , para las regiones defluidizadas varía en función del tipo de partícula y la velocidad de gas en el lecho, según queda descrito en el estudio de Julián y cols. [60]. De acuerdo con las curvas de defluidización propuestas en dicho estudio y considerando que el caudal de gas que circula en las burbujas es el correspondiente

al exceso de gas sobre el de mínima fluidización, las Figuras 5.a y 5.b representan el balance de materia a una región con cambio de sección y una única entrada inferior de gas.

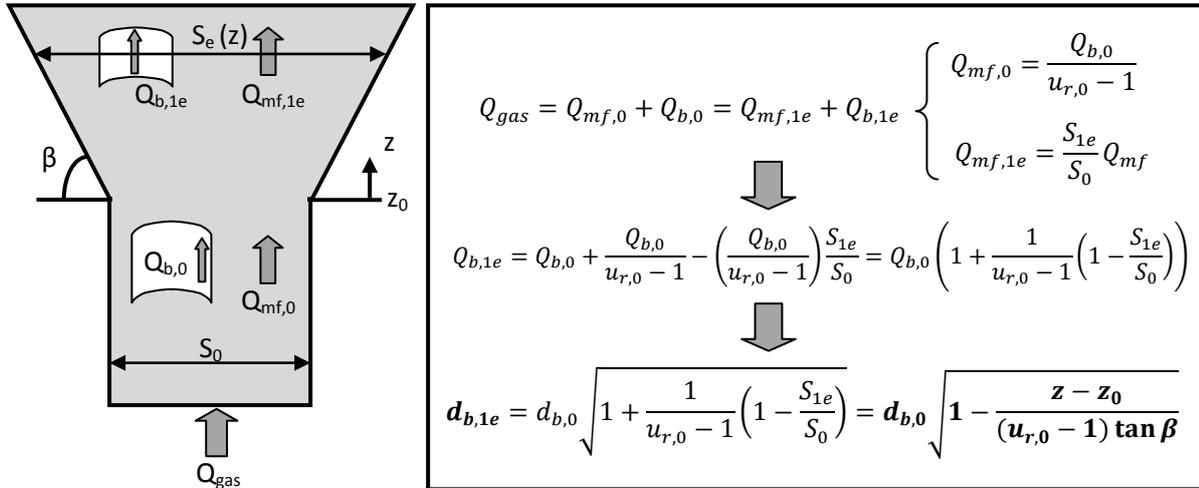


Figura 5. a) Esquema ilustrativo de flujos de gas en la región de cambio de sección, b) Balance de materia para la fase gas en el ensanchamiento

En la Figura 5.b se determina la ecuación para estimar la reducción del diámetro de burbuja equivalente debida al ensanchamiento ($d_{b,1e}$) considerando únicamente una corriente de gas alimentado desde la zona inferior del lecho. El valor de $d_{b,1e}$ depende del diámetro de burbuja máximo en la zona inmediatamente anterior al comienzo del cambio de sección ($d_{b,0}$), de la velocidad relativa del gas en la sección inferior del lecho ($u_{r,0}$), de la posición axial en el ensanchamiento (z) y del ángulo de defluidización β , que a su vez depende de la velocidad del gas y el tipo de partícula (ver Sección 3.1.3). En la zona de transición, el diámetro de burbuja equivalente promedio puede ser descrito como la media ponderada entre el $d_{b,orif}$ de las burbujas incipientes que provienen de los orificios del distribuidor secundario (y cuyo crecimiento viene dado por la correlación de Mori y Wen) y el $d_{b,1e}$. Se dará un mayor peso a las burbujas más grandes en cada posición axial del lecho, tal y como se ha descrito en la Ecuación 2. Por tanto, el modelo matemático que predice el perfil axial del tamaño de burbuja en el lecho consta de las ecuaciones descritas en la Figura 6.

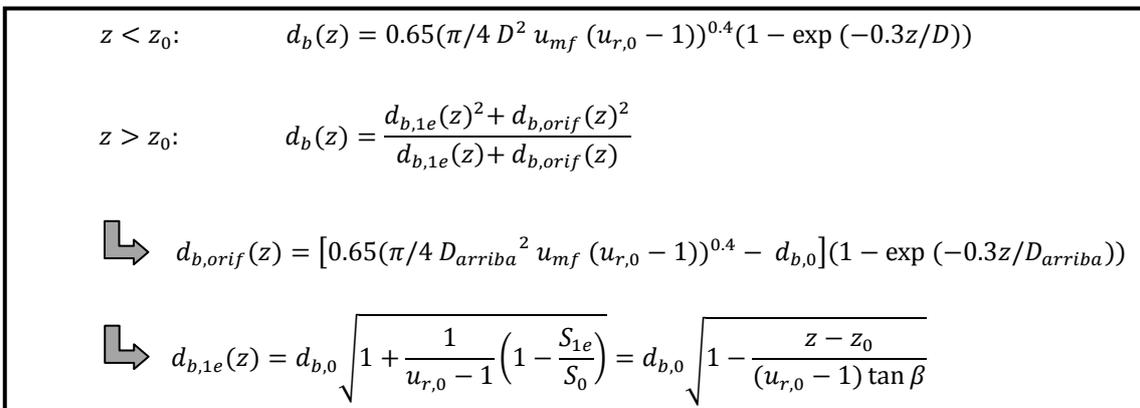


Figura 6. Modelo matemático para predecir $d_{b,RLFZ-CS}$ en función de la posición axial en el lecho

En el Anexo E: “Modelado hidrodinámico para un RLFZ-CS” se explica en detalle el modelo matemático utilizado para predecir los perfiles de burbujeo a lo largo del lecho en un RLFZ-CS. Asimismo, se detalla el análisis llevado a cabo por Julián y cols. [60] para determinar el ángulo de defluidización sobre cambio de sección brusco en función de la velocidad del gas inyectado.

III.4 Simulación fluidodinámica con software CFD

La hidrodinámica del RLFZ-CS ha sido estudiada con la ayuda del simulador Ansys CFX a fin de validar los resultados experimentales y el modelado matemático propuesto. Para ello, se ha definido la geometría del reactor pseudo-bidimensional, se ha mallado consecuentemente y se le han impuesto condiciones de contorno tanto en las paredes, como en las entradas y salida de gases. Se ha definido un sólido particulado con las propiedades de las partículas fosforescentes tipo A y se ha establecido un diámetro de partícula promedio, $d_p = 200 \mu\text{m}$ para llevar a cabo los cálculos de fluidización.

En caso de fase gas, la condición de contorno en la pared es *free slip*, lo cual supone un esfuerzo tangencial nulo en la pared (el fluido no se ve frenado al contacto con la pared debido a fenómenos de fricción) con un campo de velocidades normales a la pared igual a cero y un campo de velocidades paralelo calculado durante la simulación. Para el sólido se utiliza la condición de tipo *no slip*. Esto implica que el sólido fluidizado que se encuentra inmediatamente al lado de la pared asume la velocidad de ésta que es cero, por defecto. La entrada de gas por la zona inferior es de tipo *inlet - mass flow rate* ya que con esta opción se erige una pared artificial de manera que se impide que el sólido escape por la parte de abajo del reactor como producto de la gravedad. A la salida de gases por el *freeboard* se le impone una condición de tipo *opening* para evitar problemas numéricos. Con esta condición se evita que el programa construya una pared artificial en la parte superior del reactor que impida un posible flujo de entrada. Además, se han implementado entradas puntuales de gas en puntos intermedios del lecho para simular las condiciones de operación experimentales.

El intercambio de momento (fuerza de arrastre) entre las fases gas y sólido particulado se ha simulado mediante la correlación de Gidaspow [61]. La sustentación hidráulica del lecho en contacto con el gas (*buoyancy*) es tomada en cuenta estableciendo la diferencia de densidades entre ambas fases. Se establece un criterio de convergencia (error residual y número máximo de bucles de cálculo) y, una vez descrito el modelo multifásico, se lleva a cabo la resolución de las ecuaciones de continuidad de Navier-Stokes por elementos finitos mediante el método numérico de Euler de primer orden invertido (*First order Backward Euler*).

La simulación genera ficheros de resultados parciales a distintos tiempos de fluidización. Cada nodo de la malla contiene información puntual sobre distintas variables físicas del sistema como la presión, temperatura, velocidad del gas o del sólido y fracción volumétrica de las fases lecho y gas. Estos dos últimos parámetros son los que permiten llevar a cabo un análisis de la formación y crecimiento de burbujas de gas en el lecho. Por convenio, varios autores [10,62] fijan una porosidad de lecho máxima, $\varepsilon_{\text{lecho}} = 0.85$, por encima de la cual éste se considera en fase gas. Por tanto, todas las regiones del lecho con $\varepsilon_{\text{lecho}} > 0.85$ serán tratadas

como burbujas de manera que se pueda llevar a cabo el análisis estadístico del perfil axial de tamaño de burbujas y la comparativa con las predicciones del modelo matemático y los resultados experimentales.

Del mismo modo, comparando dos tiempos de fluidización muy próximos entre sí, es posible llevar a cabo el análisis estadístico de la velocidad de burbuja en función de su tamaño. El post-procesado de los fotogramas de simulación para determinar el perfil de velocidades de burbuja se lleva a cabo, igualmente, con la rutina de Matlab (*k-nearest neighbour method*) comentada en la Sección 2.2 de la Memoria. El modo de operación para llevar a cabo la simulación fluidodinámica queda descrito en el *Anexo F: "Simulación fluidodinámica en Ansys CFX"*.

CAPÍTULO IV

RESULTADOS Y DISCUSIÓN

En el presente capítulo se van a detallar los resultados obtenidos tanto en el análisis experimental de los vídeos de burbujeo como en las simulaciones fluidodinámicas llevadas a cabo en Ansys CFX. Por último, ambos resultados serán comparados con las predicciones del modelo matemático propuesto. Las variables de operación cuyo efecto sobre la hidrodinámica del RLFZD-CS va a ser estudiado son: geometría del reactor (ángulo de cambio de sección), tipo de partícula fluidizada y velocidad del gas en ambas zonas del lecho.

IV.1 Perfil axial de tamaños de burbuja

En esta sección se realizará una comparativa de experimentos de burbujeo llevados a cabo en diferentes condiciones de operación para determinar el efecto del ángulo de cambio de sección, tipo de partícula y velocidad de gas en la variación del diámetro de burbuja equivalente con la posición vertical en el lecho. Se propondrá un modelo matemático para predecir los resultados experimentales y con éstos se validarán las simulaciones fluidodinámicas.

IV.1.1 Influencia del tipo de partícula

Se ha llevado a cabo un estudio experimental para determinar el efecto del tipo de partícula en el régimen de burbujeo alcanzado al operar a una misma velocidad relativa de gas, $u_r = u_{\text{gas}}/u_{\text{mf}}$. La Figura 7 muestra la influencia de distintos tipos de partícula (esferas de vidrio, partículas fosforescentes y polvo de γ -alúmina) en el tamaño promedio de las burbujas en el lecho. Se observa que para una determinada velocidad relativa con partículas más grandes y, por tanto, con una mayor velocidad de mínima fluidización se obtienen burbujas de mayor tamaño en el lecho. Como se ha comentado en la Sección 1, la formación de burbujas de gas obedece al exceso de gas alimentado sobre el de mínima fluidización. Para una misma velocidad relativa ($u_r = 1.5$ en este caso), el exceso de gas es mayor en el caso de partículas con una mayor u_{mf} .

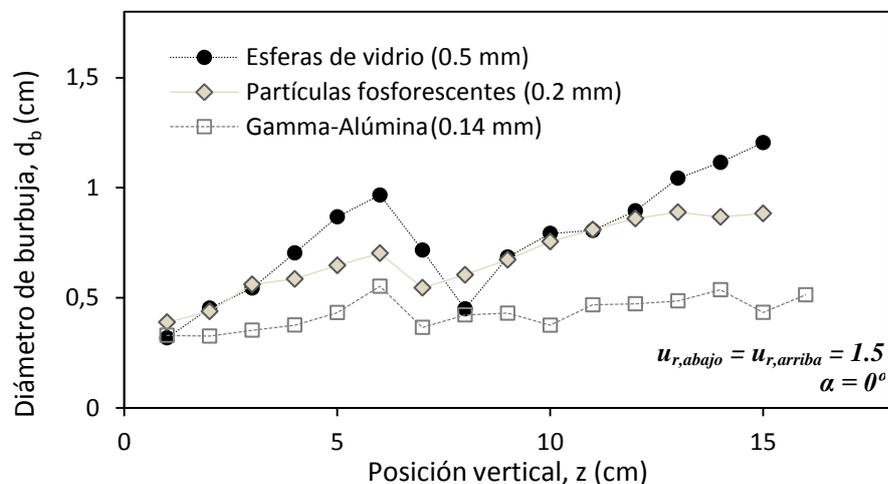


Figura 7. Influencia del tipo de partícula en el perfil axial del tamaño de burbuja para una misma velocidad relativa, $u_r = 1.5$ en un RLFZD-CS con cambio de sección $\alpha = 0^\circ$. $z_{\text{dis}} = z_{\text{cs}} = 8\text{cm}$

Por otro lado, en la Figura 7 se observa una disminución brusca del tamaño de burbuja en alturas de lecho próximas a la zona de transición (z_{cs}) para todas las partículas analizadas. En la zona de transición se producen, simultáneamente, un ensanchamiento de la sección del lecho y un aporte extra de gas al mismo. La explicación a la tendencia observada obedece a la suma de los efectos producidos en la zona de transición. Al aumentar la sección del lecho, el caudal mínimo de fluidización en la zona ancha aumenta respecto al de la zona estrecha inferior (u_{mf}). Por tanto, el exceso de gas causante de las burbujas, disminuye y las burbujas decrecen en tamaño. Este efecto se acentúa al añadir el aporte de pequeñas burbujas incipientes desde el distribuidor secundario situado al comienzo del ensanchamiento [60]. El tamaño de las burbujas incipientes está directamente relacionado con el diámetro interno de los orificios de dicho distribuidor ($d_{orif} = 3 \text{ mm}$).

Todos los tipos de partículas ensayadas corresponden a la categoría B en la clasificación de Geldart [63], lo cual indica que su comportamiento hidrodinámico debería ser similar al ser sometidas a un mismo exceso de gas sobre el de mínima fluidización ($u_{gas} - u_{mf}$). La Figura 8 valida esta hipótesis.

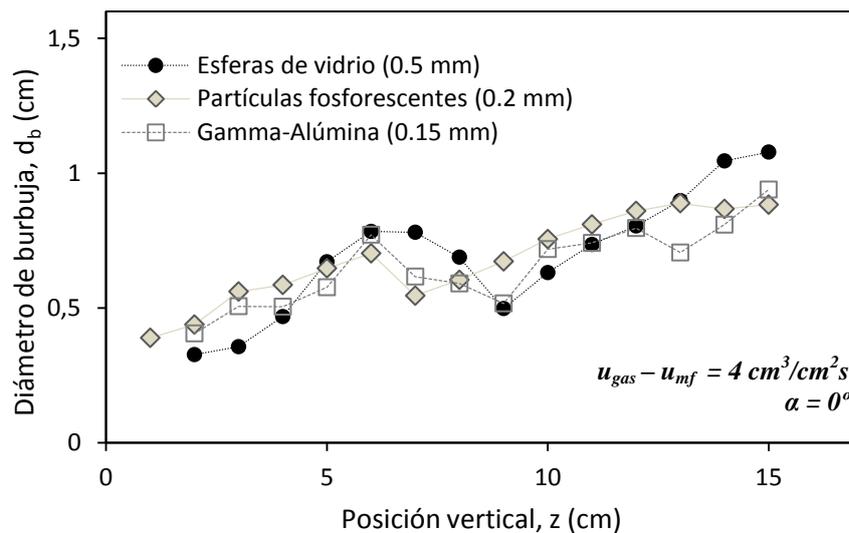


Figura 8. Influencia del tipo de partícula en el perfil axial del tamaño de burbuja para un exceso de gas constante, $[u_{gas} - u_{mf,i}] = 4 \text{ cm}^3/\text{cm}^2\text{s}$, siendo i el tipo de partícula utilizada. Resto de condiciones (α , z_{dis} y z_{cs}) idénticas a las de la Figura 7.

El perfil axial del tamaño de las burbujas muestra, en los tres casos, tendencias muy similares al trabajar con un exceso de gas, $u_{gas} - u_{mf,i} = 4 \text{ cm}^3/\text{cm}^2\text{s}$, sobre la velocidad de mínima fluidización en cada caso. Este exceso se corresponde con velocidades relativas de fluidización: $u_{r,EV} = 1.2$, $u_{r,PF} = 1.4$, y $u_{r,GA} = 3.6$, respectivamente. Por tanto, se comprueba que el efecto del tipo de partícula en la hidrodinámica de un RLDZ-CS es despreciable frente al efecto del exceso de gas, siempre y cuando todas las partículas pertenezcan a la categoría B en la clasificación de Geldart.

IV.1.2 Influencia de la velocidad del gas

Una vez comprobado que el tipo de partícula utilizado no afecta al régimen de burbujeo cuando se trabaja con un mismo exceso de gas sobre el de mínima fluidización, se ha planteado una serie experimental para conocer el efecto de la velocidad de gas inyectado sobre el tamaño y la tasa de crecimiento de las burbujas. Para ello, se han tomado las partículas fosforescentes tipo A como sólido de referencia, ya que estas partículas poseen unas propiedades físicas (tamaño, densidad, rugosidad, etc.) similares a las de los catalizadores a utilizar en este tipo de lechos fluidizados a escala de laboratorio.

La Figura 9 muestra la influencia de la velocidad relativa de gas en el régimen de burbujeo en un RLFDZ-CS con un ángulo de cambio de sección brusco, $\alpha = 0^\circ$. De acuerdo con lo esperado, mayores velocidades de gas conllevan mayores tamaños de burbuja y mayores tasas de crecimiento. La caída característica del diámetro de burbuja equivalente promedio en la zona de transición es tanto más acusada cuanto mayor es la velocidad del gas. El diámetro de burbuja equivalente alcanza valores similares en los tres casos mostrados justo en la zona inmediatamente superior al cambio de sección tras la introducción de aire desde el distribuidor secundario ($z = 8$ cm). Por este motivo, la caída de d_b en la zona de transición depende del diámetro de burbuja máximo previo al ensanchamiento ($d_{b,max}$).

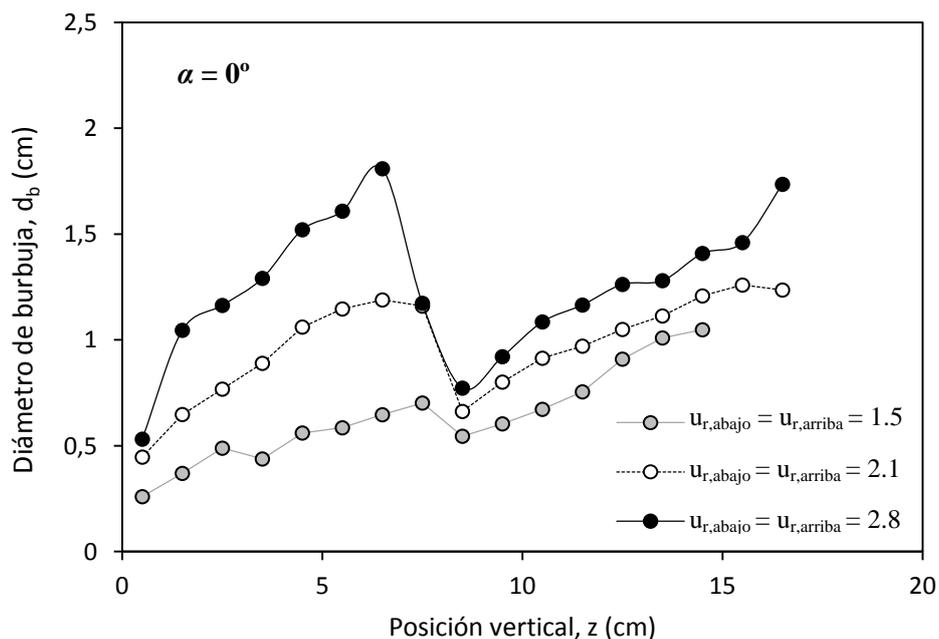


Figura 9. Influencia de la velocidad de gas en el perfil axial de tamaños de burbuja para partículas fosforescentes ($d_p = 195 \mu\text{m}$) en RLFDZ-CS con $\alpha = 0^\circ$. $z_{dis} = z_{cs} = 8$ cm.

De acuerdo con lo mostrado en la Figura 9, el uso de velocidades de gas relativamente altas ($u_r = 2.8$) da lugar a diámetros de burbuja equivalentes $d_b \approx 2$ cm en la zona inferior al ensanchamiento. Por tanto, se trata de burbujas del mismo tamaño que la sección del lecho, lo que puede dar lugar a la formación de *slugs*. Los *slugs* son grandes burbujas que ocupan completamente la sección transversal del lecho fluidizado produciendo un cortocircuito en la recirculación de sólido. Este régimen de burbujeo puede afectar negativamente a la

integración de procesos en el RLFZD-CS, pues ésta depende directamente de la calidad de la mezcla axial de sólidos entre las zonas de reacción y regeneración. En caso de usar partículas con propiedades físicas similares a las partículas fosforescentes consideradas en este estudio, la velocidad relativa de gas umbral para evitar la formación de slugs en la zona estrecha del lecho no debería sobrepasar el límite $u_{r,abajo} = 2.8$.

IV.1.3 Influencia de la geometría del RLFZD-CS

El ángulo de cambio de sección entre las zonas de reacción y regeneración, α , puede afectar decisivamente al régimen de fluidización en un RLFZD-CS. En esta sección se detalla el efecto de α en la hidrodinámica de la zona de transición. Para ello, se ha llevado a cabo un estudio con partículas fosforescentes en reactores con diferente ángulo de cambio de sección, manteniendo las mismas condiciones de fluidización (u_{gas} constante). Las geometrías utilizadas varían en el rango $\alpha = [0^\circ - 85^\circ]$.

Los resultados que muestra la Figura 10 sugieren que el ángulo de cambio de sección influye en el tamaño promedio de las burbujas en la sección superior del lecho, desde la zona de transición. Los ángulos de cambio de sección suaves, por ejemplo $\alpha = 80^\circ$, suponen un mayor exceso de gas en la zona de transición respecto al de mínima fluidización. Por este motivo, las burbujas de gas al comienzo del ensanchamiento ($z > 8$ cm) son mayores en el caso de $\alpha = 80^\circ$. Además, se observa que cuanto más brusco es el cambio de sección (se aproxima a $\alpha = 0^\circ$), mayor es la caída del diámetro de burbuja equivalente promedio en las proximidades de la altura de ensanchamiento. Sin embargo, el perfil axial de tamaños de burbuja para los ángulos de transición $\alpha = 0^\circ$ y $\alpha = 45^\circ$ es muy similar, lo que indica que el efecto de α es más notorio cuando el ensanchamiento es más progresivo.

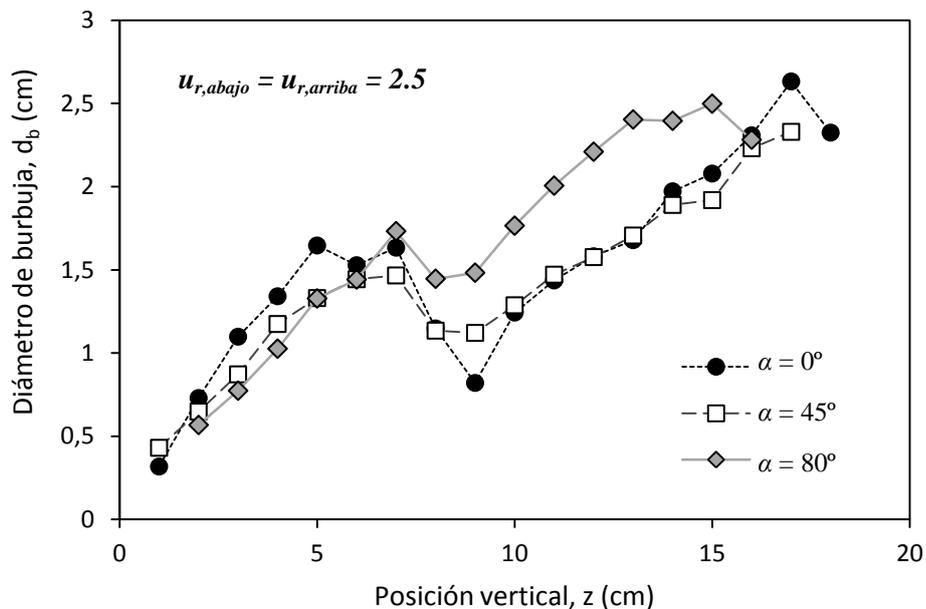


Figura 10. Influencia del ángulo de cambio de sección (α) en la hidrodinámica del RLFZD-CS. Sólido fluidizado: partículas fosforescentes ($d_p = 200 \mu\text{m}$). Velocidad relativa del gas de fluidización: $u_r = 2.5$. Altura del distribuidor: $z_{dis} = 8$ cm. Altura del ensanchamiento: $z_{cs} = 8$ cm.

La escasa diferencia entre los resultados obtenidos para las geometrías $\alpha = 0^\circ$ y $\alpha = 45^\circ$ puede explicarse a partir del concepto de *ángulo de defluidización*, β , en RLFZD-CS propuesto por Julián y cols. [60] que queda recogido en el Anexo E del presente documento. Este estudio reveló la existencia de zonas de lecho parcialmente defluidizadas sobre cambios de sección bruscos. El ángulo de talud, β , en las zonas “muertas” del lecho varía en función de la velocidad de gas de fluidización y del tipo de partícula fluidizada según la Figura 11, extraída de dicho estudio. Este hecho sugiere que, para una velocidad de gas y un tipo de partícula determinado, la hidrodinámica en el lecho será similar en aquellas geometrías en las que α sea menor que β . Análogamente, la hidrodinámica entre dos RLFZD-CS variará de manera notable únicamente en el caso de que la transición entre zonas del lecho (α) sea para ambos más suave que el ángulo de defluidización, β .

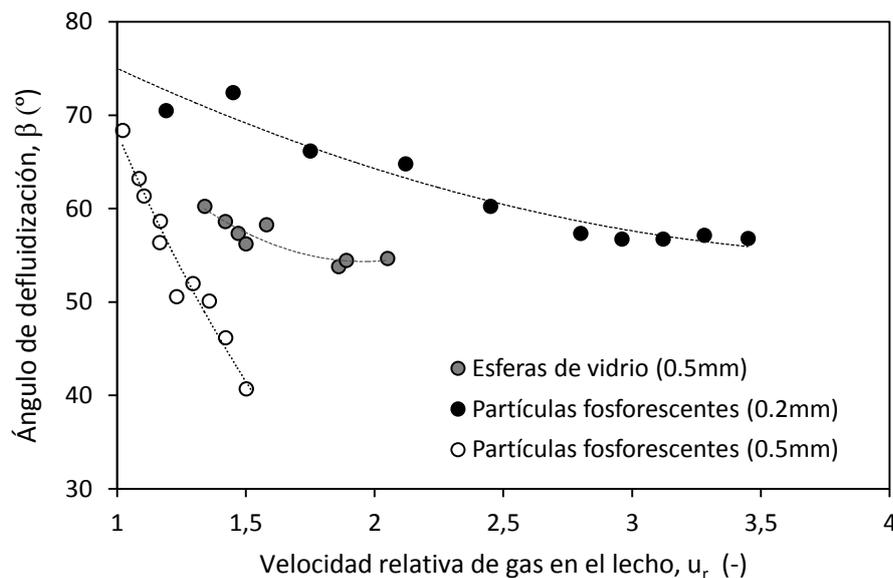


Figura 11. Influencia de la velocidad del gas y el tipo de partícula en el ángulo de defluidización sobre un cambio de sección brusco en un RLFZD-CS. Julián y cols. 2012 (60), $z_{dis} = z_{cs} = 8$ cm.

IV.1.4 Comparativa con simulaciones y correlaciones empíricas

En esta sección, se va a llevar a cabo una comparativa entre los resultados experimentales, las simulaciones fluidodinámicas y las correlaciones empíricas propuestas para predecir el perfil axial de tamaños de burbuja en un RLFZD-CS operado con partículas fosforescentes de 0.2 mm de diámetro. De acuerdo con la Figura 12, la correlación empírica obtenida por Mori y Wen (MW) es la que mejor predice la evolución axial del diámetro de burbuja promedio en la zona inferior del reactor y, por tanto, es la utilizada en el modelo matemático propuesto. Sin embargo, ni esta correlación ni ninguna otra es capaz de predecir la evolución de d_b más allá de la altura de cambio de sección en el RLFZD-CS donde, adicionalmente, se inyecta una nueva corriente de gas. Esto es debido a que todas las correlaciones presentadas se aplican a lechos fluidizados cilíndricos con una única entrada inferior de gas. Las predicciones de la correlación MW en las zonas de sección constante del lecho junto con el modelo propuesto para considerar la novedosa configuración del RLFZD-CS se complementan en el nuevo modelo $d_{b,RLFZD-CS}(z)$, denominado “MW + J”.

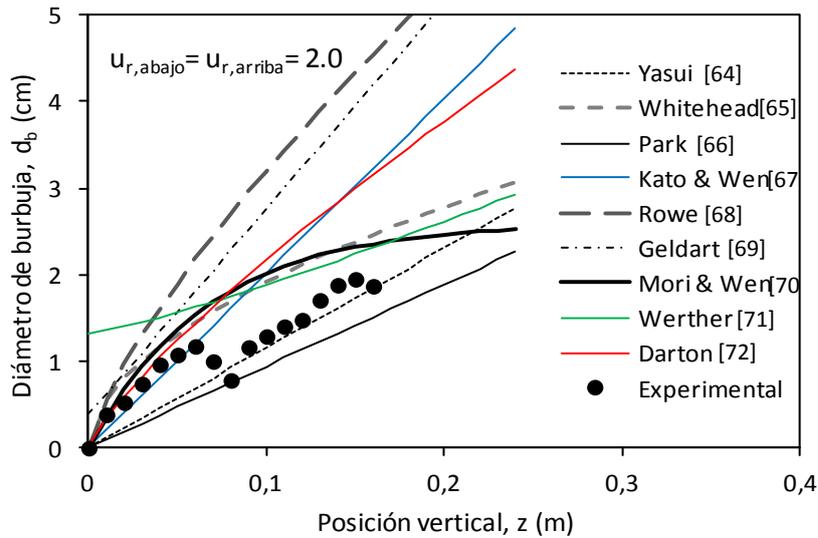


Figura 12 Comparativa entre el perfil axial del diámetro de burbuja experimental y las predicciones de las correlaciones clásicas para $d_b(z)$ para una velocidad relativa de gas $u_r = 2.0$.

La Figura 13.c muestra una comparativa entre las predicciones del modelo WM + J y los perfiles de d_b obtenidos a partir del análisis de fotogramas de burbujeo (Figura 13.a) y de simulaciones fluidodinámicas en CFX (Figura 13.b) para un RLFZ con cambio de sección brusco ($\alpha = 0^\circ$) y una velocidad relativa de gas, $u_r = 3$. La calidad del ajuste muestra, por un lado, que el simulador es capaz de reproducir el comportamiento hidrodinámico del lecho y, por otro lado, que el modelo matemático propuesto es consistente con la evidencia experimental.

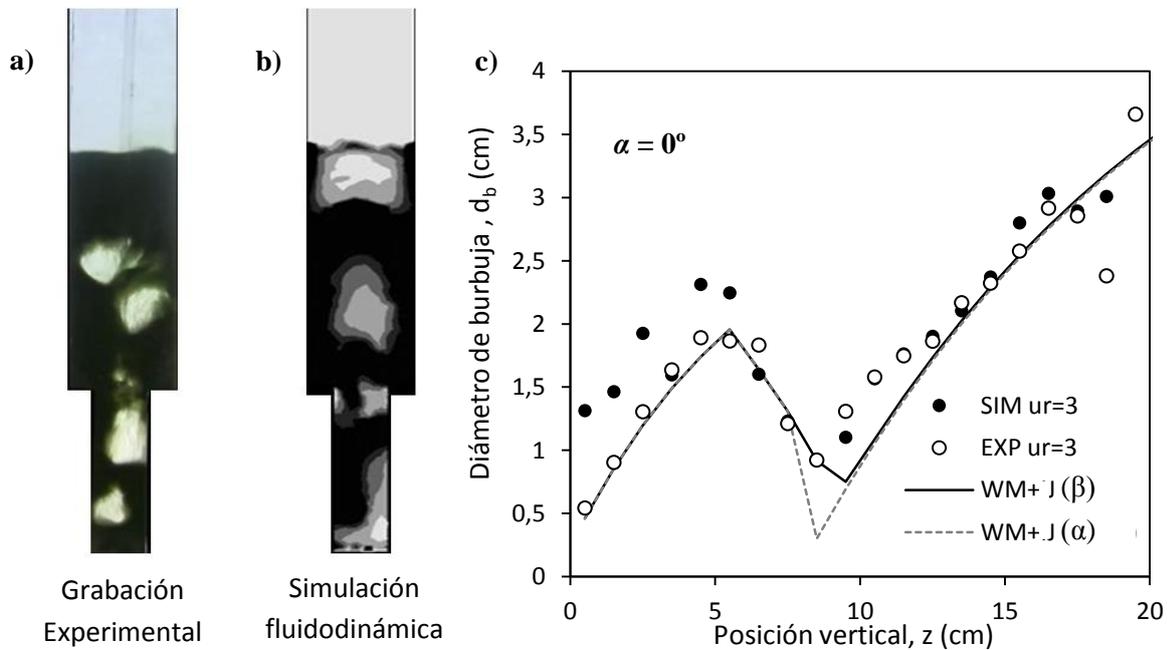


Figura 13. a) Fotografía experimental, b) Fotografía simulada, c) Comparativa entre perfiles axiales de d_b promedio experimental, simulado y modelado obtenidos para partículas fosforescentes en un RLFZ-CS con $\alpha = 0^\circ$ y una velocidad relativa $u_r = 3$.

Además, la Figura 13.c pone de manifiesto que las regiones defluidizadas tienen influencia en la hidrodinámica del lecho, de modo que el modelo matemático que mejor predice el comportamiento en la zona de cambio de sección es el basado en el ángulo de transición “aparente” o ángulo de defluidización, β , siempre y cuando éste sea menor que α .

Según la Figura 11, el ángulo de defluidización correspondiente a este sólido a una velocidad relativa $u_r = 3$ es: $\beta = 58^\circ$. En estas condiciones de fluidización, el modelo matemático predice prácticamente el mismo perfil de tamaños de burbuja en el rango de geometrías de reactor $\alpha = [0^\circ - 60^\circ]$ (ver Anexo G: “Análisis hidrodinámico. Resultados adicionales”).

Al trabajar en RLFZD-CS con ensanchamiento gradual por encima del ángulo de talud ($\alpha > \beta$), el modelo matemático considera que el ángulo de cambio de sección, α , se corresponde con un ángulo de defluidización “aparente”, $\beta_{ap} = \alpha$. La Figura 14 muestra la validez de esta consideración.

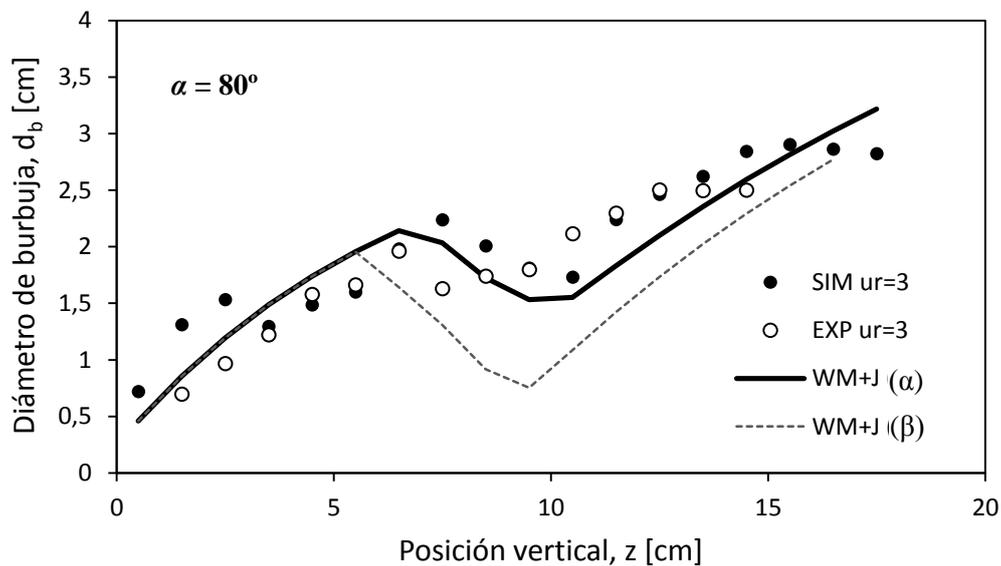


Figura 14. Comparativa entre perfiles axiales de d_b promedio experimental, simulado y modelado obtenidos para partículas fosforescentes en un RLFZD-CS con $\alpha = 80^\circ$ y una velocidad relativa $u_r = 3$.

Altura de distribuidor y cambio de sección: $z_{dis} = z_{cs} = 8$ cm.

IV.2 Perfil de velocidades de burbuja

En esta sección se va a realizar una comparativa de las velocidades ascensionales de burbuja obtenidas mediante CFX y mediante post-procesado de imágenes de burbujeo. Además, se utilizarán los datos recogidos en ambos estudios para validar en RLFZD-CS la correlación empírica de Davidson y Harrison [8] (Ec. 3), que predice la variación de la velocidad de ascenso de burbujas con la raíz cuadrada de su tamaño.

$$u_b = (u_{gas} - u_{mf}) + 0.4(gd_b)^{0.5} \quad (3)$$

IV.2.1 Velocidad de burbuja en función del tamaño de burbuja

La Figura 15 representa el resultado del post-procesado de imágenes de burbujeo mediante el *método del vecino más próximo* en un RLFZ pseudo-bidimensional con cambio de sección brusco, $\alpha = 0^\circ$, cargado con partículas fosforescentes y con una velocidad relativa de gas $u_r = 2.8$ en ambas secciones del lecho. Como se puede comprobar, la velocidad de burbuja promedio muestra una tendencia aproximadamente lineal respecto al tamaño de burbuja. Además, los valores experimentales promedio en u_b se corresponden satisfactoriamente con la estimación empírica de la ecuación de Davidson y Harrison. Este resultado implica que la velocidad de burbuja depende esencialmente del tamaño de la misma y, por tanto, la influencia de la singular geometría del RLFZ-CS sobre la función $u_b(d_b)$ puede considerarse despreciable.

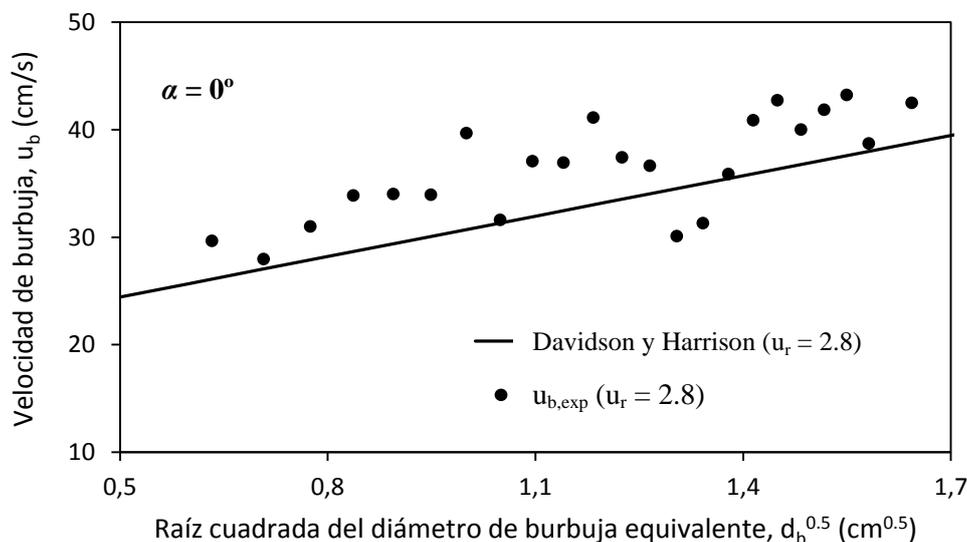


Figura 15. Relación lineal entre la velocidad de burbuja y la raíz cuadrada de su diámetro equivalente. Condiciones experimentales: RLFZ-CS ($\alpha = 0^\circ$), $u_{r,abajo} = u_{r,arriba} = 2.8$, partículas fosforescentes, $z_{dis} = z_{cs} = 8$ cm.

IV.2.2 Perfil axial de velocidades de burbuja

Una vez analizado el gráfico $u_b(d_b)$, se ha determinado el perfil axial de velocidades de burbuja promedio en las mismas condiciones de operación. Los resultados mostrados en la Figura 16 sugieren que, efectivamente, la velocidad de las burbujas está íntimamente relacionada con su tamaño puesto que la curva de tendencia experimental coincide con la tendencia encontrada en los perfiles de diámetro de burbuja equivalente descritos en las Figuras 9, 10, 13 y 14 de la presente Memoria. La reducción del tamaño de burbuja experimental en la zona de transición repercute en una menor velocidad de burbuja promedio en esa región.

El perfil $u_b(z)$ experimental se compara con el modelo empírico resultante de aplicar la correlación de Davidson y Harrison (Ec. 3), introduciendo el diámetro de burbuja a partir de la correlación de Mori y Wen (Figura 6 - Ec. 1) en función de la posición vertical y la anchura del

lecho. El modelo matemático realiza una buena predicción del perfil $u_b(z)$ experimental únicamente en la región inferior del lecho. Al considerar el modelo MW + J, el ajuste de los datos experimentales de velocidad de burbuja es mucho mejor. Por lo tanto, el perfil experimental $u_b(z)$ obtenido valida el modelo empírico DH + MW + J para un RLFZD-CS.

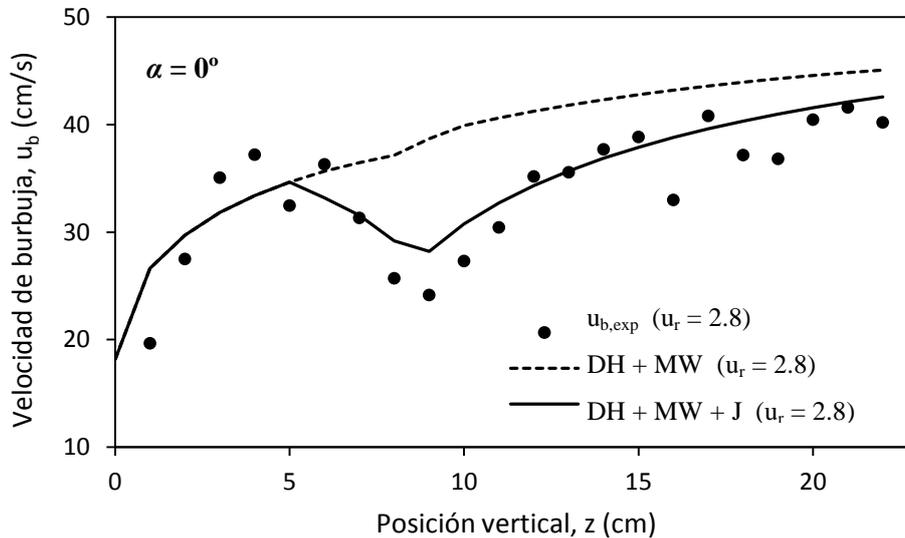


Figura 16. Perfil axial de velocidad de burbuja promedio. Comparativa entre resultados experimentales y dos modelos empíricos para predecir $u_b(z)$: modelo DH+MW (correlaciones clásicas para columnas de burbujeo) y DH+MW+J (modelo mejorado para tener en cuenta el cambio de sección y la alimentación adicional en un RLFZD-CS). Mismas condiciones experimentales que en la Figura 14.

IV.2.3 Comparativa entre experimentos de burbujeo y simulaciones fluidodinámicas

En la presente sección se va a realizar una comparativa entre los datos de velocidad de burbuja obtenidos experimentalmente y los extraídos de las simulaciones fluidodinámicas llevadas a cabo. La Figura 17 muestra la variación de la velocidad de las burbujas de gas en función de su tamaño para simulación y experimento fluidodinámico con una velocidad relativa $u_r = 2.8$ a lo largo de todo el lecho. Los ensayos se han realizado, igualmente, en un RLFZD-CS ($\alpha = 0^\circ$) cargado con partículas fosforescentes.

Como se muestra en la Figura 17, el perfil axial de velocidades de burbuja obtenido a partir de la simulación fluidodinámica se ajusta satisfactoriamente al obtenido a partir de la experimentación, al igual que ocurre con el perfil axial de tamaños de burbuja. No obstante, se observa una ligera subestimación de la $u_{b,sim}$ en la zona inferior del lecho y una pequeña sobreestimación en la zona superior. En cualquier caso, los valores de $u_{b,sim}$ y $u_{b,exp}$ para cada posición vertical en el reactor son muy próximos entre sí, lo que da idea de la capacidad del simulador para predecir el comportamiento hidrodinámico del lecho. Esta tendencia se repite en el rango de velocidades de gas analizado, $u_r = [1.5 - 3.0]$.

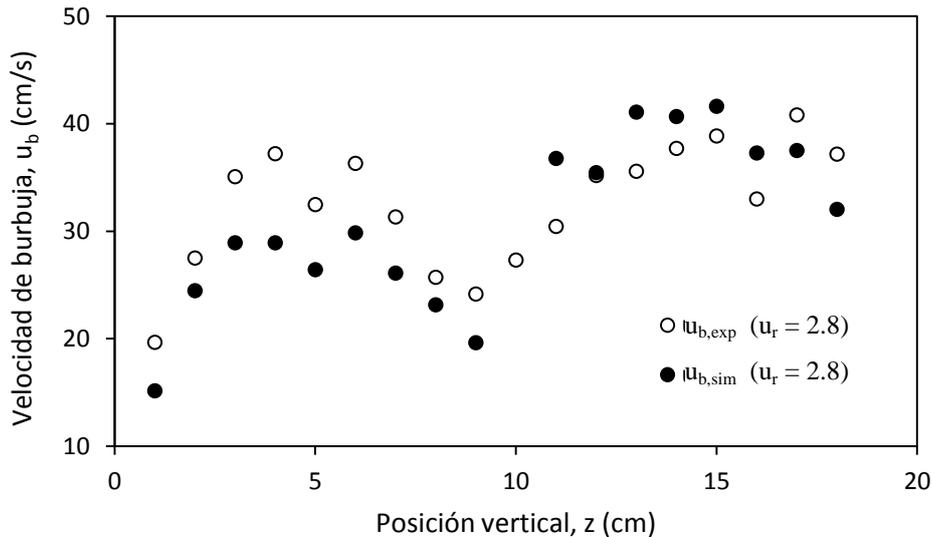


Figura 17. Perfiles de velocidad de burbuja promedio experimental, $u_{b,exp}$, y simulado, $u_{b,sim}$. Mismas condiciones experimentales que en la Figura 14.

IV.2.4 Variación de u_b con u_{gas}

Por último, se va a estudiar la influencia de la velocidad de gas de fluidización en la velocidad de burbuja promedio. En principio, cuanto mayor es el exceso de gas sobre el de mínima fluidización ($u_{gas} - u_{mf}$) mayor es el caudal de gas en las burbujas y, por tanto, mayor es su tamaño y su velocidad. Sin embargo, es preciso analizar si todo el caudal de gas en exceso pasa a formar parte de las burbujas o si, por el contrario, parte de ese exceso se invierte en aumentar la porosidad de la fase densa del lecho.

La Figura 18 muestra el perfil axial de velocidades de burbuja experimentales para tres condiciones de fluidización diferentes sobre un RLFZ-CS ($\alpha = 0^\circ$) cargado con partículas fosforescentes tipo A. En ella se observa que la velocidad de burbuja no crece de manera totalmente proporcional con la velocidad del gas inyectado: la diferencia entre los valores promedio de $u_{b,(u_r = 2.1)}$ y $u_{b,(u_r = 1.5)}$ es mayor que la que existe entre $u_{b,(u_r = 2.8)}$ y $u_{b,(u_r = 2.1)}$. Este resultado puede deberse a que el crecimiento de las burbujas (y, por tanto, su incremento de velocidad) está limitado por las dimensiones del lecho o por la formación de nuevas burbujas de pequeño tamaño. Cualquiera de estos dos motivos explicaría las pequeñas discrepancias que muestra el modelo matemático MW+J en la estimación del perfil experimental de d_b (y, por tanto, de u_b) para velocidades de fluidización muy alejadas entre sí. El análisis de las limitaciones del modelo en condiciones de fluidización incipiente ($u_{r,PF} \leq 1.5$) o en régimen de 'slugging' ($u_{r,PF} \geq 3.0$) se recoge en el Anexo G: "Análisis hidrodinámico. Resultados adicionales".

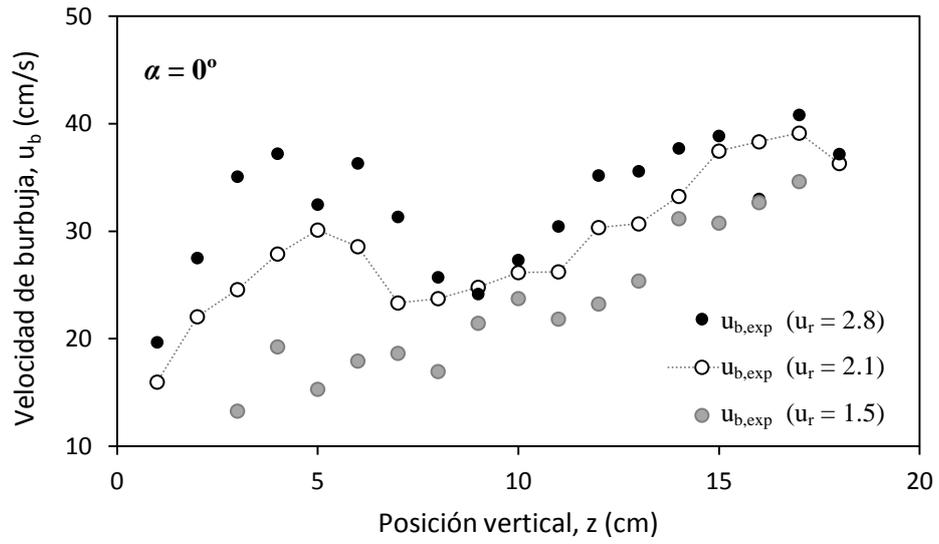


Figura 18. Perfiles axiales de velocidad de burbuja promedio experimental, $u_{b,exp}$. Mismas condiciones experimentales que en la Figura 14.

CAPÍTULO V

CONCLUSIONES Y PROPUESTAS DE FUTURO

V.1 Conclusiones

La conclusión general del presente estudio es que ha sido posible complementar las ventajas de un sistema experimental y un simulador fluidodinámico para estudiar el comportamiento fluidodinámico de la fase gas en un RLFZD-CS. Los resultados obtenidos por ambas vías han sido validados mediante correlaciones clásicas mejoradas (a partir de parámetros físicos del RLFZD-CS) para predecir el comportamiento hidrodinámico en este tipo de reactor de lecho fluidizado no convencional.

En particular, las conclusiones extraídas de cada una de las partes del estudio se recogen a continuación:

- a) El tamaño de las burbujas de gas en el lecho ha podido ser determinado experimentalmente en un RLFZD-CS con técnicas no invasivas mediante la grabación de distintos regímenes de burbujeo en reactores pseudo-bidimensionales con iluminación trasera. La detección de burbujas en el post-procesado de las imágenes se ha llevado a cabo por diferencia de iluminación entre la fase densa (lecho particulado) y la fase gas (libre de sólido).
- b) Los perfiles axiales de diámetro de burbuja equivalente muestran una brusca reducción del tamaño de burbuja promedio experimental en la zona de transición en todos los casos analizados. Este efecto ha sido explicado por el ensanchamiento del lecho y por la introducción de pequeñas burbujas incipientes desde el distribuidor secundario ubicado al comienzo del cambio de sección.
- c) El elevado tamaño de burbuja promedio que tiene lugar a altas velocidades de gas en la zona estrecha del lecho puede dar lugar a la formación de *slugs*, produciendo un cortocircuito en la recirculación del sólido entre zonas de lecho que afecte negativamente al funcionamiento del RLFZD-CS. El estudio del perfil de tamaños de burbuja es esencial para definir una ventana de operación óptima.
- d) La influencia del tipo de partícula en la formación y el crecimiento de burbujas de gas es despreciable respecto al efecto de la velocidad de gas en exceso ($u_{gas}-u_{mf}$) para partículas correspondientes al mismo grupo en la clasificación de Geldart.
- e) El comportamiento fluidodinámico de un RLFZD-CS pseudo-bidimensional ha sido simulado satisfactoriamente con el software Ansys CFX. Las simulaciones realizadas muestran, igualmente, una reducción del tamaño de burbuja en la zona de transición y un crecimiento exponencial en las regiones de sección constante. Este comportamiento valida las mediciones experimentales.

- f) Las correlaciones empíricas propuestas en la literatura son capaces de predecir el comportamiento hidrodinámico del lecho en regiones alejadas de la zona de transición. El tamaño de burbuja en esta región característica ha sido modelado a partir de datos conocidos del sistema (geometría, caudal de gas introducido, altura del distribuidor) y correlaciones empíricas para la determinación del ángulo de defluidización experimental.
- g) La determinación del desplazamiento del centro de gravedad (centroide) de las burbujas entre fotogramas consecutivos ha permitido llevar a cabo el estudio experimental de la velocidad promedio de burbuja en función de su tamaño.
- h) Los perfiles de velocidad ascensional de burbujas obtenidos experimentalmente son similares a los obtenidos en las distintas simulaciones y, además, reproducen en buena medida las predicciones de las correlaciones clásicas.

V.2 Propuestas de futuro

En paralelo con el presente trabajo, se está estudiando la mezcla axial de sólidos en un RLFZD-CS mediante trazadores ópticos fosforescentes. Al mismo tiempo se está trabajando en la obtención de perfiles de circulación de sólidos en el lecho gracias a técnicas de mapeo de partículas a partir de grabaciones en alta definición y ultra-alta velocidad de adquisición (*Particle Image Velocimetry, PIV*). El objetivo, a corto plazo, es relacionar los resultados de burbujeo obtenidos en este trabajo con los perfiles de circulación y mezcla axial de sólidos para aumentar el conocimiento acerca del comportamiento fluidodinámico de un RLFZD-CS, para identificar problemas de funcionamiento y para establecer unas condiciones de trabajo óptimas.

El siguiente paso consistirá en evaluar la influencia del cambio de escala en la fluidodinámica del RLFZD-CS pseudo-2D. Para ello se realizarán experimentos de burbujeo duplicando las dimensiones del reactor y variando la posición relativa del distribuidor de gas secundario.

Si las simulaciones y los modelos matemáticos (correlaciones empíricas) son capaces de predecir el comportamiento del lecho tras el escalado, se pasará a simular un régimen de reacción catalítica. Se establecerán las cinéticas de reacción y de desactivación del catalizador y se analizará el comportamiento del RLFZD-CS simulado con respecto a su homólogo experimental.

NOMENCLATURA

α	ángulo de cambio de sección en un RLFZDZ-CS, [°]
β	ángulo de defluidización en un RLFZDZ-CS, [°]
β_{ap}	ángulo de defluidización aparente en un RLFZDZ-CS, [°]
ΔP	pérdida de carga en el lecho, [mm c.a.]
$\Delta P_{max,teor}$	pérdida de carga máxima teórica en el lecho, [mm c.a.]
ϵ_{lecho}	porosidad del lecho, [-]
$\epsilon_{lecho,lim}$	porosidad del lecho umbral para la consideración de burbujas de gas, [-]
ρ_{lecho}	densidad del lecho, [g/cm ³]
ρ_s	densidad del sólido, [g/cm ³]
ν_{lecho}	viscosidad aparente del lecho, [g/cm ³]
A_i	área de la burbuja i en una imagen digital, [pixels]
CFD	fluidodinámica computacional (<i>'Computational Fluid Dynamics'</i>)
CR	coeficiente de restitución (modelo de choques interparticulares), [-]
d_b	diámetro de burbuja, [cm]
$d_{b,eq}$	diámetro de burbuja equivalente, [cm]
$d_{b,max}$	diámetro de burbuja máximo en la zona inferior del lecho, [cm]
$d_{b,orif}$	diámetro de burbuja incipiente en el orificio distribuidor, [cm]
$d_{b,0}$	diámetro de burbuja en la sección estrecha del lecho, [cm]
$d_{b,1e}$	diámetro de burbuja en el ensanchamiento (la sección fluidizada es S_{1e}), [cm]
d_{orif}	diámetro del orificio distribuidor, [cm]
d_p	diámetro de partícula, [μm]
$d_{p,prom}$	diámetro de partícula promedio, [μm]
$d_{p,i}$	diámetro de partícula promedio para una fracción de sólido i, [μm]
D	diámetro del lecho en la zona inferior, [cm]
D_{arriba}	diámetro del lecho en la zona superior, [cm]
$D_{reactor}$	diámetro de un lecho de sección constante, [cm]
DH	correlación de Davidson-Harrison para predecir $u_b(d_b)$

DH+MW+J	correlaciones de Davidson-Harrison + Mori-Wen + Julián para $u_{b,RLFDZ-CS}(z)$
DIA	análisis digital de imágenes (<i>'Digital Image Analysis'</i>)
$h_{\text{fotograma}}$	altura del fotograma analizado, [pixels]
I_u	intensidad de color umbral en el rango 0-255 (escala de grises)
K	constante de proporcionalidad en la correlación de Davidson-Harrison, [-]
KTGF	teoría cinética de flujo granular (<i>'Kinetic theory of granular flow'</i>)
MW	correlación de Mori-Wen para determinar $d_b(z)$
MW+J	correlación de Mori-Wen + "modelo de Julián" para predecir $d_{b,RLFDZ-CS}(z)$
PIV	análisis velocimétrico de partículas en un lecho (<i>'Particle Image Velocimetry'</i>)
$Q_{b,0}$	caudal de gas en las burbujas de la zona inferior del lecho, [cm^3/s]
$Q_{b,1}$	caudal de gas en las burbujas por encima del ensanchamiento, [cm^3/s]
$Q_{b,1e}$	caudal de gas en las burbujas de la zona inferior en el ensanchamiento, [cm^3/s]
$Q_{b,2^{\circ},1e}$	caudal de gas en las burbujas de la zona superior en el ensanchamiento, [cm^3/s]
Q_{gas}	caudal de gas alimentado al lecho por la zona inferior, [cm^3/s]
$Q_{\text{gas},2^{\circ}}$	caudal de gas alimentado al lecho por el distribuidor secundario, [cm^3/s]
$Q_{mf,0}$	caudal de mínima fluidización en la zona inferior del lecho, [cm^3/s]
$Q_{mf,1e}$	caudal de mínima fluidización en la zona del lecho con sección S_{1e} , [cm^3/s]
$Q_{mf,1}$	caudal de mínima fluidización en la zona superior del lecho, [cm^3/s]
RLFDZ	reactor de lecho fluidizado de dos zonas
RLFC	reactor de lecho fluidizado circulante
RLFCI	reactor de lecho fluidizado con circulación interna
RLFDZ-CS	reactor de lecho fluidizado de dos zonas con cambio de sección
rr	factor de resolución de imagen, [cm/pixels]
S	sección de paso de gas, [cm^2]
S_e	sección de paso equivalente (limitada por el ángulo de defluidización), [cm^2]
S_0	sección inferior del lecho, [cm^2]
S_1	sección superior del lecho (por encima del ensanchamiento), [cm^2]
S_{1e}	sección del lecho correspondiente a una altura "1" del ensanchamiento, [cm^2]

thr	valor umbral de intensidad en una imagen en escala de grises (rango 0-1), [-]
u _b	velocidad de burbuja, [cm/s]
u _{b,exp}	velocidad de burbuja obtenida experimentalmente, [cm/s]
u _{b,sim}	velocidad de burbuja obtenida a partir de una simulación, [cm/s]
u _{mb}	velocidad de mínimo burbujeo, [cm ³ /cm ² ·s]
u _{mf,i}	velocidad de mínima fluidización para un lecho de partículas i, [cm ³ /cm ² ·s]
u _r	velocidad reducida a lo largo del lecho, [-]
u _{r,0}	velocidad reducida en un punto "0" de la zona inferior del lecho, [-]
u _{r,abajo}	velocidad reducida en la zona inferior del lecho, [-]
u _{r,arriba}	velocidad reducida en la zona superior al ensanchamiento del lecho, [-]
u _{r,EV}	velocidad reducida para un lecho de esferas de vidrio, [-]
u _{r,GA}	velocidad reducida para un lecho de partículas de γ -Al ₂ O ₃ , [-]
u _{r,PF}	velocidad reducida para un lecho de partículas fosforescentes A, [-]
W _{fotograma}	anchura del fotograma analizado, [pixels]
W _{lecho}	peso del lecho, [g]
z	coordenada de posición vertical en el lecho, [cm]
z ₀	posición vertical en el punto "0" de la zona inferior del lecho, [cm]
z _{dis}	posición del distribuidor secundario respecto a la base del RLFZD-CS, [cm]
z _{cs}	altura del lecho a la cual comienza el cambio de sección, [cm]

BIBLIOGRAFÍA

- [1]. Busciglio, A., Vella, G., Micale, G., Rizzuti, L., Experimental Analysis of Bubble Size Distributions in 2D Gas Fluidized Beds. *Chemical Engineering Science*, 2010 (65) 4782-4791.
- [2]. Busciglio, A., Vella, G., Micale, G., Rizzuti, L., Analysis of the Bubbling Behaviour of 2D Gas Solid Fluidized Beds Part I. Digital Image Analysis Technique. *Chemical Engineering Journal*, 2008, (140) 398-413.
- [3]. Müller, C. R., Davidson, J.F., Dennis, J.S., Hayhurst, A.N., A Study of the Motion and Eruption of a Bubble at the Surface of a Two-Dimensional Fluidized Bed using Particle Image Velocimetry (PIV). *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2007 (46) 1642-1652.
- [4]. Caicedo, G. R., Marqués, J.J.P., Ruiz, M.G., Soler, J.G., A Study on the Behaviour of Bubbles of a 2D Gas-Solid Fluidized Bed using Digital Image Analysis, *Chemical Engineering and Processing*, 2003 (1) 9–14.
- [5]. Soler, J. G., Marqués, J., Ruiz, M., Caicedo, G.R., Calibration of the Method to Measure Bubble Properties in 2D Fluidized Beds. *Chemical Engineering Communications*, 2003 (190) 285-298.
- [6]. Caicedo, G. R., Marqués, J., Ruíz, M., Soler, J., Minimum fluidization velocities for gas-solid 2D beds, *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 2002, (41) 761-764.
- [7]. Shen, L.H., Johnson, F., Leckner, B., Digital Image Analysis of Hydrodynamics Two-Dimensional Bubbling Fluidized Beds. *Chemical Engineering Science*, 2004 (59) 2607-2617.
- [8]. Davidson, J. F., Harrison, D., Jackson, R., Fluidized Particles, *Chemical Engineering Science*, 1964 (19) 701.
- [9]. Mori, S., Wen, C. Y., Estimation of Bubble Diameter in Gaseous Fluidized-Beds. *AIChE Journal*, 1975 (21) 109-115.
- [10]. Busciglio, A., Vella, G., Micale, G., Rizzuti, L., Analysis of the Bubbling Behaviour of 2D Gas Solid Fluidized Beds Part II. Comparison between Experiments and Numerical Simulations Via Digital Image Analysis Technique. *Chemical Engineering Journal*, 2009 (148) 145-163.
- [11]. Herguido, J., Menéndez, M., Santamaría, J. On the use of Fluidized Bed Catalytic Reactors Where Reduction and Oxidation Zones are Present Simultaneously. *Catalysis Today*, 2005 (100) 181-189.
- [12]. Gimeno, M.P., Soler, J., Herguido, J., Menéndez, M., Counteracting Catalyst Deactivation in Methane Aromatization with a Two Zone Fluidized Bed Reactor. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2010 (49) 996-1000.
- [13]. Gascón, J., Téllez, C., Herguido, J., Menéndez, M., A Two-Zone Fluidized Bed Reactor for Catalytic Propane Dehydrogenation. *Chemical Engineering Journal*, 2005 (106) 91-96.
- [14]. Callejas, C., Soler, J., Herguido, J., Menéndez, M., Santamaría, J., Catalytic Dehydrogenation of n-Butane in a Fluidized Bed Reactor with Separate Coking and Regeneration Zones, *Studies in Surface Science and Catalysis* 2000 (130) 2717-2722.

- [15]. Lobera, M. P., Téllez, C., Herguido, J., Menéndez, M., Pt-Sn/MgAl₂O₄ as n-Butane Dehydrogenation Catalyst in a Two-Zone Fluidized-Bed Reactor. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2009 (48) 6573-6578.
- [16]. Lobera, M. P., Téllez, C., Herguido, J., Menéndez, M., Propane Dehydrogenation Over Pt-Sn-K/gamma-Al₂O₃ Catalyst in a Two-Zone Fluidized Bed Reactor. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2008 (47) 9314-9320.
- [17]. Rubio, O., Herguido, J., Menéndez, M., Experimental Study on the Oxidation of Butane to Maleic Anhydride in a Two-Zone Fluidized Bed Reactor. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2002 (41) 5181-5186.
- [18]. Froment, G. F., Kinetic Modeling of Hydrocarbon Processing and the Effect of Catalyst Deactivation by Coke Formation. *Catalysis Reviews-Science and Engineering*, 2008 (50) 1-18.
- [19]. Froment, G. F., Coke Formation in Catalytic Processes: Kinetics and Catalyst Deactivation. *Catalyst Deactivation* 1997 (111) 53-68.
- [20]. Bartholomew, C. H., Mechanisms of Catalyst Deactivation. *Applied Catalysis A-General*, 2001, (212) 17-60.
- [21]. Hughes, R., Hutchings, G., Koon, C.L., McGhee, B., Snape, C.E., The Effect of Feedstock Additives on Fcc Catalyst Deactivation. *Abstracts of Papers of the American Chemical Society*, 1995 (210) 50.
- [22]. Jiménez-García, G., Aguilar-López, R., León-Becerril, E., Maya-Yescas, R., Tracking Catalyst Activity during Fluidized-Bed Catalytic Cracking. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2009 (48) 1220-1227.
- [23]. Gimeno, M. P., Soler, J., Herguido, J., Menéndez, M., Combination of a Two-Zone Fluidized Bed Reactor with a Pd Hollow Fibre Membrane for Catalytic Alkane Dehydrogenation. *Chemical Engineering Journal*, 2009 (155) 298-303.
- [24]. Pacheco, M. L., Soler, J., Dejoz, A., López-Nieto J.M., Herguido, J., Menéndez, M., Santamaría, J., MoO₃/MgO as a Catalyst in the Oxidative Dehydrogenation of n-Butane in a Two-Zone Fluidized Bed Reactor. *Catalysis Today*, 2000 (61) 101-107.
- [25]. Ramos, R., Herguido, J., Menéndez, M., Santamaría, J., Oxidation of Hydrocarbons in An "in-Situ" Redox Fluidized Bed Reactor. *Journal of Catalysis*, 1996 (163) 218-221.
- [26]. Lim, K.S., Zhu, J.X., Grace, J.R., Hydrodynamics of Gas-Solid Fluidization. *International Journal of Multiphase Flow*, 1995 (21) 141-193.
- [27]. Van Deemter, J. J., Mixing and Contacting in Gas-Solid Fluidized Beds. *Chemical Engineering Science*, 1961 (13) 143-154.
- [28]. Mostoufi, N., Chaouki, J., On the Axial Movement of Solids in Gas-Solid Fluidized Beds. *Chemical Engineering Research and Design*, 2000 (78) 911-920.
- [29]. Hull, A.S., Chen, Z.M., Agarwal, P.K., Influence of Horizontal Tube Banks on the Behavior of Bubbling Fluidized Beds 2. Mixing of Solids. *Powder Technology*, 2000 (111) 192-199.
- [30]. Lim, K.S., Gururajan, V.S., Agarwal, P.K., Mixing of Homogeneous Solids in Bubbling Fluidized-Beds - Theoretical Modeling and Experimental Investigation using Digital Image-Analysis. *Chemical Engineering Science*, 1993 (48) 2251-2265.

- [31]. Lakshmanan, C.C., Potter, O., E. Numerical Simulation of the Dynamics of Solids Mixing in Fluidized Beds. *Chemical Engineering Science*, 1990 (45) 519-528.
- [32]. Fan, R., Fox, R.O., Segregation in Polydisperse Fluidized Beds: Validation of a Multi-Fluid Model. *Chemical Engineering Science*, 2008 (63) 272-285.
- [33]. Bokkers, G.A., Van Sint Annaland, M., Kuipers, J.A.M., Mixing and Segregation in a Bidisperse gas–solid Fluidised Bed: A Numerical and Experimental Study. *Powder Technology*, 2004 (140) 176-186.
- [34]. Acosta-Iborra, Sobrino, C., Hernández-Jiménez, F., de Vega, M., Experimental and Computational Study on the Bubble Behavior in a 3-D Fluidized Bed. *Chemical Engineering Science*, 2011 (66) 3499-3512.
- [35]. de Jong, J.F., van Sint Annaland, M., Kuipers, J.A.M., Experimental Study on the Effects of Gas Permeation through Flat Membranes on the Hydrodynamics in Membrane-Assisted Fluidized Beds. *Chemical Engineering Science*, 2011 (66) 2398-2408.
- [36]. Asegehegn, T.W., Schreiber, M., Krautz, H.J., Investigation of Bubble Behavior in Fluidized Beds with and without Immersed Horizontal Tubes using a Digital Image Analysis Technique. *Powder Technology*, 2011 (210), 248-260.
- [37]. Cheng, S., Hirahara, D., Tanaka, Y., Gondai, Y., Zhang, B., Matsumoto, T., Morita, K., Fukuda, K., Yamano, H., Suzuki, T., Tobita, Y., Experimental Investigation of Bubbling in Particle Beds with High Solid Holdup. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 2011 (35) 405-415.
- [38]. Laverman, J.A., Roghair, I., van Sint Annaland, M., Kuipers, J.A.M., Investigation into the Hydrodynamics of Gas-Solid Fluidized Beds using Particle Image Velocimetry Coupled with Digital Image Analysis. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 2008 (86) 523-535.
- [39]. Mudde, R.F., Schulte, H.B.M., Vandenakker, H.E.A., Analysis of a Bubbling 2-D Gas-Fluidized Bed using Image-Processing. *Powder Technology*, 1994 (81) 149-159.
- [40]. Hernández-Jiménez, F., Sánchez-Delgado, S., Gómez-García, A., Acosta-Iborra, A., Comparison between Two-Fluid Model Simulations and Particle Image Analysis & Velocimetry (PIV) Results for a Two-Dimensional gas–solid Fluidized Bed. *Chemical Engineering Science*, 2011 (66) 3753-3772.
- [41]. Lim, K.S., Agarwal, P. K., O'Neill, B. K., Measurement and Modelling of Bubble Parameters in a Two-Dimensional Gas-Fluidized Bed using Image Analysis. *Powder Technology*, 1990 (60) 159-171.
- [42]. Karimipour, S., Pugsley, T., A Critical Evaluation of Literature Correlations for Predicting Bubble Size and Velocity in gas–solid Fluidized Beds. *Powder Technology*, 2011 (205) 1-14.
- [43]. Rowe, P.N., Yacono, C.X.R. The Bubbling Behaviour of Fine Powders when Fluidised. *Chemical Engineering Science*, 1976 (31) 1179-1192.
- [44]. Herzog, N., Schreiber, M., Egbers, C., Krautz, H. J., A Comparative Study of Different CFD-Codes for Numerical Simulation of Gas-Solid Fluidized Bed Hydrodynamics. *Computers & Chemical Engineering*, 2012 (39) 41-46.
- [45]. Liu, D., Xiao, S., Chen, X., Bu, C., Investigation of Solid Mixing Mechanisms in a Bubbling Fluidized Bed using a DEMuCFD Approach. *Asia-Pacific Journal of Chemical Engineering*, 2012 (7) S237-S244.
- [46]. Chen, X.Z., Shi, D. P., Gao, X., Luo, Z.H., A Fundamental CFD Study of the Gas-Solid Flow Field in Fluidized Bed Polymerization Reactors. *Powder Technology*, 2011 (205) 276-288.

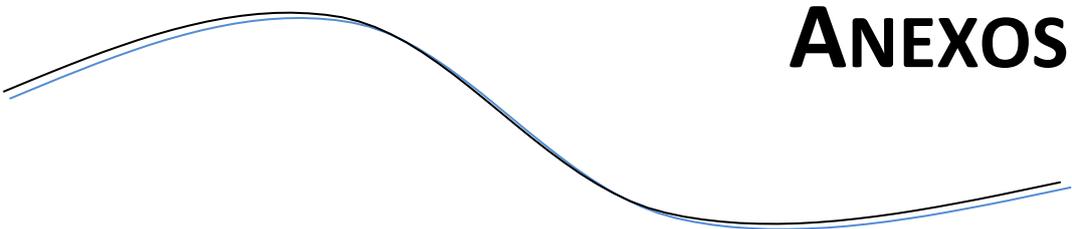
- [47]. Grace, J.R., and Li, T., Complementarity of CFD, Experimentation and Reactor Models for Solving Challenging Fluidization Problems. *Particuology*, 2010 (8) 498-500.
- [48]. Utikar, R.P., and Ranade, V.V., Singlejet Fluidized Beds: Experiments and CFD Simulations with Glass and Polypropylene Particles RID A-5627-2009. *Chemical Engineering Science*, 2007 (62) 167-183.
- [49]. Hamzehei M., Rahimzadeh, H., Ahmadi, G., Studies of Gas Velocity and Particles Size Effects on Fluidized Bed Hydrodynamics with Cfd Modeling and Experimental Investigation. *Journal of Mechanics*, 2010 (26) 267-278.
- [50]. Duangkhamchan, W., Ronsse, F., Depypere, F., Dewettinck, K., Pieters, J.G., Comparison and Evaluation of Interphase Momentum Exchange Models for Simulation of the Solids Volume Fraction in Tapered Fluidised Beds. *Chemical Engineering Science*, 2010 (65) 3100-3112.
- [51]. Sau, D.C., Mohanty, S., Biswal, K.C., Experimental Studies and Empirical Models for the Prediction of Bed Expansion in gas–solid Tapered Fluidized Beds. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 2010 (49) 418-424.
- [52]. Sau, D.C., Mohanty, S., Biswal, K.C., Prediction of Critical Fluidization Velocity and Maximum Bed Pressure Drop for Binary Mixture of Regular Particles in gas–solid Tapered Fluidized Beds. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 2008 (47) 2114-2120.
- [53]. Sau, D.C., Mohanty, S., Biswal, K.C., Correlations for Critical Fluidization Velocity and Maximum Bed Pressure Drop for Heterogeneous Binary Mixture of Irregular Particles in gas–solid Tapered Fluidized Beds. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 2008 (47) 2386-2390.
- [54]. Agarwal, G., Lattimer, B., Ekkad, S., Vandsburger, U., Influence of Multiple Gas Inlet Jets on Fluidized Bed Hydrodynamics using Particle Image Velocimetry and Digital Image Analysis. *Powder Technology*, 2011 (214) 122-134.
- [55]. Pei, P., Zhang, K., Yu, B., Gao, J., Wu, G., Wen, D., Dynamic Characteristics of Binary Mixtures in a Two-Jet Fluidized Bed. *Chemical Engineering Science*, 2011 (66) 1702-1714.
- [56]. Li, T., Pougatch, K., Salcudean, M., Grecov, D., Numerical Simulation of Single and Multiple Gas Jets in Bubbling Fluidized Beds. *Chemical Engineering Science*, 2009 (64) 4884-4898.
- [57]. Kurita, T., Otsu, N., Abdelmalek, N., Maximum-Likelihood Thresholding Based on Population Mixture-Models. *Pattern Recognition*, 1992 (25) 1231-1240.
- [58]. Patrick, E.A., Fischer III, F.P.A., Generalized k-Nearest Neighbor Rule. *Information and Control*, 1970 (16) 128-152.
- [59]. Darton, R.C., Bubble-Growth Theory of Fluidized-Beds Reactors, *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 1979 (57) 134-138.
- [60]. Julián, I., Gallucci, F., van Sint Annaland, M., Herguido, J., Menéndez, M., Coupled PIV/DIA for Fluid Dynamics Studies on a Two-Section Two-Zone Fluidized Bed Reactor. *Chemical Engineering Journal*, 2012, *In press*. DOI: 10.1016/j.cej.2012.06.015
- [61]. Ding, J., Gidaspow, D.A., Bubbling Fluidization Model using Kinetic-Theory of Granular Flow. *AIChE Journal*, 1990 (36) 523-538.
- [62]. Asegehegn, T.W., Schreiber, M., Krautz, H.J., Numerical Simulation and Experimental Validation of Bubble Behavior in 2D gas–solid Fluidized Beds with Immersed Horizontal Tubes. *Chemical Engineering Science*, 2011 (66) 5410-5427.

- [63]. Geldart, D., The Effect of Particle Size and Size Distribution on the Behaviour of Gas-Fluidised Beds. *Powder Technology*, 1972 (6) 201-215.
- [64] Yasui, G., Johanson, L.N., Characteristics of gas pockets in fluidized beds, *AIChE*, 1958 (4), 445.
- [65] Whitehead, A.B., Young, A.D., Fluidization performance in large scale equipment, Part I, *Proc. Intern. Symp. On Fluidization*, Eindhoven, Netherlands, 1967.
- [66] Park, W.H., Kang, W.K., Copes, C.E., Osberg, G.L., The properties of bubble in fluidized beds of conducting particles as measured by an electroresistivity probe, *Chem. Eng. Sci.*, 1969 (24) 851.
- [67] Kato, Wen, C.Y., Bubble assemblage model for fluidized bed catalytic reactors, *Chem. Eng. Sci.* 1969 (24) 1351-1369.
- [68] Rowe, P.N., Prediction of bubble size in a gas fluidized bed, *Chem. Eng. Sci.* 1976 (31) 285-288.
- [69] Geldart, D. The size and frequency of bubbles in two and three dimensional gas fluidized beds, *Powder Technol.* 1971 (4) 41.
- [70] Mori, S., Wen, C.Y., Estimation of bubble diameter in gaseous fluidized beds, *AIChE J.* 1975 (21) 109-115.
- [71] Werther, J., Mathematical modeling of fluidized bed reactors, *Int. Chem. Eng.* 1980 (20) 529-541.
- [72] Darton, R.C., Lanauze, R.D., Davidson, J.F., Harrison, D., Bubble growth due to coalescence in fluidized beds, *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 1977 (55) 274.
- [73]. Grace, J.R., Leckner, B., Zhu, J., Cheng, Y., Fluidized Beds. *Multiphase Flow Handbook*, 2006 (5) 1-93.
- [74]. Venkatesh, R.D., Grmela, M., Chaouki, J., Improvement of Fluidizability of Fine Powders — a Computer Study. *China Particuology*, 2005 (3) 165-169.
- [75]. Kunii, D., Levenspiel, O., Fluidization Engineering. *Butterworth-Heinemann*, 1991.
- [76]. Davidson, J.F., Clift, R., Harrison, D., Fluidization. *Academic Press*, 1985 (2).
- [77]. Geldart, D., Gas Fluidization Technology. *Wiley & Sons*, 1986.
- [78]. Kwauk, M., Fluidization: Idealized and Blubbleless, with Applications. *Science Press*, 1992.
- [79]. Grace, J.R.; Avidan, A.A., Knowlton, T.M., Circulating Fluidized Beds. *Blackie Academic & Professional*, 1997.
- [80]. Song, Y.X., Applying the Principles Learned from the Nature. *Book Bureau*, 1959.
- [81]. Winkler, F.A., Process for Gasifying Coal using Oxygen (Or Air) and Steam in a Fluidized Bed at Atmospheric Pressure. *Patente Alemania*, 1922 (437) 970.
- [82]. Porter, H.F., Schurr, G.A., Wells, D.F., Semrau, K.T., Desecación De Sólidos y Sistemas Gas-Sólido. Perry. *Manual Del Ingeniero Químico. McGraw-Hill*, 1992 (T2).
- [83]. Knox, W.R., Montgomery, P.D., Moore, R.N., Production of Stilbene and Styrene. *Patente Estados Unidos*, 1976 (3965206).

- [84]. Hupp, S.S., and Swift, H.E., Oxidative Coupling of Toluene to Stilbene. *Erdol & Kohle Erdgas Petrochemie*, 1981 (34).
- [85]. Callahan, J.L., Hardman, H.F., Milberger, E.C., Reactor for Contacting Gases and Particulate Solid. *Patente Estados Unidos*, 1979 (4152393).
- [86]. Wheelock, T.D., Gas Distribution System for a Two-Zone Fluidized Bed Reactor. *Patente Estados Unidos*, 2001 (6197265).
- [87]. Ross, J., Gauthier, T., Andreux, R., Novel Reactor with Two Fluidized Reaction Zones with an Integrated gas/solid Separation System. *Patente Estados Unidos*, 2007 (0213573).
- [88]. Carazo, E., Herguido, J., Peña, J.A., Obtención De Hidrógeno En Un Lecho Fluidizado Con Circulación Interna (RLFCI) Mediante Separación De Mezclas H₂/CH₄. *Universidad De Zaragoza*, 2008, Tesis Doctoral.
- [89]. Herguido, J., Menéndez, M., Santamaría, J., Characterization of Porous Ceramic Membranes for their use in Catalytic Reactors for Methane Oxidative Coupling. *Catalysis Today*, 1995 (25) 263-269.
- [90]. López-Nieto, J.M., Soler, J., Concepción, P., Herguido, J., Menéndez, M., Santamaría, J., Oxidative Dehydrogenation of Alkanes Over V-Based Catalysts: Influence of Redox Properties on Catalytic Performance. *Journal of Catalysis*, 1999 (185) 324-332.
- [91]. Gascón, J., Téllez, C., Herguido, J., Menéndez, M., Fluidized Bed Reactors with Two-Zones for Maleic Anhydride Production: Different Configurations and Effect of Scale. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2005 (44).
- [92]. Gascón, J., Téllez, C., Herguido, J., Menéndez, M., Propane Dehydrogenation Over a Cr₂O₃/Al₂O₃ Catalyst: Transient Kinetic Modeling of Propene and Coke Formation. *Applied Catalysis A: General*, 2003 (248) 105-116.
- [93]. Rubio, O., Herguido, J., Menéndez, M., Two-Zone Fluidized Bed Reactor for Simultaneous Reaction and Catalyst Reoxidation: Influence of Reactor Size. *Applied Catalysis A: General*, 2004 (272) 321-327.
- [94]. Alonso, M., Lorences, M.J., Pina, M.P., Patience, G.S., Butane Partial Oxidation in an Externally Fluidized Bed-Membrane Reactor. *Catalysis Today*, 2001 (67) 151-157.
- [95]. Deshmukh, S.A.R.K., Heinrich, S., Mörl, L., van Sint Annaland, M., Kuipers, J.A.M., Membrane Assisted Fluidized Bed Reactors: Potentials and Hurdles. *Chemical Engineering Science*, 2007 (62) 416-436.
- [96]. Patil, C.S., Van Sint Annaland, M., Kuipers, J.A.M., Fluidised Bed Membrane Reactor for Ultrapure Hydrogen Production Via Methane Steam Reforming: Experimental Demonstration and Model Validation. *Chemical Engineering Science*, 2007 (62) 2989-3007.
- [97]. Gander, M., Jefferson, B., Judd, S., Aerobic MBRs for Domestic Wastewater Treatment: A Review with Cost Considerations. *Separation and Purification Technology*, 2000 (18) 119-130.
- [98]. Rios, G.M., Belleville, M.P., Paolucci, D., Sánchez, J., Progress in Enzymatic Membrane Reactors – a Review. *Journal of Membrane Science*, 2004 (242) 189-196.
- [99]. Tennison, S., Current Hurdles in the Commercial Development of Inorganic Membrane Reactors. *Membrane Technology*, 2000 (2000) 4-9.
- [100]. Basile, A., Gallucci, F., Tosti, S., Synthesis, Characterization, and Applications of Palladium Membranes, *Membrane Science and Technology*, 2008 (14) 255-323.

- [101]. Gorgojo, P., de la Iglesia, O., Coronas, J., Preparation and Characterization of Zeolite Membranes, *Membrane Science and Technology*, 2008 (13) 135-175.
- [102]. Ayral, A., Julbe, A., Rouessac, V., Roualdes, S., Durand, J., Microporous Silica Membrane: Basic Principles and Recent Advances, *Membrane Science and Technology*, 2008 (13) 33-79.
- [103]. Fontaine, M.L., Norby, T., Larring, Y., Grande, T., Bredesen, R., Oxygen and Hydrogen Separation Membranes Based on Dense Ceramic Conductors, *Membrane Science and Technology*, 2008 (39) 401-458.
- [104]. Medrano, J.A., Julián, I., Herguido, J., Reactor De Lecho Fluidizado De Dos Zonas Con Membrana Permeable Al Hidrógeno Para Deshidrogenación De Propano. *Universidad De Zaragoza*, 2011, PFC.
- [96]. Soler, J., Téllez, C., Herguido, J., Menéndez, M., Santamaría, J., Modelling of a Two-Zone Fluidised Bed Reactor for the Oxidative Dehydrogenation of n-Butane. *Powder Technology*, 2001 (120) 88-96.
- [106]. Rubio, O., Herguido, J., Menéndez, M., Oxidative Dehydrogenation of Butane in an Interconnected Fluidized-Bed Reactor. *AIChE Journal*, 2004 (50) 1510-1522.
- [107]. Lobera, M.P., Téllez, C., Herguido, J., Menéndez, M., Transient Kinetic Modelling of Propane Dehydrogenation Over a Pt-Sn-K/Al₂O₃ Catalyst. *Applied Catalysis A: General*, 2008 (349) 156-164.
- [108]. Julián, I., Herguido, J., Téllez, C., Deshidrogenación Catalítica De Propano En Un Nuevo Reactor Multifuncional: Lecho Fluidizado De Dos Zonas (RLFDZ) Con Membrana Permeable Al Hidrógeno. *Universidad De Zaragoza*, 2010, PFC.
- [109]. Gimeno, M.P., Menéndez, M., Soler, J., Ensayo y Mejoras Del Reactor De Lecho Fluidizado De Dos Zonas En Procesos De Deshidrogenación y Oxidación Catalítica Selectiva. *Universidad De Zaragoza*, 2009, Tesis Doctoral.
- [110]. Pérez-Moreno, L., Herguido, J., Soler, J., Producción De Hidrógeno Mediante Reacciones De Reformado En Reactor De Lecho Fluidizado De Dos Zonas. *Universidad De Zaragoza*, 2012, Tesis Doctoral.
- [111]. Yus, M., Soler, J., Menéndez, M., Reformado De Glicerol En Reactores De Lecho Fluidizado. *Universidad De Zaragoza*, 2012, TMF.
- [112]. San Pío, M.A., Julián, I., Herguido, J., Estudio Fluidodinámico De La Fase Densa En Un Reactor De Lecho Fluidizado Con Cambio De Sección. Validación Del Modelo 'Counter-current Backmixing' (CCBM). *Universidad De Zaragoza*, 2012, PFC.
- [113]. Rubio, O., Herguido, J., Menéndez, M., Oxidative Dehydrogenation of n-Butane on V/MgO catalysts—kinetic Study in Anaerobic Conditions. *Chemical Engineering Science*, 2003 (58) 4619-4627.
- [114]. Gimeno, M.P., Soler, J., Herguido, J., Menéndez, M., Selective Oxidation of o-Xylene to Phthalic Anhydride Over V₂O₅/TiO₂: Kinetic Study in a Fluidized Bed Reactor. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 2008 (47) 1844-1852.
- [115]. Pérez-Moreno, L., Soler, J., Herguido, J., Menéndez, M., Stable Steam Reforming of Ethanol in a Two-Zone Fluidized-Bed Reactor. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2012 (51) 26.
- [116]. Werther, J., Molerus, S.O., The Local Structure of Gas Fluidized Beds —II. the Spatial Distribution of Bubbles. *International Journal of Multiphase Flow*, 1973 (1) 123-138.

- [117]. Kobayashi, N., Yamazaki, R., Mori, S., A Study on the Behavior of Bubbles and Solids in Bubbling Fluidized Beds. *Powder Technology*, 2000 (113) 327-344.
- [118]. Farshi, A., Javaherizadeh, H., Hamzavi-Abedi, M. A. Investigation of the Effect of Bubble Diameter on the Performance of Gas-Solid Fluidized Bed Reactor and Two-Phase Modelling of Gas Fluidized Bed Reactor in Melamine Production. *Petroleum & Coal*, 2008 (50) 11-22.
- [119]. Corella, J., and Bilbao, R., Fluid Dynamic Study of a New Type of Solid Gas Contactor - the Fluidized Fixed Or Fluidized-Bed. *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development*, 1982 (21).
- [120]. Clift, R., Grace, J.R., Weber, M.E., Stability of Bubbles in Fluidized-Beds. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, 1974 (13) 45-51.
- [121]. Littman, H., Homolka, G.A.J., The Pressure Field Around a Two-Dimensional Gas Bubble in a Fluidized Bed. *Chemical Engineering Science*, 1973 (28) 2231-2243.
- [122]. Lim, K.S., Agarwal, P.K. Bubble Velocity in Fluidized Beds: The Effect of Non-Vertical Bubble Rise on its Measurement using Submersible Probes and its Relationship with Bubble Size. *Powder Technology*, 1992 (69) 239-248.
- [123]. Van Buijtenen, M.S., Börner, M., Deen, N.G., Heinrich, S., Antonyuk, S., Kuipers, J.A.M., An Experimental Study of the Effect of Collision Properties on Spout Fluidized Bed Dynamics. *Powder Technology*, 2011 (206) 139-148.
- [124]. Bokkers, G.A., Laverman, J.A., van Sint Annaland, M., Kuipers, J.A.M., Modelling of Large-Scale Dense gas–solid Bubbling Fluidised Beds using a Novel Discrete Bubble Model. *Chemical Engineering Science*, 2006 (61) 5590-5602.
- [125]. Goldschmidt, M.J.V., Kuipers, J.A.M., Van Swaaij, W.P.M., Hydrodynamic Modelling of Dense Gas-Fluidised Beds using the Kinetic Theory of Granular Flow: Effect of Coefficient of Restitution on Bed Dynamics. *Chemical Engineering Science*, 2001 (56) 571-578.

A decorative graphic consisting of two parallel, wavy lines. The top line is black and the bottom line is blue. They follow a similar path, starting with a slight upward curve, then a larger downward curve, and finally a slight upward curve at the end.

ANEXOS

ANEXO A

REACTORES DE LECHO FLUIDIZADO

A.1 Reactores de lecho fluidizado. Generalidades

La fluidización es la consecución de propiedades similares a las de un fluido para un lecho de partículas sólidas de pequeño tamaño, por efecto del contacto con un gas o líquido en flujo vertical ascendente. En un “lecho fluidizado” el comportamiento del lecho de partículas reúne las siguientes características:

- a) Horizontalidad en la superficie del lecho, aún inclinado el recipiente.
- b) Existencia de flujo de sólido al practicar un orificio en la pared del recipiente.
- c) Cumplimiento del principio de vasos comunicantes.

La fluidización de un sólido no siempre es posible y depende tanto de las características de las partículas sólidas como de las propiedades del gas de contacto. Las condiciones requeridas en las partículas para poder ser utilizadas en reactores de lecho fluidizado [73] se muestran en la Tabla A.1.

Tabla A. 1 Propiedades deseables en las partículas para una buena fluidización

Propiedades	Rango deseado	Comentario
Diámetro de partícula	50 μm – 1,6 mm	Los finos pueden dar lugar a cohesión, disminuyendo las propiedades de fluidización.
Distribución de tamaños	Ni muy amplio ni estrecho	Estrecho: malas propiedades de fluidización. Amplio segregación de partículas.
Forma	Redondeada: longitud/espesor ≤ 3	Las formas de disco o aguja inhiben la fluidización.
Rugosidad	Suave	Una cierta rugosidad es tolerable.
Resistencia a la atrición	Tan fuerte como sea posible	Las partículas deben poseer resistencia a la atrición porque pasan muchas horas en el lecho
Dureza	Evitar elasticidad y excesiva dureza	Las compresibles dan lugar a fuerzas interparticulares. Las duras pueden causar desgaste de los componentes del equipo

Los intervalos pueden ser puntualmente rebasados de modo que, por ejemplo, el polvo (partículas finas) es fluidizable mediante agitación o vibración suave [74] pero no fluidizable sin ayuda mecánica debido a la magnitud de las fuerzas de cohesión interparticulares.

Existen, principalmente, tres clasificaciones de reactores de lecho fluidizado: en función del tipo de contacto fluido-sólido, del modo de operación y del régimen de flujo gas-sólido [75].

Configuración según el tipo de contacto:

- *Gas-Sólido*
- *Líquido-Sólido*
- *Gas-Líquido-Sólido*

Configuración según el modo de operación:

- *Reactores de lecho fluidizado convencionales* (RLF). Las partículas fluidizan y se encuentran permanentemente en el reactor.

Configuración según el régimen de flujo Gas-Sólido (en orden creciente de la velocidad del gas):

- ✓ Lecho fluidizado a velocidad de mínima fluidización
- ✓ Lecho fluidizado burbujeante
- ✓ Lecho fluidizado turbulento
- ✓ Lecho fluidizado con fluidización rápida
- ✓ Lecho fluidizado con transporte neumático

- *Reactores de lecho fluidizado circulante* (RLFC). Las partículas fluidizadas se extraen del reactor para, posteriormente, ser recirculadas a su interior.

Configuración según el régimen de flujo Gas-Sólido (en orden creciente de la velocidad del gas):

- ✓ Fluidización rápida
- ✓ Transporte neumático
- ✓ Transporte de partículas densas

Entre las ventajas de los *RLF* destacan [75-80]:

- Baja pérdida de carga respecto a las operaciones en lecho fijo.
- Excelente capacidad de transferencia de calor (y, por tanto, gran homogeneidad térmica a lo largo del lecho).
- Contacto fluido-sólido muy eficiente.
- Posibilidad de empleo de un amplio rango de partículas y variedad de materiales.

Un *RLFC* cuenta con ventajas adicionales además de las señaladas para los *RLF* (79):

- Posibilidad de trabajar a altas velocidades de circulación en el lecho.
- Posibilidad de realizar dos reacciones diferentes al mismo tiempo.
- Distribución uniforme de tiempos para fase sólida y fase gas.

A.2 Aplicación y desarrollo de los reactores de lecho fluidizado

Aunque los procesos de contacto gas-sólido son utilizados desde tiempos remotos, es en 1637 cuando se registra por vez primera la aplicación tecnológica de la fluidización en el libro *Applying the principles learned from the nature*, donde se describe la separación de las arenas del grano a través de un proceso de vibración-aventamiento [80]. La primera aplicación de un reactor de lecho fluidizado tuvo lugar ya en el siglo XX en Alemania, donde se utilizó para producir combustible a partir de la gasificación de carbón [81]. A partir de entonces, la tecnología de los RLF convencionales ha sufrido una gran expansión y se han desarrollado nuevos modelos en función de la velocidad de flujo requerida, el tamaño de partícula y el tipo de fluido utilizado [73]. Una recopilación de los modelos de reactor de lecho fluidizado desarrollados [73] se muestra en la Tabla A.2.

Tabla A. 2 Modelos de reactor de lecho fluidizado

Modelo de reactor	Medio de fluidización	Tamaño tipo de partícula	Velocidad de fluidización
Burbujeante	Gas	Medio-grande	Baja
Flujo turbulento	Gas	Pequeño-medio	Media
Riser circulante	Gas	Pequeño	Alta
Lecho líquido-sólido	Líquido	Medio-grande	Baja
Lecho líq.-gas-sól.	Gas y Líquido	Medio-grande	Baja
Lecho líq.- sól. Circulante	Líquido	Pequeño-medio	Alta
L. gas - líq- sól. Circulante	Gas y Líquido	Pequeño-medio	Alta
Lecho de flujo inverso	Líquido	Pequeño-medio	Baja

Múltiples tecnologías y aplicaciones industriales se han visto favorecidas por el desarrollo de reactores de lecho fluidizado de modo que, en función del sistema gas-sólido utilizado, se pueden llevar a cabo procesos físicos (segregación de sólidos) o químicos (reacciones gas-sólido, reacciones catalíticas y reacciones en fase gas). Entre los procesos químicos consolidados a nivel industrial destacan el craqueo catalítico (FCC), llevado a cabo en un reactor tipo Riser (RLFC), la combustión y la gasificación [82]. Respecto a los procesos físicos, el más habitual es el secado de partículas en la industria alimentaria.

La adaptación a diferentes procesos constituye un factor clave en la implantación y el desarrollo de reactores de lecho fluidizado. Por este motivo se requiere optimizar el diseño de los reactores, así como realizar un estudio pormenorizado de las variables de operación del sistema, a fin de adaptar el modo de contacto sólido-fluido a los requerimientos del proceso y optimizar así la selectividad al producto de interés en cada caso.

En esta línea, y a lo largo de más de una década, el Grupo de Catálisis, Separaciones Moleculares e Ingeniería de Reactores (CREG) de la Universidad de Zaragoza investiga alternativas a los procesos ya existentes para operar en continuo, tanto para sistemas de oxidación catalítica con separación de etapas oxidación-reducción, como para sistemas en los que se produce desactivación del catalizador por formación de coque. La idea inicial fue utilizar un reactor de lecho fluidizado para procesos en los que el catalizador pasase por diferentes zonas (oxidación, reducción), logrando la separación de atmósferas en el mismo lecho mediante la alimentación localizada de reactivos en diferentes puntos del mismo. El objetivo es aunar las ventajas de los sistemas de RLF (isotermicidad del lecho e intensa mezcla de sólidos) pero empleando un único reactor que pueda funcionar en continuo, permitiendo el trasvase de catalizador entre ambas zonas [11].

A.3 Reactores de lecho fluidizado de dos zonas

La configuración del RLF en la que el agente oxidante se introduce por la zona inferior del lecho y el agente reactivo se introduce en un punto intermedio del lecho fue utilizada por primera vez en una patente de Monsanto para la producción de etilbenceno a partir de la dimerización oxidativa de tolueno [83]. Sin embargo, en dicho estudio no se indica que exista algún tipo de transporte de oxígeno en la red cristalina del catalizador. En 1979, Hupp y Swift [84] describieron un reactor de lecho fluidizado con una zona oxidante y una reductora, con circulación de sólido entre ambas zonas y alimentación de oxígeno e hidrocarburo en diferentes puntos del lecho, aunque no llegaron a utilizar dicho sistema en sus experimentos. En el mismo año, la solicitud de patente presentada por Callahan [85] describe una sola cámara donde ocurre la reacción y la regeneración, de forma que el catalizador se mueve de una zona a otra, pero los gases de la zona de reacción no se mezclan con los de la zona de oxidación. Ya en 2001, [86] Wheelock plantea también un lecho fluidizado de dos zonas, en el que ambas zonas son del mismo tamaño, donde se pueden alimentar distintos gases en cada una de ellas, siendo la utilidad de estas alimentaciones separadas la optimización de la atmósfera de reacción. En la solicitud de patente presentada por Ros en 2007 [87] se describe un reactor de dos zonas de distinta sección, aplicado a reacciones gas-sólido catalíticas, donde el propósito de estas dos zonas es cambiar el tiempo de residencia entre ambas, trabajando en la segunda sección en un lecho tipo riser.

Con esta misma filosofía, el grupo CREG ha investigado y desarrollado dos sistemas basados en la creación de diferentes atmósferas en el mismo lecho de catalizador que permitan la operación en continuo: el *reactor de lecho fluidizado de dos zonas* (RLFDZ) y el *reactor de lecho fluidizado de circulación interna* (RLFCI) [11]. A partir de estos sistemas de reacción, las líneas de investigación del grupo se han centrado en el estudio de reacciones catalíticas heterogéneas [12,13,15,16,23-25] y separación de hidrógeno a partir de mezclas de hidrocarburo ricas en hidrógeno (pirólisis de biomasa y descomposición termo-catalítica de gas natural) [88]. Un esquema de las diversas configuraciones de RLFDZ utilizadas en las investigaciones del CREG se muestra en la Figura A.1.

La característica fundamental de un RLFDZ radica en que se dispone de dos zonas de alimentación separadas, una de ellas en la parte inferior del reactor y otra que permite la introducción de los reactivos en un punto intermedio del lecho. Trabajando en las condiciones

adecuadas de operación, se puede lograr la creación de dos zonas del reactor con diferentes atmósferas. El campo de aplicación de este nuevo modelo de reactor es muy amplio ya que multitud de reacciones catalíticas heterogéneas, debido a la desactivación del catalizador o a la saturación del adsorbente, se han de llevar a cabo de forma discontinua o semi-continua en reactores de lecho fijo o RLFC. Con estas nuevas configuraciones, la posibilidad de operar de forma continua empleando un único reactor supone una gran ventaja.

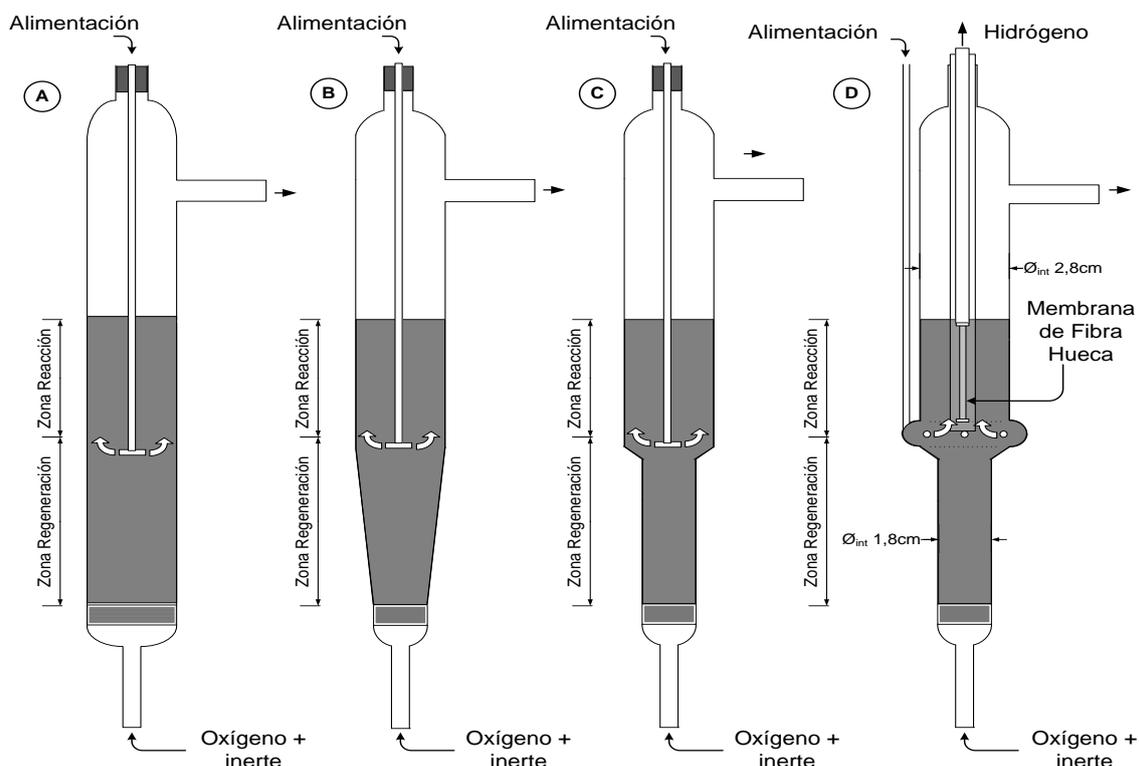


Figura A. 1 Distintas configuraciones de Reactores de Lecho Fluidizado de Dos Zonas. A) RLFDZ con sección constante. B) RLFDZ con cambio de sección progresivo. C) RLFDZ con cambio brusco de sección. D) RLFDZ con cambio brusco de sección y membrana permeoselectiva a H_2 .

En cuanto al Reactor de Lecho Fluidizado con Circulación Interna (RLFCI), la configuración presenta una lámina vertical en su interior de modo que se generan dos zonas (reacción y regeneración, respectivamente) y la transferencia de sólido entre ambas se produce mediante unas conexiones en la parte superior e inferior de la placa divisoria. El trasvase de catalizador entre las zonas inferior y superior sucede a partir del cambio de velocidad del gas a ambos lados de la lámina que genera un gradiente de presión. El RLFCI ha sido utilizado tanto en deshidrogenación de propano [88] como en deshidrogenación oxidativa de butano [14]. La Figura A.2 muestra un esquema del RLFCI diseñado por el grupo de investigación CREG.

En un primer momento, el RLFDZ se utilizó para llevar a cabo una oxidación catalítica selectiva (acoplamiento oxidativo de metano) [25], ya que los modos habituales de operación no lograban controlar el estado de oxidación del catalizador, con las consecuentes pérdidas de selectividad al producto deseado. En esta ocasión, se usaron catalizadores tipo redox actuando como un reservorio de oxígeno para ser transferido en reacciones de oxidación, permitiendo la

segregación de zonas con diferente naturaleza redox en el RLFZ. De esta forma, en una de ellas se produce la reacción de oxidación selectiva y en la otra zona tiene lugar la re-oxidación del catalizador, pudiendo controlar de forma más eficiente el estado de oxidación del catalizador e incrementando la selectividad del proceso. Se comprobó que era posible agotar la mayor parte del oxígeno por debajo del punto de introducción del hidrocarburo.

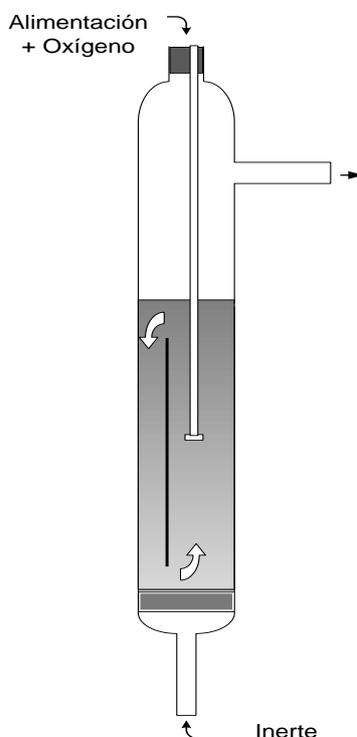


Figura A. 2 Esquema de un Reactor de Lecho Fluidizado con Circulación Interna (RLFCI).

Más tarde, se demostró que la selectividad a olefinas, principalmente a butadieno, puede ser incrementada mediante otra reacción redox como la deshidrogenación oxidativa de n-butano sobre catalizadores VMgO, cuando se usa un RLFZ [90]. La oxidación parcial de n-butano para la producción de anhídrido maleico se estudió en un RLFCI empleando un catalizador comercial VPO [91] obteniéndose rendimientos a anhídrido maleico que superaban a los obtenidos en otros sistemas de reacción con altas concentraciones de hidrocarburo y sin utilizar ciclos redox como es el caso del lecho fijo o reactores de membrana. Su aplicabilidad a reacciones en las que la formación de coque provoca la desactivación del catalizador quedó demostrada en el trabajo realizado sobre deshidrogenación de n-butano con catalizadores $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ [14] y, posteriormente, se estudió [92] la deshidrogenación de propano empleando un catalizador $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$, alcanzando rendimientos a propileno del 30%. El principio de funcionamiento del RLFZ aplicado a reacciones de deshidrogenación de alcanos, consiste en la alimentación de oxígeno junto con inerte por la parte inferior del reactor mientras el hidrocarburo se alimenta por un punto intermedio del lecho, de forma que en la parte inferior, el oxígeno se consume al reaccionar con los depósitos de coque del catalizador y en la zona superior sucede la deshidrogenación. Si la separación de ambas zonas es buena, la deshidrogenación de alcanos tendrá lugar en ausencia de oxígeno y el movimiento de sólido entre las dos regiones permitirá la consecución del estado estacionario, permitiendo la regeneración

in situ del catalizador en continuo. Al mismo tiempo, la combustión del coque en la zona inferior del reactor supondría una importante fuente de energía para llevar a cabo la reacción de deshidrogenación, dado su carácter endotérmico.

En todas las investigaciones llevadas a cabo por el CREG se usaron, en primer lugar, reactores de tamaño relativamente pequeño (3 cm de diámetro) y construidos en cuarzo. Posteriormente, y con el objetivo de comprobar la viabilidad de los sistemas a escalas mayores en las que no fueran preponderantes los efectos de interacción burbuja-pared, se diseñaron y construyeron, en acero inoxidable, reactores de mayor tamaño (6 y 10 cm de diámetro interno). Rubio [93] comprobó que los resultados obtenidos en un reactor de hasta 10 cm de diámetro interno son similares a los observados a escalas inferiores. Gascón [91] amplió dicho trabajo mediante el estudio de la oxidación parcial de n-butano sobre un catalizador VPO, y al igual que en el caso anterior, observó que el cambio de escala no supone una pérdida de selectividad a anhídrido maleico.

El foco de investigación actual del CREG se centra en la aplicación del reactor de dos zonas a procesos de reformado por vapor autocatalítico o aromatización de metano para la producción de benceno, tolueno y xileno [12]. Se está profundizando en el estudio de las distintas variables de operación, su influencia en el rendimiento del proceso y la geometría del reactor para la adaptación a procesos con caudales de distinta magnitud [12].

Por otro lado, diversos trabajos muestran la posibilidad de utilizar los reactores de lecho fluidizado junto con membranas [62] que permitan distribuir reactivos dentro del reactor [94-95] o bien eliminar algún producto [96] para mejorar los rendimientos obtenidos, por lo que podría ser interesante incluir este modo de trabajo a un RLFZ. En este sentido se ha estudiado la incorporación al RLFZ de membranas selectivas al hidrógeno para desplazar el equilibrio en procesos como la deshidrogenación de propano compensando la mayor tendencia a formar coque en esas condiciones con la regeneración continua del catalizador propia del RLFZ [23].

A.4 Reactores de membrana

Los reactores de membrana constituyen en la actualidad uno de los sistemas compactos de reacción más completos, si bien continúan en proceso de investigación y mejora de sus prestaciones. La multifuncionalidad reunida en un único reactor, permite reducir los costes del proceso aumentando la seguridad del mismo gracias a la simplicidad del sistema. La limitación la impone la integración de la membrana en íntimo contacto con el sistema de reacción y la adaptabilidad de su geometría. La utilización de membranas poliméricas permite grandes mejoras en procesos que tienen lugar a bajas temperaturas [97-98], pero resultan inaplicables en condiciones más exigentes, lo que restringe su uso en muchos procesos químicos industriales [99]. Las membranas inorgánicas (metálicas [100], con materiales microporosos [101-102] o cerámicas [103]) sin embargo, podrían soportar altas temperaturas por lo que las investigaciones se centran en su desarrollo y adaptación a los reactores de membrana.

Una de las aplicaciones del reactor basado en membranas inorgánicas consiste en eliminar un producto de la mezcla de reacción. Si la conversión de equilibrio de la reacción está

limitada termodinámicamente, retirando uno de los productos (por permeoselectividad) se incrementa la conversión por desplazamiento del equilibrio. Los reactores de membrana se utilizaron ya hace varias décadas para la eliminación de H_2 [98] en procesos de reformado [102] y deshidrogenación de alcanos. Dentro de esta categoría, los reactores de membrana basados en paladio son los más estudiados, pero todavía no se han implantado industrialmente debido al elevado coste del Pd. La deposición de capas finas de paladio ($2 \mu m$ de espesor) sobre soportes cerámicos podría constituir una solución factible al problema de coste, incrementando además la permeabilidad a hidrógeno [94]. Un segundo inconveniente de los reactores de membrana para la retirada de H_2 es la tendencia al aumento de formación de materiales carbonosos (coque). Este hecho se ha observado en muchos casos y, debido a la rápida desactivación causada por la deposición de coque sobre la superficie del catalizador, se observa un descenso continuo en la conversión, efecto contrario al buscado [94-95]. En un trabajo reciente [104] se propone el empleo de un caso particular de membrana de paladio, denominada membrana de fibra hueca de Pd que, combinada con un RLFZ capaz de contrarrestar la desactivación del catalizador, podría ser capaz de superar las limitaciones mencionadas.

ANEXO B

LÍNEAS DE INVESTIGACIÓN EN RLFZ

El grupo de Catálisis, Separaciones Moleculares e Ingeniería de Reactores (CREG), perteneciente al Instituto de Investigación en Ingeniería de Aragón (I3A) de la Universidad de Zaragoza, lleva más de una década investigando el diseño y la aplicabilidad de un novedoso reactor redox para llevar a cabo reacciones gas-sólido catalíticas limitadas por una rápida desactivación del catalizador: el “reactor de lecho fluidizado de dos zonas” (RLFZ).

Como se ha comentado a lo largo de la Memoria, el reactor propuesto consiste un lecho fluidizado en el que se alimentan reactivos de manera localizada. De este modo se logra la separación de atmósferas (oxidativa y reductora) en un mismo lecho y la circulación de sólidos entre ambas zonas permite la regeneración simultánea del catalizador. Entre las ventajas que se presuponen a este novedoso tipo de reactor se encuentran la compacidad del sistema, la posibilidad de alcanzar un régimen autotérmico y la capacidad de trabajar en continuo sin pérdida de actividad catalítica.

Una de las reacciones gas-sólido catalíticas en la que más rápidamente se desactiva el catalizador por deposición de coque sobre su superficie activa es el craqueo catalítico de petróleo (FCC), como se muestra en la Figura B.1. Según este gráfico, la pérdida de actividad del catalizador para reacciones FCC tiene lugar de manera prácticamente instantánea. Por este motivo se desarrollaron los reactores de lecho fluidizado circulante, característicos del proceso FCC, que permiten la regeneración instantánea del catalizador.

Otras reacciones como la deshidrogenación de alcanos, muy relevante en la obtención de olefinas ligeras utilizadas como precursores poliméricos (etileno, propileno), da lugar a una pérdida de actividad catalítica transcurridos unos minutos a partir del comienzo de la reacción. El lecho arrastrado característico del proceso FCC no sería tan eficiente, en este caso, ya que la cinética de desactivación es más lenta. Los procesos desarrollados a escala industrial para deshidrogenación de propano (Oleflex®), por ejemplo, funcionan en régimen semicontinuo estableciendo etapas de reacción y regeneración catalítica en reactores colocados en serie. De acuerdo con la cinética de desactivación para este tipo de reacciones, del mismo orden que la velocidad de circulación de partículas entre las zonas oxidante y reductora del lecho fluidizado, la deshidrogenación de alcanos constituye una reacción idónea para ser llevada a cabo en un RLFZ. Esto mismo sucede con las reacciones de aromatización de metano para la obtención de hidrocarburos aromáticos (BTX) o con algunas reacciones de reformado de naftas.

B.1 RLFZ como solución a la desactivación catalítica

Esta línea de trabajo motivó la investigación del CREG en busca de reacciones gas-sólido catalíticas limitadas por una desactivación rápida del catalizador y cuyos productos de reacción fueran fuertemente demandados en el mercado.

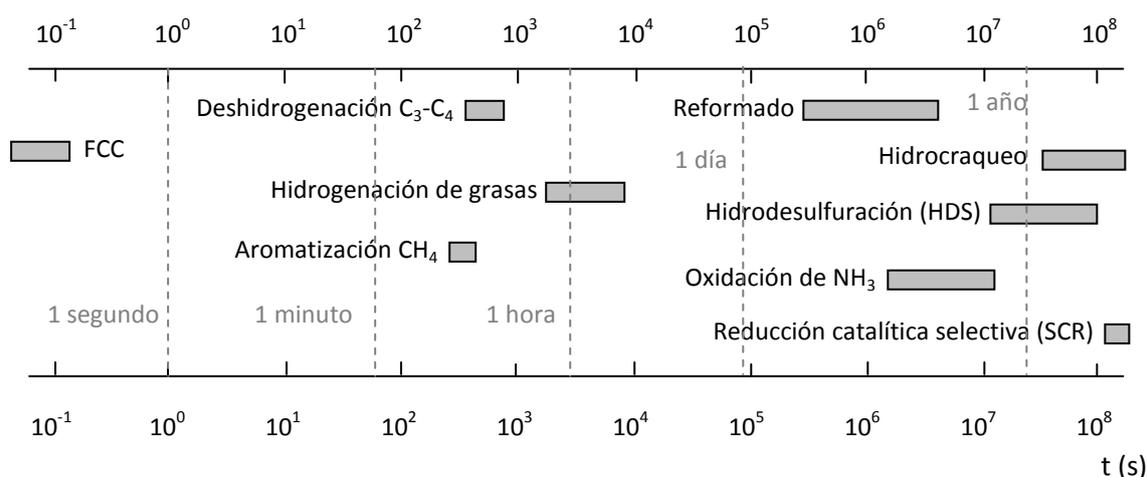


Figura B.1 Tiempo de desactivación catalítica para diferentes procesos de la industria química

La primera reacción catalítica que se investigó en los laboratorios del CREG para analizar la viabilidad y el funcionamiento de un RLFZ fue el acoplamiento oxidativo de metano (OCM) para producir etileno, la principal materia prima en la industria química por su diversidad de aplicaciones [89].

Ya en 1999, Soler y cols. llevaron a cabo el estudio de un catalizador basado en V-Mg-O para la deshidrogenación oxidativa de n-butano [90], siendo muy activo y selectivo pero afín a la deposición de coque. Estos mismos autores modelaron el comportamiento cinético de la deshidrogenación de n-butano, así como de la velocidad de desactivación del catalizador [105] y mostraron que el RLFZ era capaz de contrarrestar dicha desactivación manteniendo una actividad catalítica constante a lo largo del tiempo [14].

Nuevos estudios sobre diferentes catalizadores basados en óxido de molibdeno no mejoraron los resultados obtenidos con catalizadores de vanadio [24] por lo que se siguió explorando esta línea trabajando con una nueva configuración de reactor, el "reactor de lecho fluidizado con circulación interna", RLFCI [97] y realizando, a su vez, un escalado a planta piloto del RLFZ para deshidrogenación de n-butano (93). Paralelamente se investigaron diferentes catalizadores para llevar a cabo la deshidrogenación de propano en RLFZ [13], estudiando la cinética de transitoria de formación de propileno y coque sobre catalizadores basados en óxido de cromo (92) y catalizadores de Pt/Sn sobre alúmina [16, 107].

Se disminuyó la tendencia a la formación de coque introduciendo catalizadores soportados en MgAl₂O₄ con estructura de espinela, menos ácidos y más resistentes a la atrición que los basados en γ-Al₂O₃, para la deshidrogenación de alcanos [15] y se incrementó la multifuncionalidad del reactor introduciendo en el lecho membranas de Pd permeoselectivas a H₂. El objetivo consiste en retirar selectivamente hidrógeno del lecho para desplazar el equilibrio de deshidrogenación hacia la formación de olefinas. Los estudios preliminares en la integración de reactores RLFZ con membranas de paladio resultaron satisfactorios, desplazando ligeramente el equilibrio de reacción en la deshidrogenación de n-butano y manteniendo una actividad catalítica constante [23]. Actualmente, la

multifuncionalidad del reactor de membrana está siendo validada para deshidrogenación de propano [104, 108].

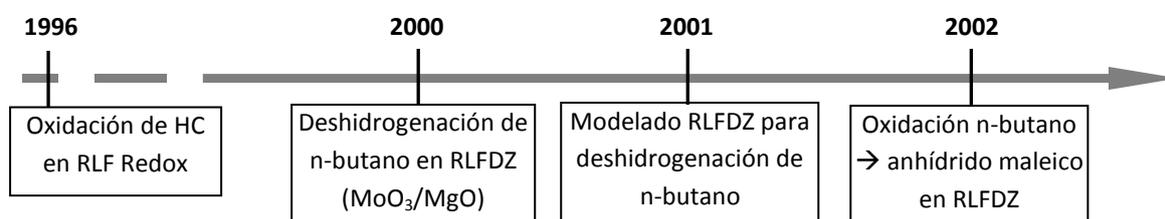
Nuevas líneas de trabajo consistieron en el uso del RLFZ para procesos de aromatización de metano (gas natural) con el objetivo de producir benceno y sus derivados [12]. El uso de un reactor capaz de contrarrestar la desactivación del catalizador (basado en zeolitas) así como la posibilidad de alcanzar un régimen autotérmico en la reacción, le reportaron a este sistema la patente española ES2009/070240. Actualmente, se están llevando a cabo ensayos en planta piloto sobre esta tecnología a cargo de la compañía CEPSA.

Por otro lado, se profundizó en la aplicación del reactor en nuevas reacciones catalíticas heterogeneas como: oxidación selectiva de benceno a fenol [109], reformado oxidativo de metano y etanol [110] o reformado de glicerol con vapor de agua [111].

Además, recientemente se introdujo el concepto de “reactor de lecho fluidizado de dos zonas con cambio de sección”, RLFZ-CS con el objetivo de establecer un control sobre el régimen fluidodinámico de la parte inferior del lecho, o zona de regeneración, independiente del régimen de fluidización de la parte superior o zona de reacción. Esto implica secciones de paso de gas diferentes en ambas zonas del lecho y, por tanto, un ángulo de transición (α) o cambio de sección entre ellas. Dado que no existen estudios previos sobre la afección del cambio de sección y las dos entradas de gas al lecho en el comportamiento fluidodinámico del lecho, se decidió abrir una línea de investigación en el estudio fluidodinámico del RLFZ-CS.

Los estudios hidrodinámicos que se muestran en el presente documento, así como estudios paralelos sobre la fluidodinámica de la fase densa (particulada) [112] y estudios adicionales llevados a cabo en una colaboración internacional con el grupo de Reactores Multifásicos de la Universidad Técnica de Eindhoven, TUE (Países Bajos) [60], pretenden ayudar a cuantificar el efecto de las condiciones de operación (α , caudales de gas, tipo de partículas) sobre el funcionamiento del RLFZ-CS.

En la Figura B.2 se detalla la línea temporal de trabajos e investigaciones relacionadas con el desarrollo del RLFZ / RLFZ-CS publicados por el CREG en revistas de impacto internacional.



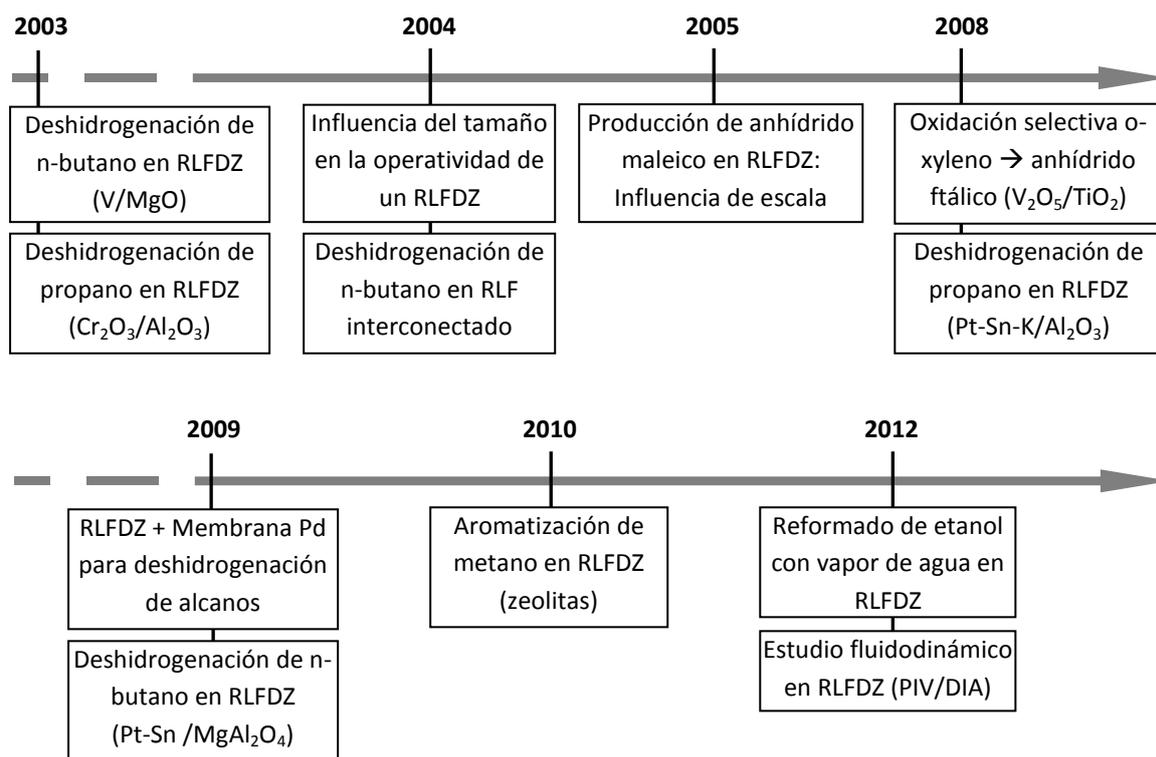


Figura B.2 Cronología de publicaciones sobre el uso del reactor RLFZ por parte del CREG [12, 16-17, 23-24, 60, 89, 91-93, 96-106, 113-115]

B.2 Resultados relevantes en RLFZ

Los resultados obtenidos para las diversas reacciones llevadas a cabo en RLFZ muestran que es posible estabilizar la actividad catalítica mediante el sistema de reacción planteado con regeneración del catalizador en continuo.

En trabajos recientes sobre deshidrogenación de propano [104], se observó como el RLFZ es capaz de mantener constante el rendimiento a propileno a lo largo del tiempo (Figura B.3.a), en comparación con la pérdida de actividad mostrada al operar en lechos fluidizados convencionales (Figura B.3.b). En otras reacciones como la aromatización de metano, el uso del RLFZ supuso una mejora sustancial del rendimiento estacionario a benceno respecto otros sistemas de operación [109], como se muestra en la Figura B.4. Lobera y cols. [15] encontraron un porcentaje óptimo de oxígeno diluido en la corriente de regeneración para contrarrestar la desactivación del catalizador en la deshidrogenación de n-butano a 530 °C (Figura B.5.a) y estudiaron la variación de la distribución de los productos de reacción en función de la cantidad de agente oxidante en el lecho (Figura B.5.b).

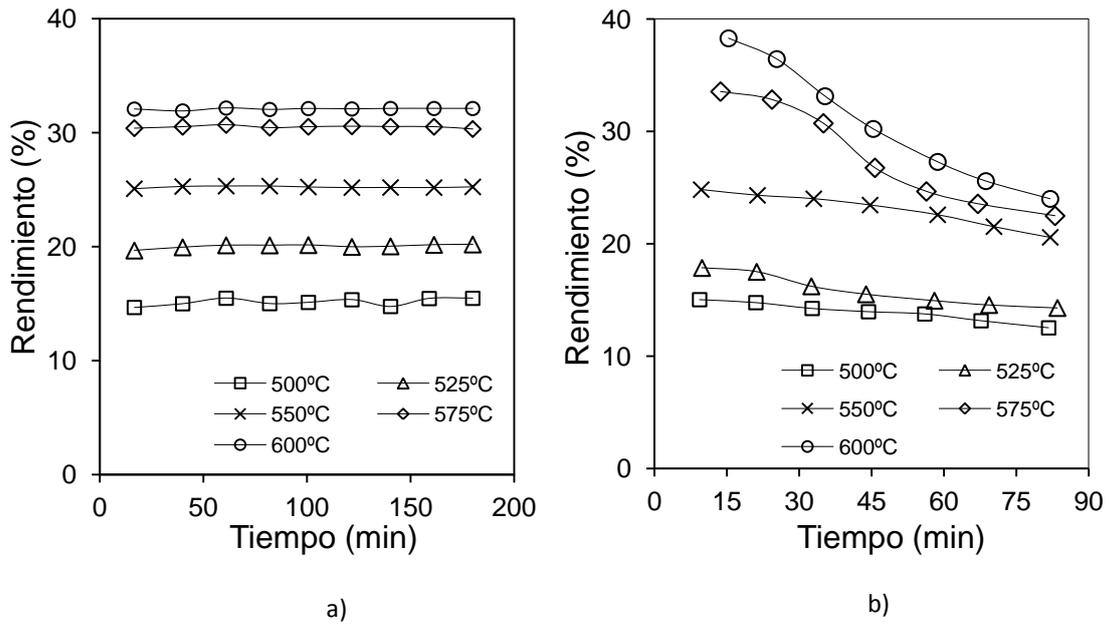


Figura B.3 Evolución temporal del rendimiento a propileno a partir de la deshidrogenación catalítica de propano en: a) RLFZ, b) Reactor de lecho fluidizado convencional [95]

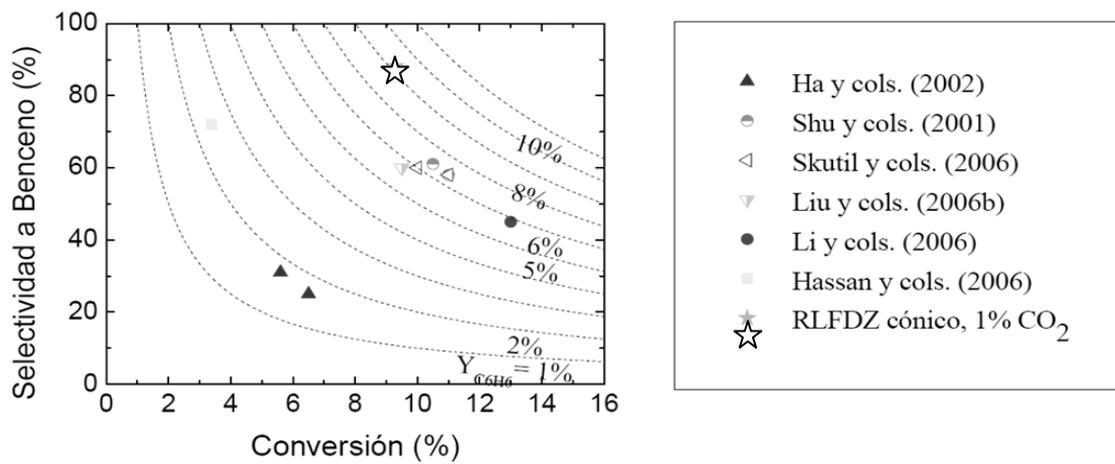


Figura B.4 Comparación entre el rendimiento a benceno obtenido en un RLFZ respecto a otros sistemas de reacción a partir de la aromatización de metano [109]

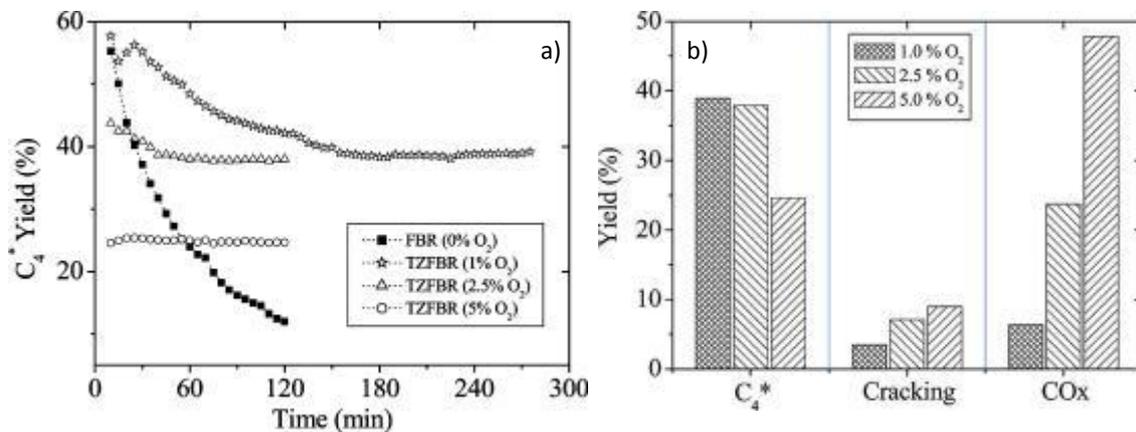


Figura B.5 a) Variación del rendimiento a C_4^* en función del % O_2 regenerativo. b) Variación de la distribución de productos de reacción con el % O_2 [15]

Asimismo, los estudios fluidodinámicos llevados a cabo recientemente [112] señalan que, en ciertas condiciones de fluidización, la mezcla completa entre partículas catalíticas coquizadas y regeneradas de las dos zonas del RLFZ puede llevarse a cabo en cuestión de segundos, lo que garantiza una actividad catalítica constante en el lecho. El grado de mezcla entre partículas se denomina, en dicho estudio, "Índice de Mezcla" y su evolución temporal (en un régimen de fluidización) varía en función del flujo de gas introducido al lecho, o velocidad reducida (u_r), según se muestra en la Figura B.6.

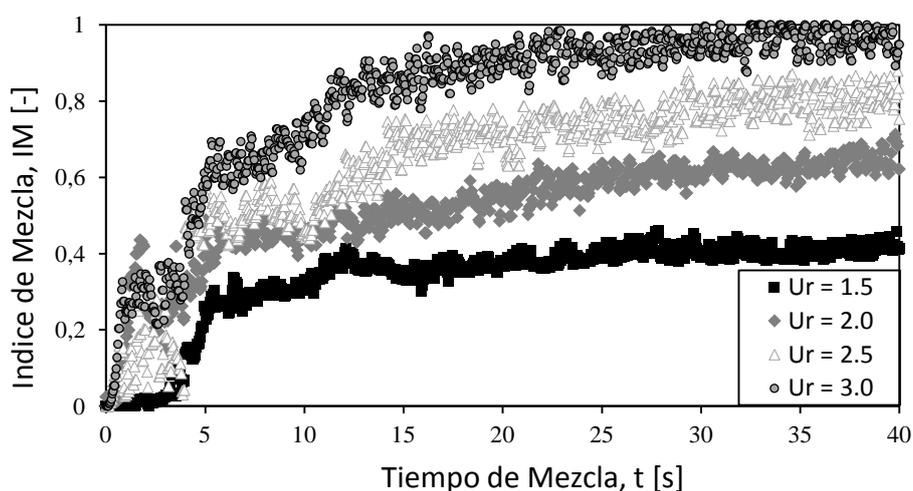


Figura B.6 Evolución del grado de mezcla de partículas catalíticas coquizadas y regeneradas para distintos regímenes de fluidización en RLFZ pseudo-2D con cambio de sección ($\alpha = 80^\circ$) [112]

Por último, se ha demostrado que la integración de membranas de paladio en RLFZ para reacciones de deshidrogenación de alcanos consigue desplazar el equilibrio de reacción hacia la formación de productos (al retirar H_2 del medio) manteniendo constante la actividad catalítica [104]. El esquema del reactor multifuncional, así como el rendimiento a propileno obtenido con y sin membrana de Pd se muestran en las Figuras B.7.a y B.7.b.

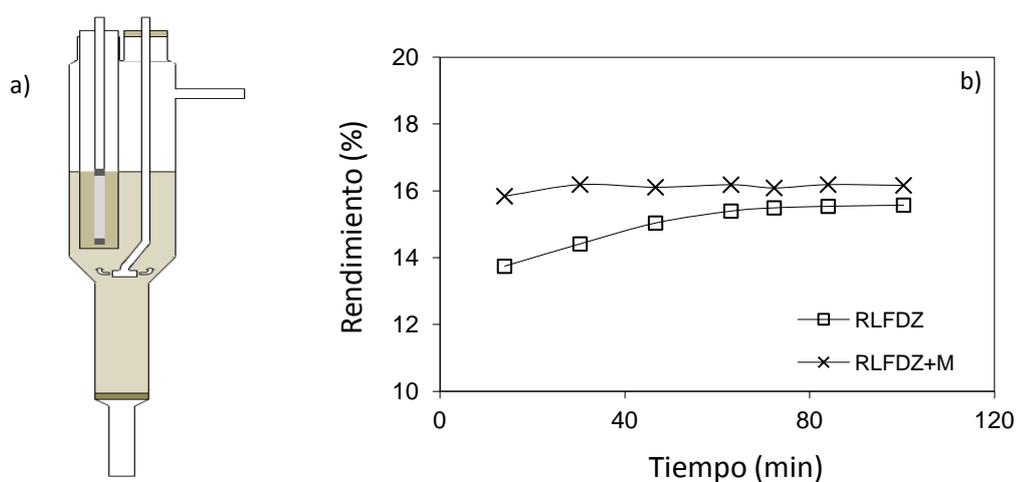


Figura B.7 a) Esquema del reactor multifuncional (RLFZ+Membrana), b) Rendimiento a propileno

ANEXO C

CARACTERIZACIÓN DE LAS PARTÍCULAS FLUIDIZADAS

En el estudio hidrodinámico llevado a cabo se han usado cuatro tipos de partículas fluidizables: γ -alúmina (Puralox 150-155), esferas de vidrio y sólidos fosforescentes comerciales, de dos tamaños diferentes, compuestos por aluminato de estroncio dopado con tierras raras (europio y disprosio) que le confieren propiedades fosforescentes, Eu-Dy/SrAl₂O₄. En este Anexo se van a mostrar las características fluidodinámicas de cada uno de los sólidos utilizados.

La elección de los cuatro tipos de sólidos responde a diversos motivos:

- a) Las partículas de γ -alúmina son de uso común en reactores de lecho fluidizado debido a su gran resistencia a la atrición y a su adecuación como soporte catalítico poroso. Estas partículas constituyen el sólido más utilizado como soporte de catalizador en las investigaciones llevadas a cabo con RLFZ en los laboratorios del CREG.
- b) Las esferas de vidrio son las partículas más utilizadas en la realización de estudios de fluidización en frío debido a su bajo coste, a su elevada esfericidad y a su baja rugosidad. Estas dos últimas características favorecen que no se aglomere el lecho y facilitan la fluidización. Constituyen la realidad más próxima a los modelos fluidodinámicos teóricos, que consideran las partículas de sólido como esferas perfectas de tamaño uniforme.
- c) Las partículas fosforescentes se eligieron porque en trabajos paralelos del grupo [112] se estudia la fluidodinámica de la fase densa en un RLFZ, siguiendo el movimiento y la mezcla axial de sólidos mediante estos trazadores ópticos. El objetivo es poder relacionar, a medio plazo, el comportamiento fluidodinámico del lecho con sus propiedades hidrodinámicas y para ello es necesario que ambas investigaciones se lleven a cabo utilizando las mismas partículas.

En primer lugar, se mostrará la distribución de diámetros de partícula con la que se ha trabajado en cada lecho junto con el diámetro de partícula promedio. Posteriormente, se analizarán las curvas de fluidización para determinar la velocidad de mínima fluidización (u_{mf}) propia de cada sólido. Seguidamente, se detallarán las medidas de densidad y porosidad de lecho y, por último, se ubicarán los distintos tipos de partículas en la clasificación de los sólidos de Geldart.

C.1 Distribución de tamaños de partícula (d_p)

Haciendo uso de distintos tamices con luces de malla comprendidas entre 1000 μm y 75 μm se ha llevado a cabo el estudio de la distribución de diámetros de partícula para los cuatro sólidos considerados. Las Figuras C.1.a-C.1.d muestran dicha distribución para partículas fosforescentes de pequeño y gran tamaño (denominadas Eu-Dy/SrAl₂O₄ “tipo A” y “tipo B”, respectivamente), γ -alúmina y esferas de vidrio, respectivamente.

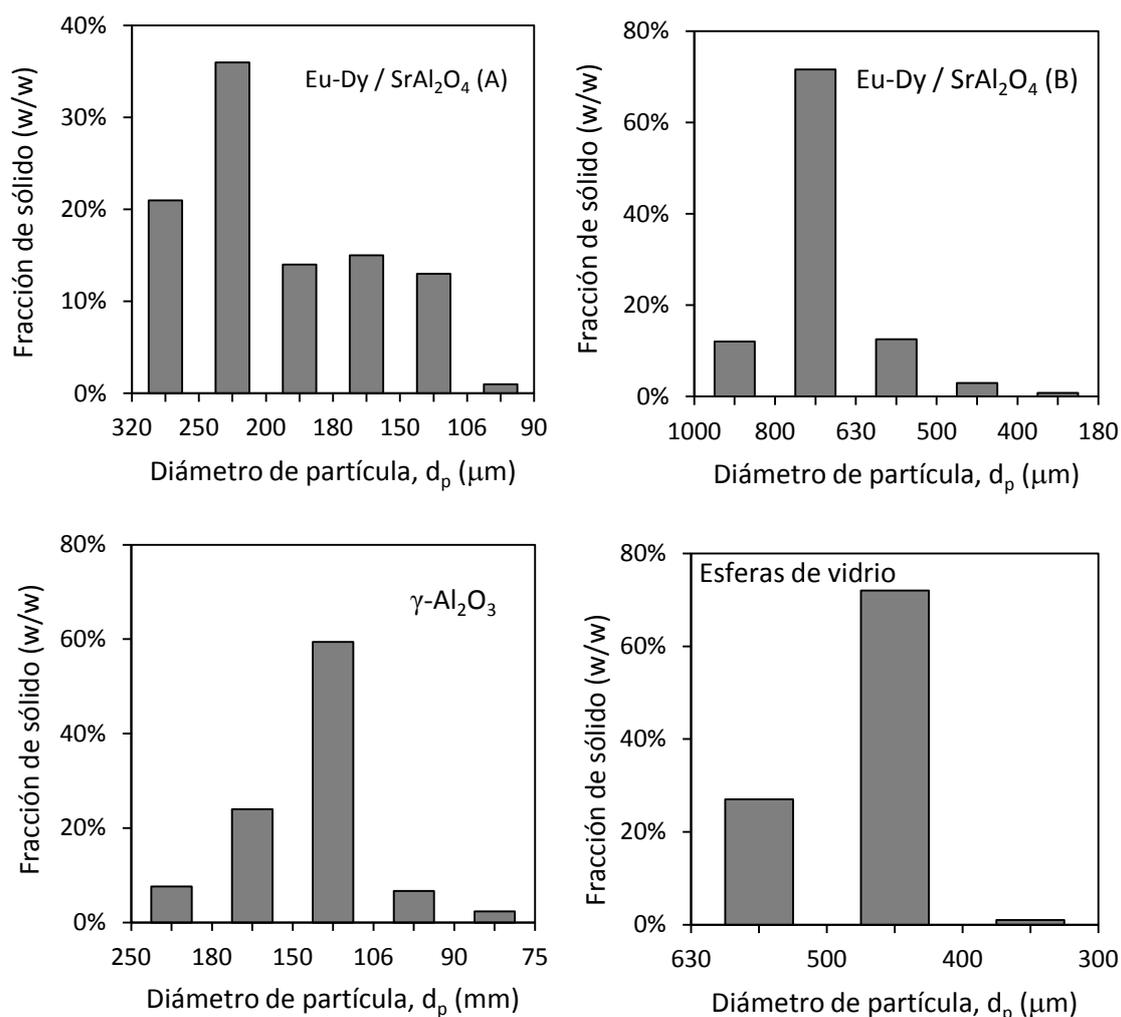


Figura C.1 Distribución de diámetros de partícula para los sólidos: a) Eu-Dy/SrAl₂O₄ de pequeño tamaño, b) Eu-Dy/SrAl₂O₄ de gran tamaño, c) γ -Al₂O₃, d) Esferas de vidrio

La tendencia general en todas las distribuciones de tamaño de partícula presentadas en la Figura C.1 es hacia una curva gaussiana, con fracciones de sólido bajas entre las correspondientes a tamaños extremos y altas para los d_p centrales del rango. La Tabla C.1 muestra el valor del diámetro de partícula promedio ($d_{p,prom}$) así como la desviación estándar para cada tipo de sólido. El diámetro de partícula promedio se ha calculado según la ecuación C.1, siendo ω_i la fracción de sólidos con un diámetro medio $d_{p,i}$.

$$d_{p,prom} = \frac{1}{\sum_{i=1}^N \omega_i / d_{p,i}} \quad (\text{C.1})$$

Tabla C.1 Media y desviación estándar para las distribuciones de diámetro de partícula de los 4 sólidos

	$d_{p,prom}$ (μm)
Esferas de vidrio	480 \pm 60
γ-Alumina	135 \pm 30
Partículas fosforescentes A	195 \pm 50
Partículas fosforescentes B	680 \pm 100

C.2 Determinación de u_{mf}

La velocidad de mínima fluidización es un dato esencial en la elaboración de un análisis fluidodinámico ya que determina el comportamiento del lecho fluidizado. A continuación se presentan las curvas de fluidización de cada una de las partículas utilizadas en este trabajo determinando, en cada caso, u_{mf} como la intersección entre la pendiente de pérdida de carga (ΔP) inicial debida al lecho y la pérdida de carga máxima teórica: $\Delta P_{max,teor} = W_{lecho}/S$, siendo W_{lecho} el peso del lecho y S la sección de paso de gas. Todas las medidas han sido realizadas en reactores cilíndricos de cuarzo, de diámetro interno: $d_{col} = 2.8$ cm. En la Figura C.2.a se muestra la curva de fluidización para partículas de γ -alúmina, en la C.2.b la obtenida para partículas fosforescentes A (tamaño inferior), y en las C.2.c y C.2.d las curvas para partículas fosforescentes B (tamaño superior) y esferas de vidrio, respectivamente.

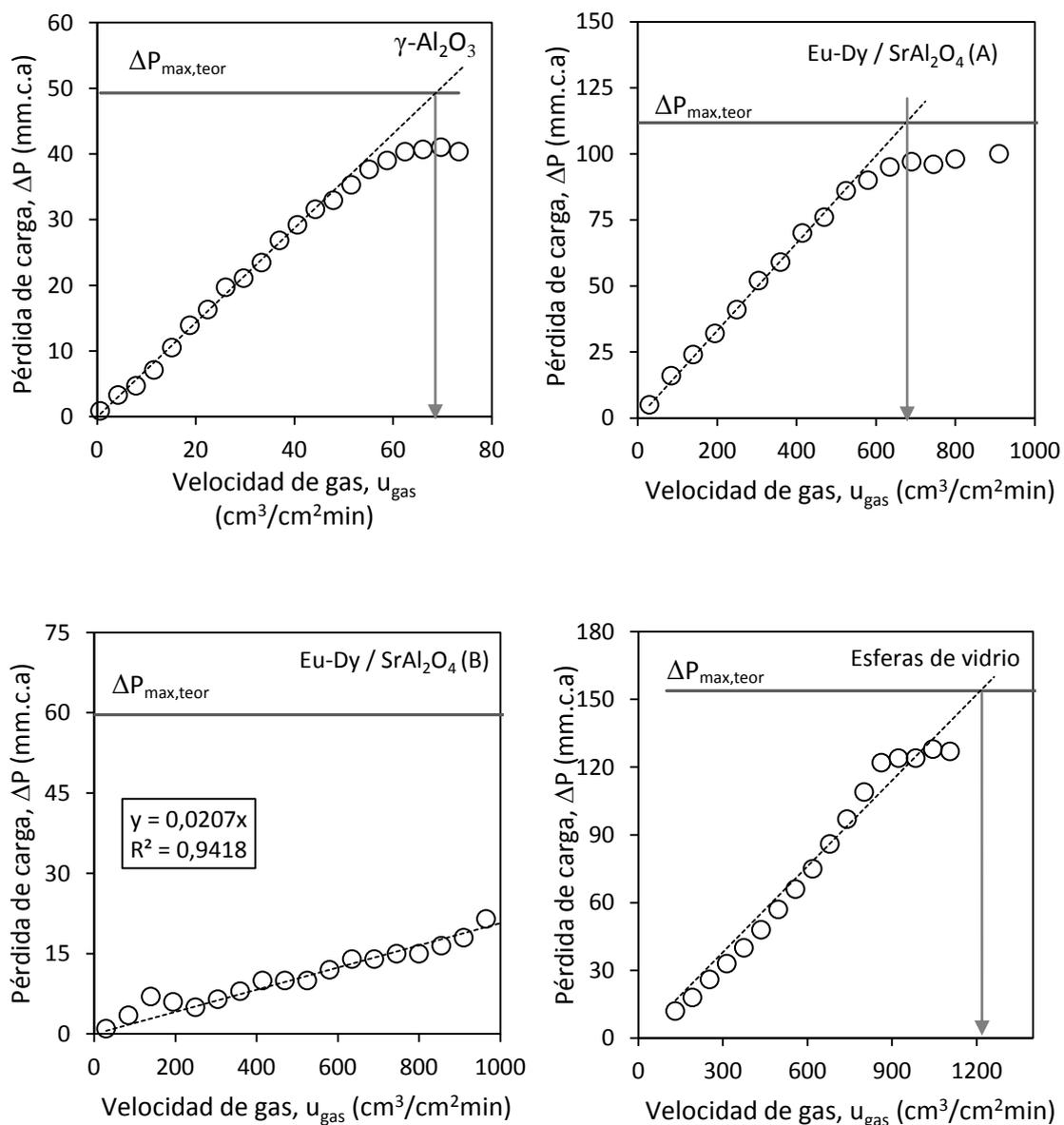


Figura C.2 Determinación de la velocidad de mínima fluidización para los cuatro sólidos considerados

En el caso de las partículas fosforescentes de gran tamaño ha sido imposible completar la curva de fluidización debido a que el caudal máximo de gas que alcanzan los medidores de flujo de los que se dispone es inferior al necesario para fluidizar dichas partículas en un reactor cilíndrico de 2.8 cm de diámetro interno. Por tanto, la velocidad de mínima fluidización (u_{mf}) se ha estimado, en este caso, a partir de la intersección de la recta de ajuste para los puntos medidos y la pérdida de carga máxima teórica. Los valores de u_{mf} obtenidos para cada sólido se muestran en la Tabla C.2.

Tabla C.2 Velocidad de mínima fluidización para cada tipo de partícula

	u_{mf} (cm _{STP} ³ /cm ² s)
Esferas de vidrio	20.5
γ-Alumina	1.2
Partículas fosforescentes A	10.1
Partículas fosforescentes B	48.5

C.3 Densidad y porosidad del lecho

Las densidades de los diferentes sólidos (ρ_s) vienen dadas por sus fabricantes (Tabla C.3). Partiendo de estos datos, es posible estimar la porosidad del lecho empaquetado (ϵ_{lecho}) sin más que determinar la densidad del lecho (ρ_{lecho}). Para hallar ρ_{lecho} se mide, en una probeta, el volumen ocupado por una determinada cantidad de partículas del sólido. La porosidad del lecho se relaciona con ρ_s y ρ_{lecho} según la ecuación C.2.

$$\epsilon_{lecho} = 1 - \frac{\rho_{lecho}}{\rho_s} \quad (C.2)$$

La Tabla C.3 muestra, además de la densidad de sólido suministrada por el fabricante, los valores de densidad y porosidad del lecho calculados a partir de las medidas experimentales y de la ecuación C.2, respectivamente.

Tabla C.3 Densidad de sólido, densidad y porosidad de lecho

	ρ_s (g/cm ³)	ρ_{lecho} (g/cm ³)	$\epsilon_{empaquet.}$ (-)
Esferas de vidrio	2.5	1.5	0.40
γ-Alumina	1.5	0.8	0.47
Partículas fosforescentes A	3.6	1.5	0.58
Partículas fosforescentes B	3.6	1.3	0.64

C.4 Clasificación de los sólidos de Geldart

Según Geldart [63], las partículas se pueden clasificar en cuatro grandes grupos (A, B, C y D) según sean sus características fluidodinámicas: diámetro de partícula promedio y densidad del sólido. A partir de los datos mostrados en las Tablas C.1 y C.3 es posible determinar a qué grupo de partículas pertenecen los cuatro sólidos considerados. La Figura C.3 muestra el

diagrama de Geldart con la ubicación aproximada de las partículas analizadas. Se observa como todas ellas pertenecen al grupo B. Esto, según Geldart, implica que las fuerzas interparticulares son despreciables (no se forman aglomerados) y que el fenómeno de burbujeo comienza con la fluidización, es decir, la velocidad de mínimo burbujeo coincide con la de mínima fluidización ($u_{mb}/u_{mf} = 1$). La velocidad ascensional de las burbujas es mayor que la velocidad del gas intersticial (a través de la emulsión) y el diámetro de las burbujas aumenta con la posición vertical en el reactor y con el exceso de gas sobre el de mínima fluidización. Para este tipo de partículas, la expansión del lecho es pequeña y uniforme.

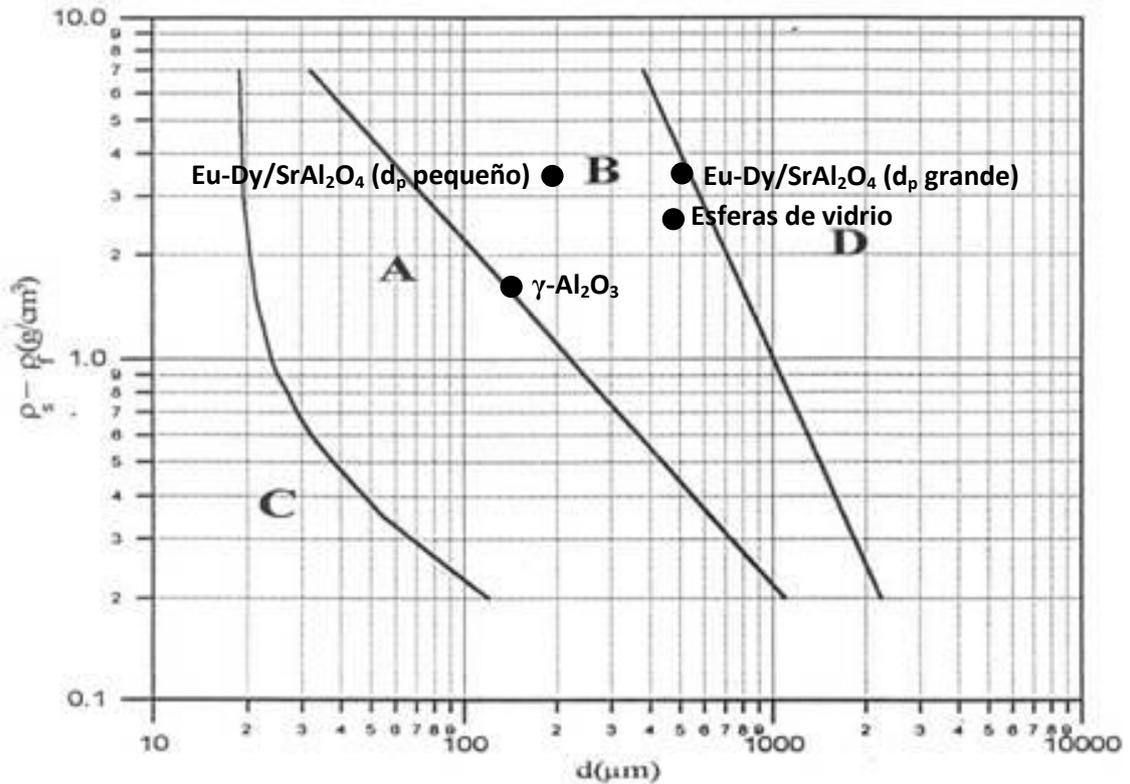


Figura C.3 Clasificación de los sólidos de Geldart

ANEXO D

ANÁLISIS DIGITAL DE IMÁGENES

En este anexo se van a describir los códigos de programación (Matlab®) desarrollados en este proyecto y utilizados para llevar a cabo el procesado de los videos de burbujeo experimental y simulado con el fin de obtener perfiles axiales de velocidad y tamaño de burbuja. Se detallarán las principales consideraciones acerca del tratamiento de imágenes y se mostrarán los gráficos originales de propiedades de burbuja a partir de los cuáles se han obtenido los perfiles promediados de $d_b(z)$, $u_b(z)$ y $u_b(d_b)$ presentados en la Memoria del proyecto.

En primer lugar, se presenta el algoritmo de detección y clasificación de burbujas a partir de videos de fluidización experimentales.

D.1 Análisis digital de burbujeo en grabaciones experimentales

```
function [Resultados,Mub,Mdb]=burbexp(nombrearchivo)
```

```
% [Resultados,Mub,Mdb]=burbexp(nombrearchivo) Esta funcion describe
la hidrodinámica de las burbujas en el lecho obteniendo perfiles de
velocidad de burbuja en función de su tamaño, además de los perfiles
axiales de diámetro y velocidad de burbuja. Resultados es una matriz
nx3 que contiene por columnas velocidad de burbuja (ub), diámetro de
burbuja (db) y coordenada 'y' del centroide de burbuja (z) y tantas
filas (n) como objetos se detecten en los pares de imágenes
consideradas. Mub almacena los valores promedio de velocidad de
burbuja en función de la posición vertical en el lecho y Mdb contiene
los valores promedio de diámetro de burbuja equivalente para cada
rodaja axial de lecho (dz = 1 cm).
```

```
% La función analiza una grabación experimental codificada en función
de la geometría (ángulo de cambio de sección, a) y del porcentaje de
apertura de controlador de flujo másico por los distribuidores de gas
inferior (F) y superior (f) que, externamente, se relacionan con las
velocidades relativas de gas utilizadas (ur). Ejemplo:
'a00_F40_f30.avi'.
```

```
profile on % Para sumarizar el coste computacional de cada orden.
% Ruta de acceso a la carpeta donde se almacenarán los resultados:
fpat='C:\Users\Ignacio\Desktop\Archivos TFM\Velocidad de burbuja\';
close all, % Cierra todas las figuras que pudieran estar abiertas
maxburb=40; % Establece el n° máximo de objetos (burbujas) por imagen
numpics=1248; % N° de fotogramas a analizar en el video
```

```
% Hipermatriz M para almacenar las propiedades de los objetos de
tectados en la imagen (burbujas). Contiene los datos: [Centroide.x
Centroide.y Areaburbuja] para dos fotogramas consecutivos.
Posteriormente, la velocidad de burbuja sera determinada comparando
parejas de imágenes.
```

```
M=zeros(maxburb,3,2);
```

```

% Inicialmente, los vectores que almacenarán velocidad de burbuja,
diámetro equivalente de burbuja y altura de burbuja en el lecho están
vacíos.
Bubbleub=[];
Bubbledb=[];
Bubblez=[];

% Inicialización de los vectores que almacenan la velocidad y el
diámetro de burbuja promedios. Tienen 24 celdas para recoger un valor
por cada centímetro de lecho analizado (el freeboard nunca alcanza
cotas superiores a 24 cm en el lecho: no hay elutriación de
partículas).
Mdb=zeros(1,24);
Mub=zeros(1,24);

% Se genera y añade al directorio de trabajo una ruta a la carpeta
contenedora de los vídeos de burbujeo experimentales.
addpath(genpath('J:\RECOPIACION\Videos'));

% obj es un objeto 'multimedia' que almacena todos los fotogramas del
video de burbujeo .avi considerado. 'nombrearchivo' se introduce por
teclado con el código de experimento. Por ejemplo: 'a00_F40_f30.avi'.
obj=mmreader(nombrearchivo);

% Coordenadas de recorte de imagen (se eliminan los exteriores del
reactor). Aunque, en principio, las coordenadas deberían mantenerse
constantes si no se modifican ni la posición de la cámara ni la del
lecho, estos valores deben ser comprobados para cada video.
x=[32 32 0 0]; y=[730 468 468 730];

% Generación de una ROI (region of interest) para convertir en negros
los pixeles las areas externas al reactor que quedan bajo la zona del
cambio de sección.
x_1=[123 91 91 123]; y_1=[468 468 730 730];
x_2=[0 123 123 0]; y_2=[730 730 742 742];

% Bucle de detección y clasificación de las propiedades de burbuja. Se
analizan tantos pares de imágenes como la mitad de los fotogramas
totales que se desee analizar.
for a=1:numpics/2

% G lee el fotograma número "a" del objeto multimedia y convierte la
imagen coloreada (RGB) en escala de grises. Además, la recorta según
las coordenadas indicadas. Estas coordenadas deben ser revisadas para
cada video de burbujeo. G2 hace lo mismo para el fotograma "a+1".
G=imcrop(rgb2gray(read(obj,2*a-1)), [32 1 121 702]);
G2=imcrop(rgb2gray(read(obj,2*a)), [32 1 121 702]);

% bw y bw2 transforman las imágenes G y G2 en blanco y negro aplicando
un valor umbral a los fotogramas de las imágenes en escala de grises
para discernir entre la fase densa y la fase burbuja. El valor umbral
elegido (threshold) es CLAVE en el correcto análisis de las burbujas y
debe ser cuidadosamente determinado por observación visual para cada
video de burbujeo.
thr=0.2893;
bw=im2bw(G,thr);
bw2=im2bw(G2,thr);

```

% ROI: "Region of interest". Con esta herramienta se convierten en píxeles negros las regiones externas al reactor bajo la zona de cambio de sección. Por tanto, no se buscarán objetos (burbujas) en dichas regiones. Las coordenadas de las ROI vienen dadas por las variables `x_1`, `x_2`, `y_1` e `y_2` definidas anteriormente.

```

bwaux=roipoly(bw,x,y);
bwaux_1=roipoly(bwaux,x_1,y_1);
bwaux_2=roipoly(bwaux,x_2,y_2);
bwaux=bwaux+bwaux_1+bwaux_2;

bwaux2=roipoly(bw2,x,y);
bwaux2_1=roipoly(bwaux2,x_1,y_1);
bwaux2_2=roipoly(bwaux2,x_2,y_2);
bwaux2=bwaux2+bwaux2_1+bwaux2_2;

bwaux=double(bwaux); bwaux2=double(bwaux2);
bw=bw.*(1-bwaux);
bw2=bw2.*(1-bwaux2);

```

% Se determinan los objetos ("connected components") en ambos fotogramas a partir de sus imágenes binarias (en blanco y negro). La estructura `cc` contiene 4 campos relacionados con los objetos detectados.

```
cc=bwconncomp(bw);
```

% `npix` almacena el número de píxeles de cada objeto. El mayor de los objetos (`max(npix)`), que se corresponde con el freeboard, es eliminado de la imagen binaria. 1 = blanco; 0 = negro.

```

npix=cellfun(@numel,cc.PixelIdxList);
[~,idx]=max(npix);
bw(cc.PixelIdxList{idx})=0;

```

% Se realiza la misma operación para la segunda imagen considerada.

```

cc2=bwconncomp(bw2);
npix=cellfun(@numel,cc2.PixelIdxList);
[~,idx2]=max(npix);
bw2(cc2.PixelIdxList{idx2})=0;

```

% Se enmascara la caída de partículas en el interior de las burbujas ("particle raining") rellenando con píxeles blancos aquellas burbujas en las que se detectasen partículas (píxeles negros) en su interior.

```

bw_filled=imfill(bw);
bw2_filled=imfill(bw2);

```

% Los objetos que aparezcan con un área inferior a 5 píxeles no se considerarán burbujas sino defectos de iluminación del lecho o burbujas espúreas ya que, generalmente, no tienen continuidad entre fotogramas (se forman y desaparecen entre imágenes consecutivas).

```

bw_filtered=bwareaopen(bw_filled,5);
bw2_filtered=bwareaopen(bw2_filled,5);

```

% Si las líneas de contorno del reactor no han sido previamente eliminadas con los filtros aplicados, la herramienta `imopen` elimina los objetos lineales que puedan permanecer en la imagen binaria.

```

eraser=strel('disk',2);
bw_filtered=imopen(bw_filtered,eraser);
bw2_filtered=imopen(bw2_filtered,eraser);

```

```

% Una vez filtrados todos los objetos susceptibles de no
corresponderse con burbujas, se vuelve a realizar la detección de
objetos en la imagen.
    cc=bwconncomp(bw_filtered,4);
    nburb=cc.NumObjects;

% Las propiedades básicas de las burbujas (coordenadas x,y del
centroide y área) son almacenadas, para cada fotograma en la
estructura burbdata.
    burbdata=regionprops(cc,'Basic');

% N_1: matriz que ordena los datos extraídos de burbdata.
N_1=[burbdata(:).Centroid burbdata(:).Area];
% Reorganización de la matriz para tener, por columnas las
coordenadas x_centroide, y_centroide y el área de cada objeto
detectado.
    N=N_1([1:2:numel(N_1)*2/3-1 2:2:numel(N_1)*2/3]);
    N=reshape(N,numel(N_1)/3,2);
    N_2=N_1(numel(N_1)*2/3+1:numel(N_1));
    N=[N N_2'];

% El número de filas de la matriz debe ser constante para todos los
fotogramas a fin poder comparar pares de fotogramas consecutivos para
determinar la velocidad de las burbujas. Por ello se añaden ceros para
rellenar las matrices hasta un tamaño indicado por la variable maxburb
(nº máximo de burbujas "permitidas" en un fotograma.
    N1_1=zeros(maxburb-nburb,3);
    N2_1=[N;N1_1];
    M(:, :, 1)=sortrows(N2_1,2); % Reordena la matriz por valores
crecientes en la coordenada y_centroide.
    Mat1=M(:, :, 1); % Matriz de propiedades final para el 1er fotograma

% Se realizan las mismas operaciones con el 2o fotograma.
    cc2=bwconncomp(bw2_filtered,4);
    nburb2=cc2.NumObjects;
    burbdata2=regionprops(cc2,'Basic');
    N_1=[burbdata2(:).Centroid burbdata2(:).Area];
    N=N_1([1:2:numel(N_1)*2/3-1 2:2:numel(N_1)*2/3]);
    N=reshape(N,numel(N_1)/3,2);
    N_2=N_1(numel(N_1)*2/3+1:numel(N_1));
    N=[N N_2'];
    N1_12=zeros(maxburb-nburb2,3);
    N2_12=[N;N1_12];
    M(:, :, 2)=sortrows(N2_12,2);
    Mat2=M(:, :, 2);

% Algoritmo del vecino más próximo. Este bucle determina qué fila
(burbuja) del 2º fotograma se corresponde con qué fila de la 1ª imagen
    for n=1:numel(M(:,1,1))
        for t=1:numel(M(:,1,1))

% Comparación de las distancias euclídeas entre centroides de burbuja
de diferentes fotogramas.
            dist(t)=sqrt((M(n,1,2)-M(t,1,1)).^2+(M(n,2,2)-M(t,2,1)).^2)
        end

        [d(n) idx(n)]=min(dist); % Elección de la mínima distancia

% No se considerarán los desplazamientos de burbuja superiores a un
cierto valor umbral (distancia euclídea en píxeles) para dt=0.04s.

```

```

        if min(dist)>6
            d(n)=NaN; idx(n)=NaN;
        end
    end

% "Matriz" almacena x_centroide, y_centroide y area de cada objeto en
% cada una de las dos imágenes (6 columnas), así como el desplazamiento
% del centroide de cada burbuja (col. 7) y un índice (col. 8) que indica
% cuál de las burbujas del segundo fotograma se corresponde con la del
% primero.
    Matriz=[Mat1 Mat2 d' idx'];
    Resultado=Matriz;
    Resultado(isnan(Resultado(:,8)),5:8)=1; % Se descartan las
% burbujas sin correspondencia.
    Resultado(:,1:3)=Resultado(Resultado(:,8),1:3); % Reorganización
% de filas.
    Resultado(find(Resultado(:,8))==1,:)=[]; % Se eliminan las filas
% que almacenan burbujas sin correspondencia.

% Cálculo de velocidad de burbuja, diámetro de burbuja y posición
% vertical del centroide para burbujas correspondientes entre sí en
% fotogramas consecutivos. Se convierten medidas de píxels a centímetros
    ub=(Resultado(:,5)-Resultado(:,2)).*(23.4/702)*25; %23.4cm->702px
% y 25fps
    dB=sqrt((Resultado(:,3)+Resultado(:,6))./2*pi*23.4^2/702^2);
    z=23.4-(Resultado(:,2)+Resultado(:,5))./2*23.4/702;

% "resul" almacena todos los resultados correspondientes a burbujas en
% los fotogramas 2*a-1 e 2*a. "res" adiciona ceros para luego concatenar
% vectores del mismo tamaño en cada iteración.
    resul=[ub,dB,z]; %ub (cm/s) // dB (cm) // z (cm)
    resaux=zeros(maxburb- numel(ub),3);
    res=[resul;resaux];

% Vectores auxiliares para almacenar ub, db y z.
    Bubbleubaux=res(:,1);
    Bubbledbaux=res(:,2);
    Bubblezaux=res(:,3);

% Los datos de burbuja para los distintos fotogramas se concatenan
% sobre los vectores predefinidos Bubbleub, Bubbledb y Bubblez.
    Bubbleub=cat(1,Bubbleub,Bubbleubaux);
    Bubbledb=cat(1,Bubbledb,Bubbledbaux);
    Bubblez=cat(1,Bubblez,Bubblezaux);
end

%Fin del BUCLE

% Resultados almacena una matriz m x 3, siendo m = maxburb x numpics.
% Las filas que contengan ceros se eliminan.
Resultados=[Bubbleub Bubbledb Bubblez];
Resultados(find(Resultados(:,3))==0,:)=[];

% Cálculo de valores promedio para db y ub en función de la rodaja de
% lecho considerada (db(z) y ub(z)). Las rodajas consideradas son de 1
% cm de altura.
for i=1:24
    Resultadosaux=Resultados;
    Resultadosaux(find(Resultadosaux(:,3)<(i-1)),:)=[];
    Resultadosaux(find(Resultadosaux(:,3)>i),:)=[];

```

```

ubpositivo=Resultadosaux(:,1);
ubpositivo(ubpositivo<0)=[];
Mdb(i)=sum(Resultadosaux(:,2).^2)/sum(Resultadosaux(:,2));
Mub(i)=sum(ubpositivo)/numel(ubpositivo);
end

% Cálculo de valores promedio para ub en función del tamaño de burbuja
(ub(db)). Los rangos de db considerados son cada db = 0.2 cm.
for j=0.4:0.2:2
    Resultadosaux2=Resultados;
    Resultadosaux2(find(Resultadosaux2(:,2)<(j-0.1)),:)=[];
    Resultadosaux2(find(Resultadosaux2(:,2)>(j+0.1)),:)=[];
    k=uint8(j/0.2-1);
    ubpositivo2=Resultadosaux2(:,1);
    ubpositivo2(ubpositivo2<=0)=[];
    Mub2(k)=sum(ubpositivo2)/numel(ubpositivo2);
end

% Matdb almacena los valores promedio de db(z) en función de z. Matub
hace lo mismo con ub(z).
Matdb=[Mdb' (1:24)'];
Matub=[Mub' (1:24)'];

% Representación gráfica de ub frente a db^0.5.
figure,
scatter(Bubbledb.^0.5,Bubbleub,5,'filled','blue');
hold on, % Escribe en la misma figura.
scatter(0.4:0.2:2,Mub2,50,'filled','red');
axis([0.3 2 0 80])
legend('u_r,_a_b_a_j_o = u_r,_a_r_r_i_b_a = 2.0'); % En caso de ur=2
xlabel('Raíz cuadrada del diámetro de burbuja (cm^0.^5)');
ylabel('Velocidad de burbuja (cm/s)');
hold off
saveas(gcf,[fpat,filesep,'ubdb_ur2a0'],'fig'); % Guarda la figura con
el nombre indicado: ubdb => ub(db), ur2a0 => ur=2 (arriba y abajo),
cambio de sección, alpha = 0°.

% Representación gráfica de ub frente a z.
figure,
scatter(Bubblez,Bubbleub,5,'filled','blue');
hold on,
scatter(Matub(:,2),Matub(:,1),50,'filled','red');
axis([0 20 0 80])
legend('u_r,_a_b_a_j_o = u_r,_a_r_r_i_b_a = 2.0');
xlabel('Posición vertical (cm)');
ylabel('Velocidad de burbuja (cm/s)');
hold off
saveas(gcf,[fpat,filesep,'ubz_ur2a0'],'fig');

% Representación gráfica de db frente a z.
figure,
scatter(Bubblez,Bubbledb,5,'filled','blue');
legend('u_r,_a_b_a_j_o = u_r,_a_r_r_i_b_a = 2.0');
axis([0 20 0 4]);
hold on,
scatter(Matdb(:,2),Matdb(:,1),50,'filled','red');
xlabel('Posición vertical (cm)');
ylabel('Diámetro de burbuja (cm)');
hold off
saveas(gcf,[fpat,filesep,'dbz_ur2a0'],'fig');

```

```
profile off % Fin de la computación.  
profile viewer % Se reportan los tiempos de computación para cada  
orden ejecutada.  
end
```

Como se puede comprobar, el algoritmo representa en último término resultados experimentales de tamaño de burbuja en función de la posición en el reactor ($d_b(z)$) y de velocidad de burbuja en función de la posición y el tamaño de la misma ($u_b(d_b)$ y $u_b(z)$). El código se puede dividir en tres subalgoritmos diferenciados: a) tratamiento de imágenes, b) recopilación de datos de burbujeo a partir de imágenes binarias y c) reorganización y tratamiento de datos mediante cálculo matricial. De las tres partes, la que determina el resultado final del análisis es la primera. Concretamente, el punto clave del algoritmo es la operación de “thresholding”, que implica elección de un valor umbral (“thr”) para discriminar las fases gas y sólido particulado a partir del grado de intensidad de luz medido en los fotogramas de burbujeo. El valor umbral determina la precisión en la medición de burbujas al pasar de imagen en escala de grises a imagen binaria. El resto de operaciones implementadas en el algoritmo conllevan, básicamente, la reorganización y tratamiento de datos de burbujeo obtenidos a partir de dichas imágenes binarias por lo que no son tan relevantes en el resultado final.

Si bien es clave establecer un valor umbral de iluminación para discernir entre burbujas y fase densa en el análisis de imágenes digitales, también lo es el lograr una iluminación homogénea en todas las regiones del lecho. Para tal fin, el RLFZ-CS se halla inmerso en una cámara oscura evitando reflejos de luz en la pared frontal del lecho debidos a la iluminación de la sala. Además, tres tubos fluorescentes estratégicamente situados en la parte trasera del lecho producen una iluminación uniforme hacia la lente de la videocámara, de tal forma que la porosidad del lecho es proporcional a la luminosidad que alcanza el objetivo. La luz atraviesa las zonas del lecho libres de sólido particulado (burbujas) mientras que no atraviesa las zonas concentradas en sólido (emulsión). La Figura D.1 muestra un fotograma de burbujeo con una iluminación trasera inhomogénea y suciedad en la pared delantera a la que se aplican tres valores umbrales de iluminación para detectar burbujas de gas en el lecho. La inhomogeneidad en la iluminación y la suciedad frontal dificultan la detección de las mismas. Se establece un sesgo en el número y tamaño de burbujas detectadas en las zonas con iluminación deficiente, lo cual falsea el resultado del análisis. Si la iluminación del lecho es perfectamente homogénea (Figura D.2), es posible determinar un valor umbral de luminosidad tal que la detección del contorno de las burbujas sea coherente con las observaciones en cualquier punto del lecho.

En la Figura D.2, el valor umbral que conlleva una óptima identificación del tamaño de las burbujas se encuentra entre 0.3 (ligera subestimación) y 0.25 (ligera sobreestimación) y se debe ajustar para cada vídeo a partir de la observación de imágenes binarias para distintos fotogramas de burbujeo. En el presente estudio, el valor *thr* se ha llegado a ajustar hasta con cuatro cifras significativas (ver algoritmo *burbexp*) a fin de obtener una correcta binarización en las imágenes.

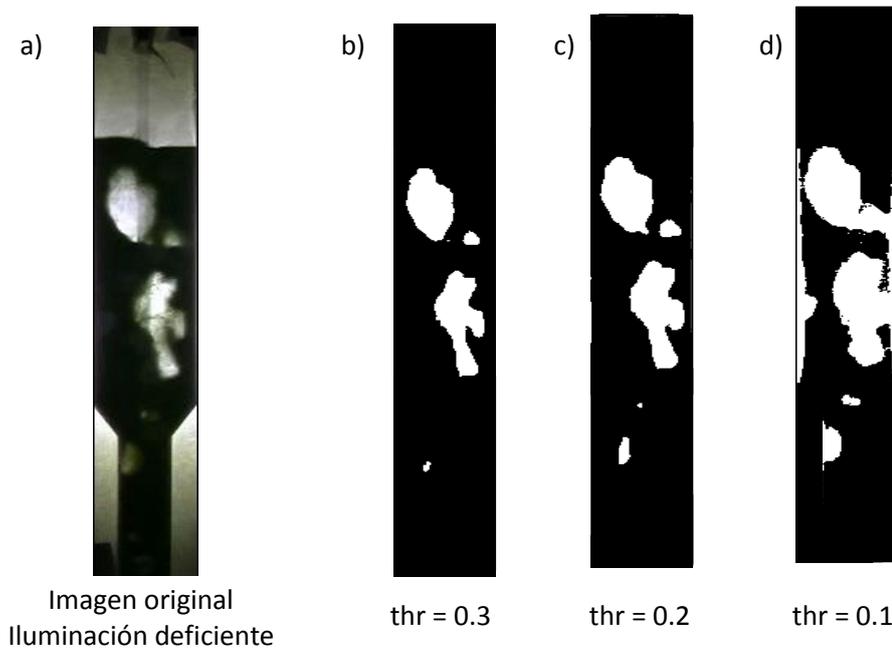


Figura D.1 Detección de burbujas mediante transformación de fotogramas de burbujeo a imágenes binarias. a) Fotograma original, b) Umbral = 0.3 → Subestimación de las burbujas de la zona inferior, c) Umbral = 0.2 → Ligera sobreestimación de las burbujas de la zona superior y subestimación de las burbujas de la zona inferior, d) Umbral = 0.1 → Sobreestimación de burbujas en la zona superior y detección de suciedad frontal

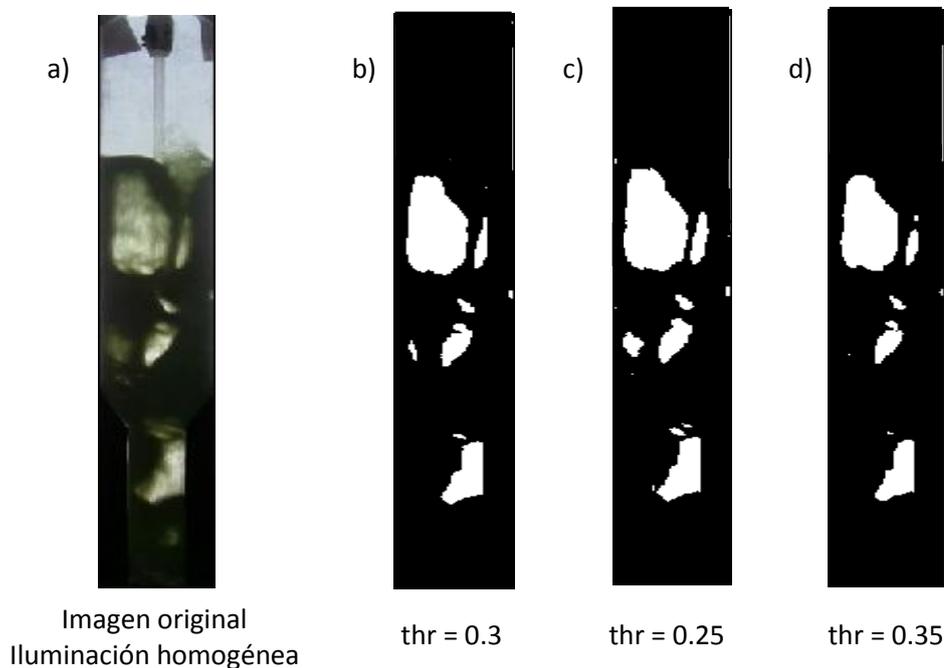


Figura D.2 Detección de burbujas mediante transformación de fotogramas de burbujeo a imágenes binarias. a) Fotograma original, b) Umbral = 0.3, c) Umbral = 0.25, d) Umbral = 0.35

A continuación, se presenta el algoritmo de detección y clasificación de burbujas a partir de “fotogramas” transitorios resultantes de las simulaciones fluidodinámicas.

D.2 Análisis digital de burbujeo en simulaciones fluidodinámicas

```
function [Resultados,Mub,Mdb]=burbsim(nombrearchivo)

% [Resultados,Mub,Mdb]=burbsim(nombrearchivo). Esta function describe
la hidrodinámica de las burbujas en el lecho obteniendo perfiles de
velocidad de burbuja en función de su tamaño, además de los perfiles
axiales de diámetro y velocidad de burbuja para simulaciones
fluidodinámicas. Resultados es una matriz nx3 que contiene por
columnas velocidad de burbuja (ub), diámetro de burbuja (db) y
coordenada 'y' del centroide de burbuja (z) y tantas filas (n) como
objetos se detecten en los pares de imágenes consideradas. Mub
almacena los valores promedio de velocidad de burbuja en función de la
posición vertical en el lecho y Mdb contiene los valores promedio de
diámetro de burbuja equivalente para cada rodaja axial de lecho (dz =
1 cm).

% La función analiza una simulación fluidodinámica codificada en
función de la geometría (ángulo de cambio de sección, G) y la
velocidad relativa en las zonas inferior y superior del lecho,
respectivamente (ur). Por ejemplo: 'G60ur28ur28.wmv' significa un
ángulo de 60° de inclinación con respecto a la horizontal y una
velocidad relativa constante, 2.8, en ambas zonas del lecho. Si se
omite, la posición del distribuidor secundario es el comienzo del
ensanchamiento: z = 8 cm. En caso contrario, si z = 10 cm el vídeo se
codificaría como: 'G60ur28ur28z10.wmv'.

profile on % Para sumarizar el coste computacional de cada orden.
% Ruta de acceso a la carpeta donde se almacenarán los resultados:
fpat='C:\Users\Ignacio\Desktop\Archivos TFM\Velocidad de burbuja\';
close all, % Cierra todas las figuras que pudieran estar abiertas
maxburb=40; % Establece el n° máximo de objetos (burbujas) por imagen
numpics=1998; % N° de fotogramas a analizar en la sim. transitoria

% Hipermatriz M para almacenar las propiedades de los objetos de
tectados en la imagen (burbujas). Contiene los datos: [Centroide.x
Centroide.y Areaburbuja] para dos fotogramas consecutivos.
Posteriormente, la velocidad de burbuja sera determinada comparando
parejas de imágenes.
M=zeros(maxburb,3,2);

% Inicialmente, los vectores que almacenarán velocidad de burbuja,
diámetro equivalente de burbuja y altura de burbuja en el lecho están
vacíos.
Bubbleub=[];
Bubbledb=[];
Bubblez=[];

% Inicialización de los vectores que almacenan la velocidad y el
diámetro de burbuja promedios. Tienen 24 celdas para recoger un valor
por cada centímetro de lecho analizado (el freeboard nunca alcanza
cotas superiores a 24 cm en el lecho: no hay elutriación de
partículas).
Mdb=zeros(1,24);
Mub=zeros(1,24);

% Se genera y añade al directorio de trabajo una ruta a la carpeta
contenedora de los vídeos de burbujeo experimentales.
addpath(genpath('C:\Users\Ignacio\Documents\TESIS\Geometrias_Ansys'));
```

```

% obj es un objeto 'multimedia' que almacena todos los fotogramas del
video de burbujeo .wmv considerado. 'nombrearchivo' se introduce por
teclado con el código de experimento. Por ejemplo: 'G00ur2ur2.wmv'.
obj=mmreader(nombrearchivo);

% Bucle de detección y clasificación de las propiedades de burbuja. Se
analizan tantos pares de imágenes como la mitad de los fotogramas
totales que se desee analizar. El fotograma inicial a analizar es el
151. Esto es así ya que en la simulación se parte de un lecho
totalmente empaquetado y los primeros fotogramas de mezcla muestran
burbujas anormalmente grandes, representando un estado transitorio
inicial con respecto al régimen pseudo-estacionario de burbujeo que se
alcanza una vez la primera burbuja alcanza el freeboard. Considerando
250 fps, el fotograma 151 se corresponde con un tiempo de mezcla t =
0.6 s.
for a=151:numpics/2

% G lee el fotograma número "a" del objeto multimedia y convierte la
imagen coloreada (RGB) en escala de grises. Además, la recorta según
las coordenadas indicadas. Estas coordenadas deben ser revisadas para
cada video de burbujeo. G2 hace lo mismo para el fotograma "a+1". (1
cm = 14.5 píxels). La resolución difiere respecto a los experimentos.
G=imcrop(rgb2gray(read(obj,2*a-1)),[292 23 350-292 458-23]);
G2=imcrop(rgb2gray(read(obj,2*a)),[292 23 350-292 458-23]);

% bw y bw2 transforman las imágenes G y G2 en blanco y negro aplicando
un valor umbral a los fotogramas de las imágenes en escala de grises
para discernir entre la fase densa y la fase burbuja. El valor umbral
elegido (threshold) es CLAVE en el correcto análisis de las burbujas y
debe ser cuidadosamente determinado por observación visual para cada
video de burbujeo.
thr=0.60;
bw=im2bw(G,thr);
bw2=im2bw(G2,thr);

% No necesito establecer ROI. Los contornos del reactor son negros por
defecto en los fotogramas de simulación.

% Se determinan los objetos ("connected components") en ambos
fotogramas a partir de sus imágenes binarias (en blanco y negro). La
estructura cc contiene 4 campos relacionados con los objetos
detectados.
cc=bwconncomp(bw);

% npix almacena el número de píxels de cada objeto. El mayor de los
objetos (max(npix)), que se corresponde con el freeboard, es eliminado
de la imagen binaria. 1 = blanco; 0 = negro.
npix=cellfun(@numel,cc.PixelIdxList);
[~,idx]=max(npix);
bw(cc.PixelIdxList{idx})=0;

% Se realiza la misma operación para la segunda imagen considerada.
cc2=bwconncomp(bw2);
npix=cellfun(@numel,cc2.PixelIdxList);
[~,idx2]=max(npix);
bw2(cc2.PixelIdxList{idx2})=0;

% No hace falta filtrar las imágenes. En las simulaciones no hay
problemas de "particle raining" ni reflejos de la pared frontal ni
iluminación deficiente del lecho. Se vuelve a realizar la detección de
objetos una vez eliminado el freeboard en ambas imágenes.

```

```

cc=bwconncomp (bw, 4);
nburb=cc.NumObjects;

% Las propiedades básicas de las burbujas (coordenadas x,y del
centroide y área) son almacenadas, para cada fotograma en la
estructura burbdata.
burbdata=regionprops (cc, 'Basic');

% N_1: matriz que ordena los datos extraídos de burbdata.
N_1=[burbdata(:).Centroid burbdata(:).Area];
% Reorganización de la matriz para tener, por columnas las
coordenadas x_centroide, y_centroide y el área de cada objeto
detectado.
N=N_1([1:2: numel(N_1)*2/3-1 2:2: numel(N_1)*2/3]);
N=reshape(N, numel(N_1)/3, 2);
N_2=N_1(numel(N_1)*2/3+1: numel(N_1));
N=[N N_2'];

% El número de filas de la matriz debe ser constante para todos los
fotogramas a fin poder comparar pares de fotogramas consecutivos para
determinar la velocidad de las burbujas. Por ello se añaden ceros para
rellenar las matrices hasta un tamaño indicado por la variable maxburb
(nº máximo de burbujas "permitidas" en un fotograma.
N1_1=zeros(maxburb-nburb, 3);
N2_1=[N; N1_1];
M(:, :, 1)=sortrows(N2_1, 2); % Reordena la matriz por valores
crecientes en la coordenada y_centroide.
Mat1=M(:, :, 1); % Matriz de propiedades final para el 1er fotograma

% Se realizan las mismas operaciones con el 2o fotograma.
cc2=bwconncomp (bw2, 4);
nburb2=cc2.NumObjects;
burbdata2=regionprops (cc2, 'Basic');
N_1=[burbdata2(:).Centroid burbdata2(:).Area];
N=N_1([1:2: numel(N_1)*2/3-1 2:2: numel(N_1)*2/3]);
N=reshape(N, numel(N_1)/3, 2);
N_2=N_1(numel(N_1)*2/3+1: numel(N_1));
N=[N N_2'];
N1_12=zeros(maxburb-nburb2, 3);
N2_12=[N; N1_12];
M(:, :, 2)=sortrows(N2_12, 2);
Mat2=M(:, :, 2);

% Algoritmo del vecino más próximo. Este bucle determina qué fila
(burbuja) del 2º fotograma se corresponde con qué fila de la 1ª imagen
for n=1: numel(M(:, 1, 1))
    for t=1: numel(M(:, 1, 1))

% Comparación de las distancias euclídeas entre centroides de burbuja
de diferentes fotogramas.
dist(t)=sqrt((M(n, 1, 2)-M(t, 1, 1)).^2+(M(n, 2, 2)-M(t, 2, 1)).^2)
end

[d(n) idx(n)]=min(dist); % Elección de la mínima distancia

% No se considerarán los desplazamientos de burbuja superiores a un
cierto valor umbral (distancia euclídea en píxeles) para dt=0.004s.
if min(dist)>10
    d(n)=NaN; idx(n)=NaN;
end

```

```

end

% "Matriz" almacena x_centroide, y_centroide y area de cada objeto en
cada una de las dos imágenes (6 columnas), así como el desplazamiento
del centroide de cada burbuja (col. 7) y un índice (col. 8) que indica
cuál de las burbujas del segundo fotograma se corresponde con la del
primero.
Matriz=[Mat1 Mat2 d' idx'];
Resultado=Matriz;
Resultado(isnan(Resultado(:,8)),5:8)=1; % Se descartan las
burbujas sin correspondencia.
Resultado(:,1:3)=Resultado(Resultado(:,8),1:3); % Reorganización
de filas.
Resultado(find(Resultado(:,8)==1),:)=[]; % Se eliminan las filas
que almacenan burbujas sin correspondencia.

% Cálculo de velocidad de burbuja, diámetro de burbuja y posición
vertical del centroide para burbujas correspondientes entre sí en
fotogramas consecutivos. Se convierten medidas de píxels a centímetros
ub=(Resultado(:,5)-Resultado(:,2)).*(30/435)*250; %30cm->435px y
250fps
dB=sqrt((Resultado(:,3)+Resultado(:,6))./2*4/pi*30^2/435^2);
z=30-(Resultado(:,2)+Resultado(:,5))./2*30/435;

% "resul" almacena todos los resultados correspondientes a burbujas en
los fotogramas 2*a-1 e 2*a. "res" adiciona ceros para luego concatenar
vectores del mismo tamaño en cada iteración.
resul=[ub,dB,z]; %ub (cm/s) // dB (cm) // z (cm)
resaux=zeros(maxburb- numel(ub),3);
res=[resul;resaux];

% Vectores auxiliares para almacenar ub, db y z.
Bubbleubaux=res(:,1);
Bubbledbaux=res(:,2);
Bubblezaux=res(:,3);

% Los datos de burbuja para los distintos fotogramas se concatenan
sobre los vectores predefinidos Bubbleub, Bubbledb y Bubblez.
Bubbleub=cat(1,Bubbleub,Bubbleubaux);
Bubbledb=cat(1,Bubbledb,Bubbledbaux);
Bubblez=cat(1,Bubblez,Bubblezaux);
end
%Fin del BUCLE

% Resultados almacena una matriz m x 3, siendo m = maxburb x numpics.
Las filas que contengan ceros se eliminan.
Resultados=[Bubbleub Bubbledb Bubblez];
Resultados(find(Resultados(:,3)==0),:)=[];

% Cálculo de valores promedio para db y ub en función de la rodaja de
lecho considerada (db(z) y ub(z)). Las rodajas consideradas son de 1
cm de altura.
for i=1:24
Resultadosaux=Resultados;
Resultadosaux(find(Resultadosaux(:,3)<(i-1)),:)=[];
Resultadosaux(find(Resultadosaux(:,3)>(i)),:)=[];
ubpositivo=Resultadosaux(:,1);
ubpositivo(ubpositivo<0)=[];
Mdb(i)=sum(Resultadosaux(:,2).^2)/sum(Resultadosaux(:,2));
Mub(i)=sum(ubpositivo)/numel(ubpositivo);
end

```

```

end
% Cálculo de valores promedio para ub en función del tamaño de burbuja
(ub(db)). Los rangos de db considerados son cada db = 0.2 cm.
for j=0.4:0.2:2
    Resultadosaux2=Resultados;
    Resultadosaux2(find(Resultadosaux2(:,2)<(j-0.1)),:)=[];
    Resultadosaux2(find(Resultadosaux2(:,2)>(j+0.1)),:)=[];
    k=uint8(j/0.2-1);
    ubpositivo2=Resultadosaux2(:,1);
    ubpositivo2(ubpositivo2<=0)=[];
    Mub2(k)=sum(ubpositivo2)/numel(ubpositivo2);
end

% Matdb almacena los valores promedio de db(z) en función de z. Matub
hace lo mismo con ub(z).
Matdb=[Mdb' (1:24)'];
Matub=[Mub' (1:24)'];

% Representación gráfica de ub frente a db^0.5.
figure,
scatter(Bubbledb.^0.5,Bubbleub,5,'filled','blue');
hold on, % Escribe en la misma figura.
scatter(0.4:0.2:2,Mub2,50,'filled','red');
axis([0.3 2 0 80])
legend('u_r,_a_b_a_j_o = u_r,_a_r_r_i_b_a = 2.0'); % En caso de ur=2
xlabel('Raíz cuadrada del diámetro de burbuja (cm^0.^5)');
ylabel('Velocidad de burbuja (cm/s)');
hold off
saveas(gcf,[fpat,filesep,'ubdb_ur3a0_sim'],'fig'); % Guarda la figura
con el nombre indicado: ubdb => ub(db), ur2a0 => ur=2 (arriba y
abajo), cambio de sección, alpha = 0°.

% Representación gráfica de ub frente a z.
figure,
scatter(Bubblez,Bubbleub,5,'filled','blue');
hold on,
scatter(Matub(:,2),Matub(:,1),50,'filled','red');
axis([0 20 0 80])
legend('u_r,_a_b_a_j_o = u_r,_a_r_r_i_b_a = 2.0');
xlabel('Posición vertical (cm)');
ylabel('Velocidad de burbuja (cm/s)');
hold off
saveas(gcf,[fpat,filesep,'ubz_ur2a0_sim'],'fig');

% Representación gráfica de db frente a z.
figure,
scatter(Bubblez,Bubbledb,5,'filled','blue');
legend('u_r,_a_b_a_j_o = u_r,_a_r_r_i_b_a = 2.0');
axis([0 20 0 4]);
hold on,
scatter(Matdb(:,2),Matdb(:,1),50,'filled','red');
xlabel('Posición vertical(cm)');
ylabel('Diámetro de burbuja (cm)');
hold off
saveas(gcf,[fpat,filesep,'dbz_ur2a0_sim'],'fig');

profile off % Fin de la computación.
profile viewer % Se reportan los tiempos de computación para cada
orden ejecutada.
end

```

Como se puede comprobar, las mayores modificaciones del algoritmo **burbsim** respecto a **burbexp** residen en el cambio del valor umbral de binarización, el número de fotogramas a analizar, el intervalo temporal entre fotogramas y la diferente resolución de la imagen (píxels/cm). Además, el tratamiento de imágenes de simulación es más simple que para grabaciones experimentales ya que en las primeras no es necesario identificar el contorno del reactor ni filtrar las imágenes para evitar efectos de iluminación deficiente, reflejos o lluvia de partículas en el interior de burbujas. Lo que se representa en las imágenes de burbujeo simuladas es la fracción volumétrica de sólido en cada nodo de la malla superficial del lecho. El degradado de colores muestra regiones de lecho con un mismo rango de fracción volumétrica de sólido (ϵ_{lecho}) o, análogamente, con una misma porosidad.

La Figura D.3 muestra el tratamiento de un fotograma transitorio de simulación fluidodinámica para obtener propiedades de burbujeo. Según diversos autores [2, 36], la porosidad de lecho mínima para considerar la formación de una burbuja es 0.85, es decir, $\epsilon_{\text{lecho}} = 0.85$. Este es el valor elegido en el presente estudio para llevar a cabo la comparativa entre los tamaños de burbuja experimentales y simulados.

Otro aspecto a destacar es el hecho de no considerar los primeros fotogramas de burbujeo simulado en el cálculo de las propiedades hidrodinámicas. Al partir de un lecho empaquetado, el tamaño de burbuja en la fluidización incipiente es mayor que en el régimen pseudo-estacionario alcanzado una vez se afloja el lecho. Este fenómeno se detalla en la sección D.3 de este Anexo.

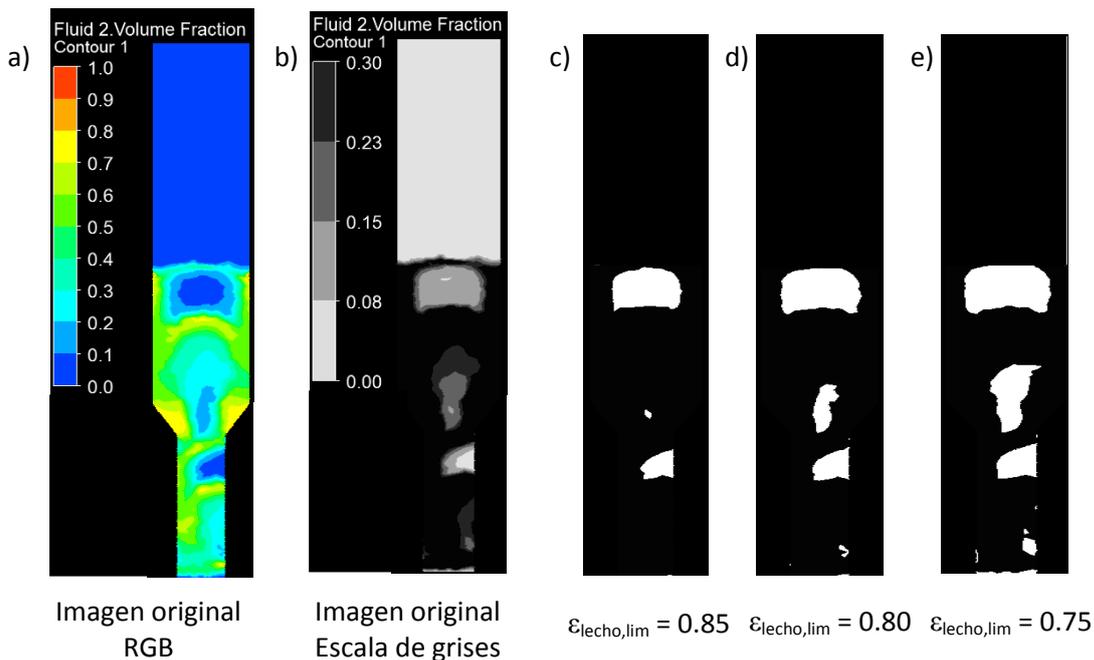


Figura D.3 Detección de burbujas mediante transformación de imágenes de simulación transitoria de burbujeo a imágenes binarias. a) Imagen original RGB, b) Imagen en escala de grises, c) $\epsilon_{\text{lecho,lim}} = 0.85$, d) $\epsilon_{\text{lecho,lim}} = 0.80$, e) $\epsilon_{\text{lecho,lim}} = 0.75$

D.3 Estacionalidad en el régimen de burbujeo simulado

Al llevar a cabo el post-procesado de los datos de burbujeo extraídos de las simulaciones fluidodinámicas, se comprobó que los primeros instantes de mezcla dan lugar a propiedades

de burbuja promedio diferentes a las obtenidas a tiempos de fluidización mayores. Las diferencias encontradas se han asociado al hecho de partir de un lecho totalmente empaquetado. En estas condiciones, la pérdida de carga del gas a través del lecho es inicialmente muy grande, lo que produce la “retención” del gas en el interior del lecho dando lugar a burbujas anormalmente grandes. Una vez aflojado el lecho ($t \approx 0.6$ s), el régimen de burbujeo se normaliza y los perfiles axiales de tamaño de burbuja resultan reproducibles en las distintas fracciones de tiempo de simulación. La Figura D.4 muestra fotogramas transitorios de fluidización para partículas fosforescentes en RLFZD-CS con ángulo de transición $\alpha = 45^\circ$ para velocidades relativas $u_r = 3.0$ en ambas zonas del lecho.

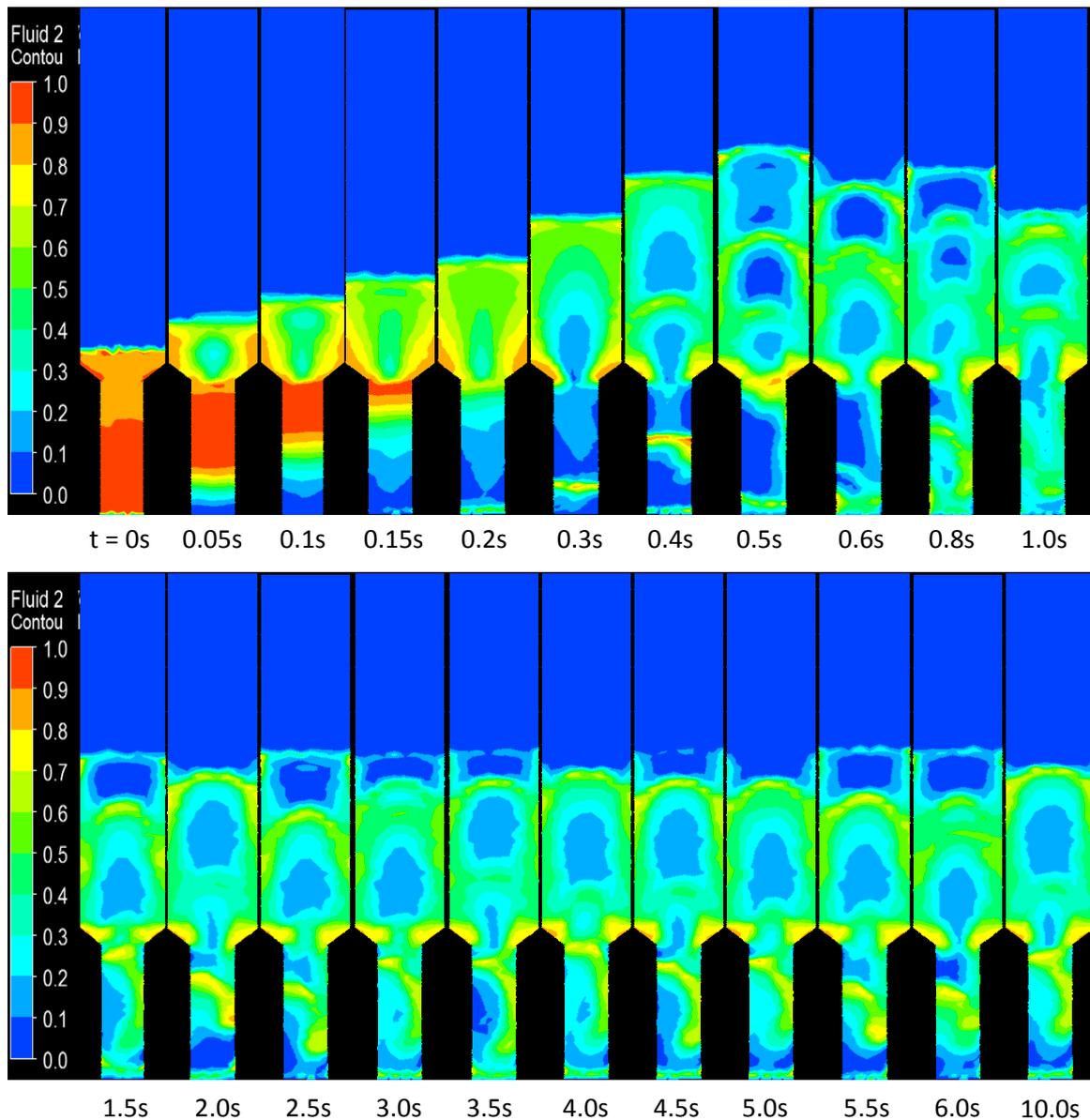


Figura D.4 Régimen de fluidización simulada para distintos tiempos de mezcla. Resultados obtenidos en Ansys CFX para RLFZD-CS pseudo bidimensional ($\alpha = 45^\circ$, $u_{r,abajo} = u_{r,arriba} = 3.0$, partículas fosforescentes)

Atendiendo a los perfiles axiales de diámetro de burbuja obtenidos para distintos tiempos de simulación (Figura D.5), es razonable descartar los primeros fotogramas de mezcla para conseguir unos perfiles promedio más representativos del comportamiento del lecho

fluidizado. De ahí que el código descrito en la sección D.2 para estudiar la hidrodinámica del lecho simulado analice únicamente los fotogramas que van del 151 en adelante o, lo que es lo mismo, para tiempos de fluidización $t > 0.6$ s (considerando una velocidad de adquisición de imágenes: $v = 250$ fps). La Figura D.6 muestra la discrepancia entre los valores promedio de tamaño de burbuja obtenidos en el intervalo de tiempo $t = [1s - 6s]$ frente a los valores promedio obtenidos en rangos de un segundo de duración entre $t = 1s$ y $t = 6s$. Este gráfico da idea del carácter pseudo-estacionario del régimen de fluidización una vez aflojado el lecho. Se podría considerar un único segundo de mezcla para extraer el perfil axial de diámetros de burbuja equivalente con un error relativo nunca superior al 30%. Esto es importante a la hora de economizar recursos computacionales: basta con lanzar una simulación CFD de unos pocos segundos (5s – 6s) para obtener resultados de burbujeo representativos.

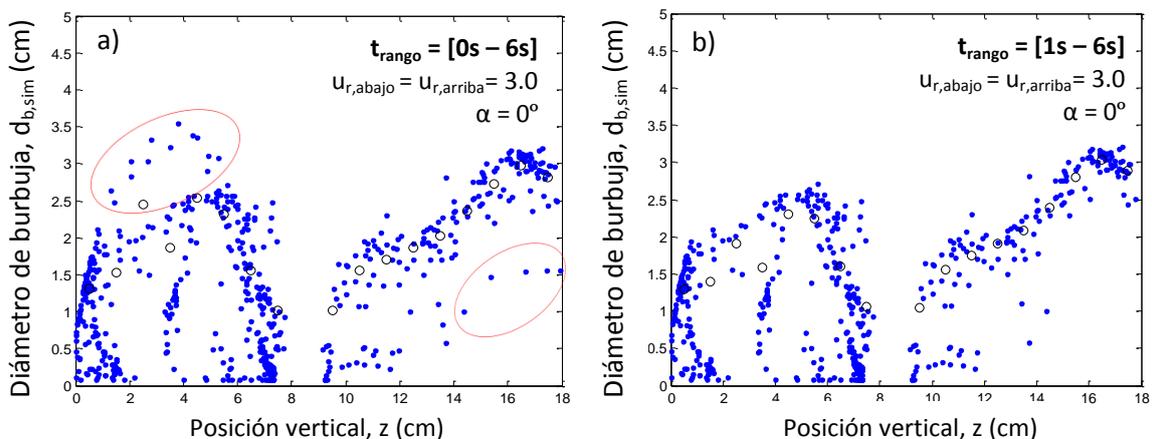


Figura D.5 Perfil axial de diámetro de burbuja equivalente simulado en Ansys CFX considerando: a) las burbujas del régimen transitorio inicial, b) el régimen de burbujeo pseudo-estacionario ($t > 0.6s$)

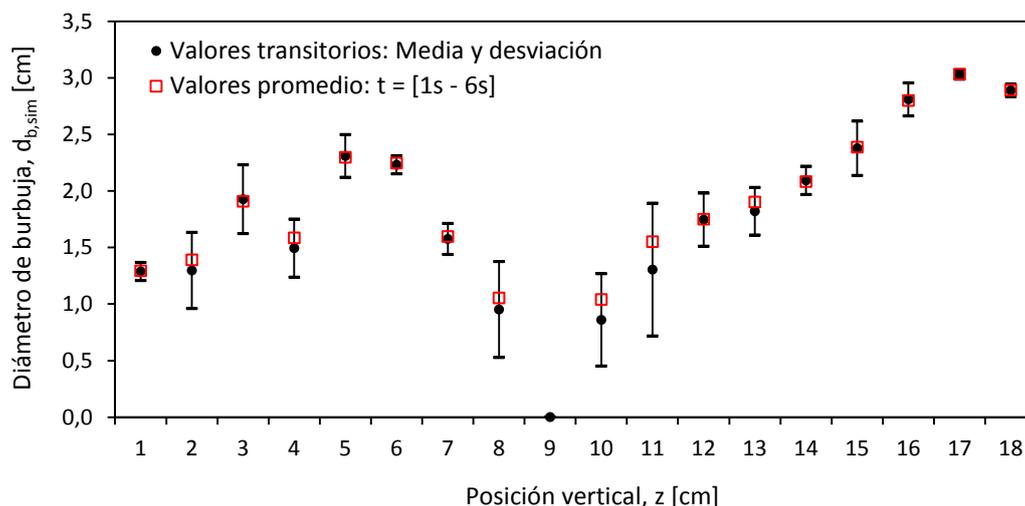


Figura D.6 Comparativa entre los perfiles axiales de tamaño de burbuja obtenidos promediando el conjunto de datos entre 1s y 6s (cuadros rojos) extrayendo la media de las diferentes fracciones $\Delta t = 1s$ en el rango [1s – 6s] (puntos y líneas negras)

ANEXO E

MODELADO HIDRODINÁMICO PARA UN RLFZD-CS

Este Anexo versa sobre la obtención de una correlación empírica capaz de predecir el comportamiento hidrodinámico de un reactor de lecho fluidizado de dos zonas con cambio de sección en función de la geometría de la zona de transición y de la localización del distribuidor de gas secundario.

E.1 Generación de perfiles axiales del tamaño de burbuja promedio

Dada una distribución de tamaños de burbuja experimentales en función de su posición axial en un RLFZD-CS pseudo-bidimensional (Figura D.1), se define el diámetro de burbuja equivalente (d_b) para una rodaja de lecho ($\Delta z = 1$ cm) como el diámetro de burbuja promedio en esa rodaja (Figura E.1, marcadores negros). Para realizar el cálculo de d_b , se tiene en cuenta que las burbujas más grandes transportan una mayor cantidad de gas y, por tanto, se utiliza el tamaño de las burbujas como factor de peso para calcular el promedio, según se detalla en la Ecuación 2 de la Memoria. Como se puede observar en la Figura E.1, la distribución de tamaños de burbuja es muy amplia, lo que implica una elevada variabilidad de d_b con el tiempo y la posición en el reactor, común en lechos fluidizados. Sin embargo, entre la nube de puntos experimentales es posible encontrar una clara tendencia de crecimiento de burbujas en los tramos de sección constante del lecho y una disminución de las mismas en la zona de ensanchamiento. Esta tendencia es, precisamente, la que reproduce el valor de d_b promediado en las diferentes rodajas de lecho. La Figura E.2 muestra como la dispersión de tamaños de burbuja es tanto más grande cuanto mayor es la velocidad del gas y, por tanto, cuanto más turbulenta es la fluidización.

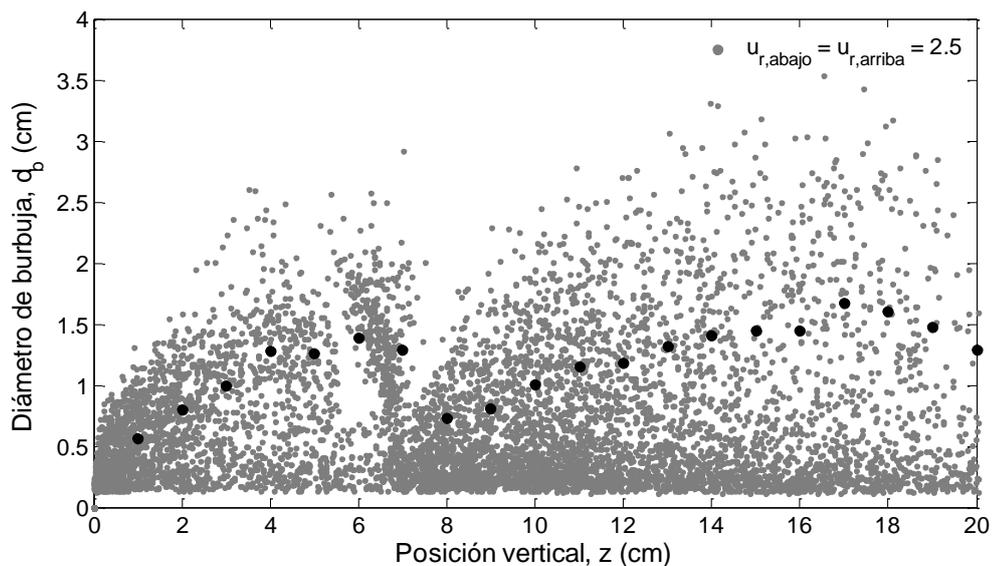


Figura E.1 Distribución de tamaños de burbuja en función de la posición vertical en un RLFZD-CS, $\alpha = 0^\circ$, con partículas fosforescentes (puntos grises). Puntos negros gruesos: $d_{b,promedio}$ (rodaja lecho [$\Delta z = 1$ cm])

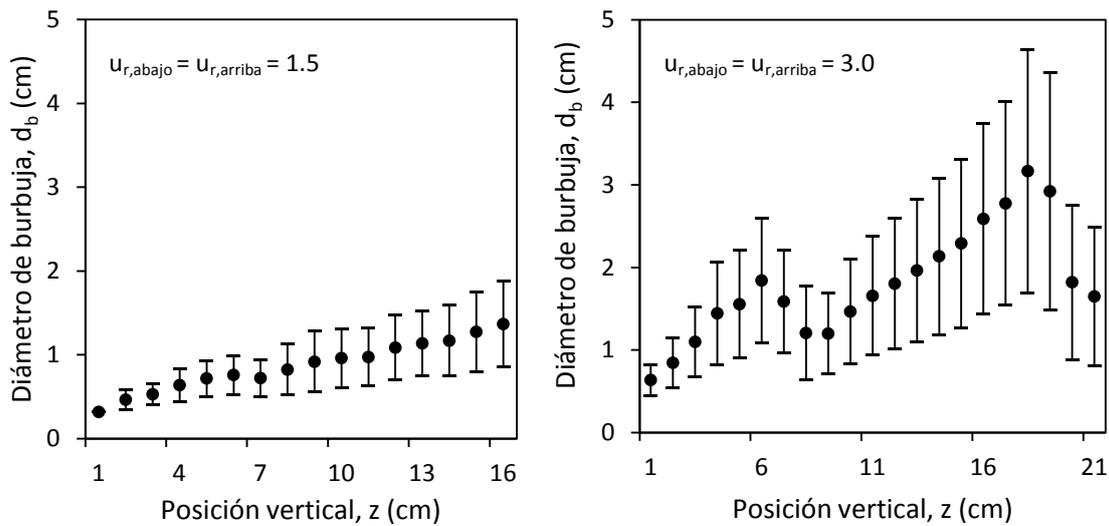


Figura E.2 Comparativa de la dispersión axial de tamaños de burbuja para diferentes velocidades de gas de fluidización en un RLFZDZ-CS ($\alpha = 45^\circ$) con partículas fosforescentes.

E.2 Comparativa de perfiles $d_b(z)$ experimentales con correlaciones empíricas

La curva de crecimiento descrita en las zonas de sección constante del RLFZDZ-CS ha sido observada en lechos fluidizados convencionales, de sección constante, ya hace algunas décadas por diversos autores [9, 43, 59, 63, 116]. En estos estudios se establecen correlaciones empíricas para tratar de predecir la tendencia encontrada en el perfil axial del tamaño de burbuja promedio. Entre las correlaciones más comúnmente aceptadas destacan las de Darton, Werther, Mori y Wen o Rowe [117]. La Tabla E.1 recopila las correlaciones empíricas más comunes entre las reportadas en bibliografía. Todas ellas son correlaciones con validez limitada en el rango de operación en el que han sido obtenidas y, por tanto, no son extrapolables a cualquier tipo de lecho fluidizado. La Figura E.3 muestra la calidad del ajuste de las diferentes correlaciones empíricas con los datos experimentales recogidos en los experimentos de burbujeo llevados a cabo en RLFZDZ-CS ($\alpha = 0^\circ$) para dos velocidades de gas diferentes. Como se observa en la Figura E.3 ninguna de las correlaciones clásicas es capaz de predecir la caída brusca del tamaño de burbuja debido al ensanchamiento del lecho y la adición de burbujas incipientes desde un distribuidor secundario. Sin embargo, algunas de ellas son capaces de conseguir un buen ajuste para los datos experimentales en la zona recta inferior del lecho. En concreto, las correlaciones de Darton, Mori y Wen, Whitehead y Kato y Wen. Entre todas ellas, la que mejores resultados ofrece es la correlación de Mori y Wen puesto que es la única que tiene en cuenta un crecimiento asintótico del tamaño de burbuja, limitado por el diámetro del reactor. El modelo empírico de Mori y Wen es válido bajo las condiciones descritas en la ecuación E.1.

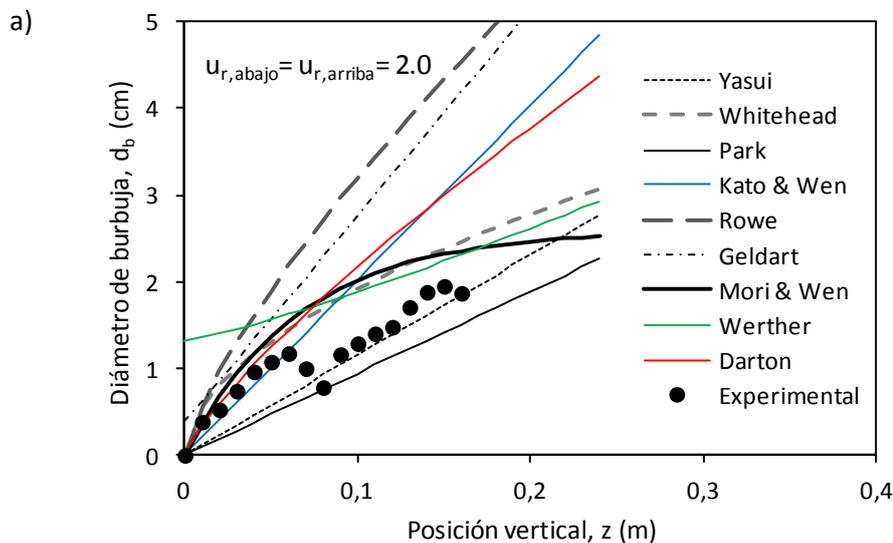
$$\begin{aligned}
 D_{\text{reactor}} &\leq 1.3 \text{ m} & 0.5 &\leq u_{\text{mf}} \leq 20 \text{ cm/s} \\
 60 &\leq d_p \leq 450 \text{ } \mu\text{m} & u_{\text{gas}} - u_{\text{mf}} &\leq 48 \text{ cm/s}
 \end{aligned}
 \tag{E.1}$$

Las condiciones en las que se llevan a cabo los ensayos experimentales con partículas fosforescentes (ecuación E.2) están dentro de los límites del modelo descrito por Mori y Wen por lo que, en principio, parece una correlación aceptable para describir el crecimiento de burbujas en las zonas de sección constante del lecho.

$$\begin{aligned}
 D_{\text{reactor}} &= 0.04 \text{ m} & u_{\text{mf}} &= 10.1 \text{ cm/s} \\
 d_p &= 200 \pm 100 \text{ }\mu\text{m} & u_{\text{gas}} - u_{\text{mf}} &\leq 25 \text{ cm/s}
 \end{aligned}
 \tag{E.2}$$

Tabla E.1 Recopilación de correlaciones clásicas para predecir la variación del diámetro de burbuja equivalente con la posición vertical en el lecho. Extraído de Farshi y cols. [118]

Autor	Correlación
Yasui y cols. (1958)	$d_b = 0.16 \rho_p d_p (u_{\text{gas}}/u_{\text{mf}} - 1)^{0.63} z$
Whitehead y cols. (1967)	$d_b = 9.76 (u_{\text{gas}}/u_{\text{mf}})^{0.33} (0.32 z)^{0.54}$
Park y cols. (1969)	$d_b = 33.3 \cdot 10^3 d_p^{1.5} (u_{\text{gas}}/u_{\text{mf}} - 1)^{0.77} z$
Kato y Wen (1969)	$d_b = 0.14 \rho_p d_p (u_{\text{gas}}/u_{\text{mf}}) z + d_{b,0}$
Rowe y cols. (1972)	$d_b = -A_1 + B_1 z + C_1 (u_{\text{gas}}/u_{\text{mf}}) + D_1 z (u_{\text{gas}}/u_{\text{mf}}) + E_1 (u_{\text{gas}}/u_{\text{mf}})^2$
Rowe (1976)	$d_b = (u_{\text{gas}} - u_{\text{mf}})^{0.5} (z + z_0)^{0.75} g^{-0.25} [z_{0,\text{porous}} = 0; z_{0,\text{perforated}} = 0.772 + 0.006 z]$
Geldart (1972)	$d_b = 2.05 (u_{\text{gas}} - u_{\text{mf}})^{0.94} z + d_{b,0}$ $[d_{0,po} = 0.376 (u_{\text{gas}} - u_{\text{mf}})^2; d_{0,pe} = 0.8716 (u_{\text{gas}} - u_{\text{mf}})^{0.4} (A/ND)^{0.4}]$
Mori y Wen (1976)	$d_b = d_{b,m} - (d_{b,m} - d_{b,0}) \exp(-0.3 z/D)$
Werther (1976)	$d_b = 0.00853 [1 + 27.2 (u_{\text{gas}} - u_{\text{mf}})]^{0.333} [1 + 6.84 z^{1.21}]$
Darton (1977)	$d_b = 0.54 (u_{\text{gas}} - u_{\text{mf}})^{0.4} (z + 4 A^{0.5})^{0.8} g^{-0.2}$



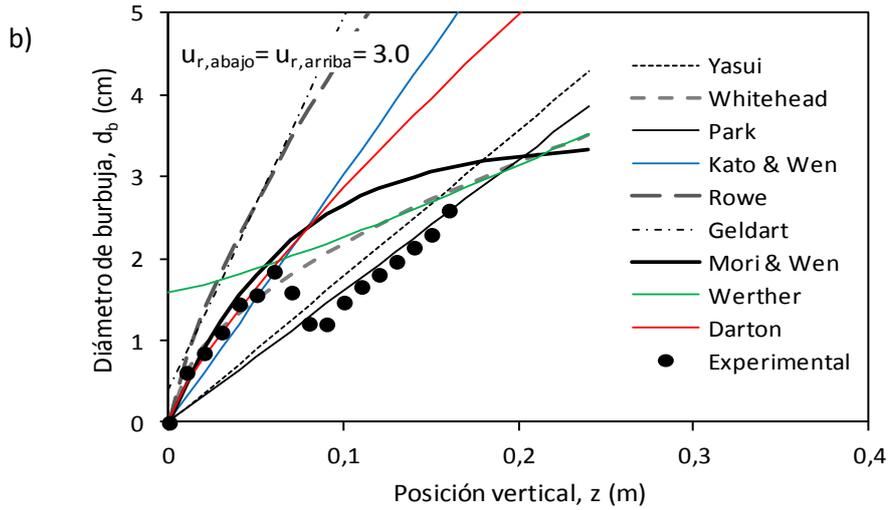


Figura E.3 Comparativa entre el perfil axial del diámetro de burbuja experimental y las predicciones de las correlaciones clásicas para $d_b(z)$ para distintas velocidades de gas: a) $u_r = 2.0$, b) $u_r = 3.0$.

E.3 Descripción del comportamiento hidrodinámico en la zona de transición de un RLFZD-CS

Una vez validada la ecuación de Mori y Wen para describir la evolución del diámetro de burbuja equivalente en zonas de lecho de sección constante, es preciso modelar el comportamiento hidrodinámico en la zona de transición, característica del RLFZD-CS. Se considera que en la zona del ensanchamiento coexisten dos tipos de burbujas: las que provienen de la zona inferior del lecho y las que se generan en el distribuidor de orificios localizado en un punto cualquiera del ensanchamiento (Figura E.4). En este trabajo se propone un modelo en el que las burbujas incipientes del distribuidor secundario se les asigna una tasa de crecimiento descrita por la ecuación de Mori y Wen, mientras que las burbujas que proceden de la zona inferior del lecho intercambian gas con la fase emulsión para mantener en el ensanchamiento una velocidad de gas igual a la de mínima fluidización: $u_{mf} = 4 \cdot Q_{gas,mf-cs} / (\pi \cdot D_{cs}^2)$.

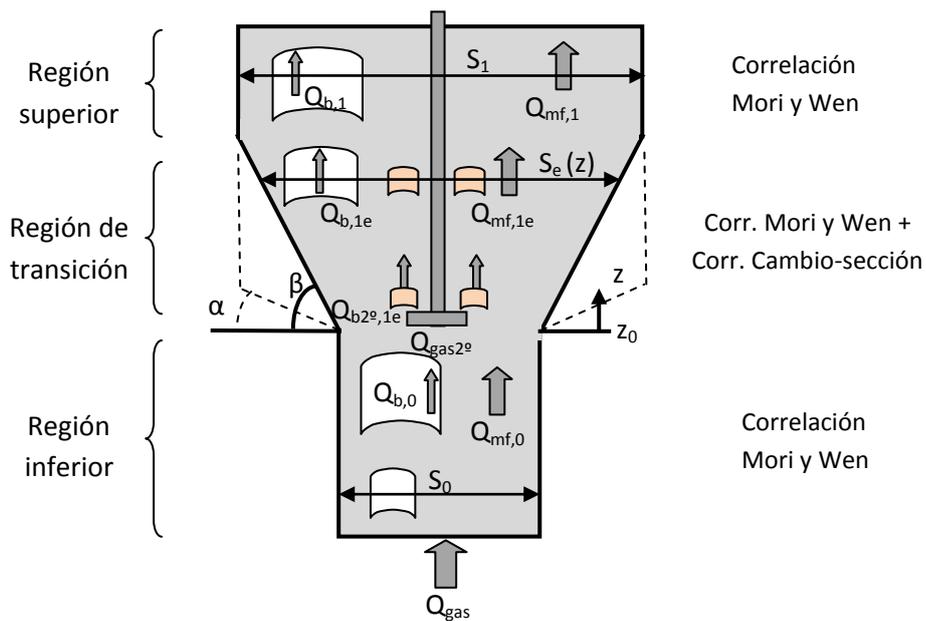


Figura E.4. Esquema de flujos de gas en la región de cambio de sección

En relación con estas últimas burbujas, a la disminución inicial de su tamaño en el ensanchamiento le sigue un crecimiento del diámetro de burbuja de acuerdo con la correlación de Mori y Wen. La velocidad de gas introducida en la correlación se corresponderá, en este caso, con la expresión: $u_{\text{gas}} = Q_{\text{gas,abajo}} / S_{\text{arriba}}$. Es decir, para las burbujas que provienen de la zona inferior del lecho, el modelado en la zona superior tendrá en cuenta el caudal de gas introducido a través del distribuidor inferior y la sección de la zona superior.

Estas suposiciones están de acuerdo con la evidencia experimental. En la Figura E.5.a se muestran los resultados experimentales del perfil axial de los tamaños de burbuja para una alimentación de gas localizada únicamente en el distribuidor de orificios situado al comienzo del ensanchamiento ($z = 8 \text{ cm}$). El diámetro de burbuja promedio en función de la posición vertical muestra la tendencia asintótica de las predicciones de Mori y Wen. Por otro lado, la Figura E.5.b ilustra el comportamiento hidrodinámico del RLFZDZ-CS con alimentación únicamente inferior. En la zona de transición, el tamaño de burbuja se reduce bruscamente para volver a crecer asintóticamente una vez superado el efecto del cambio de sección.

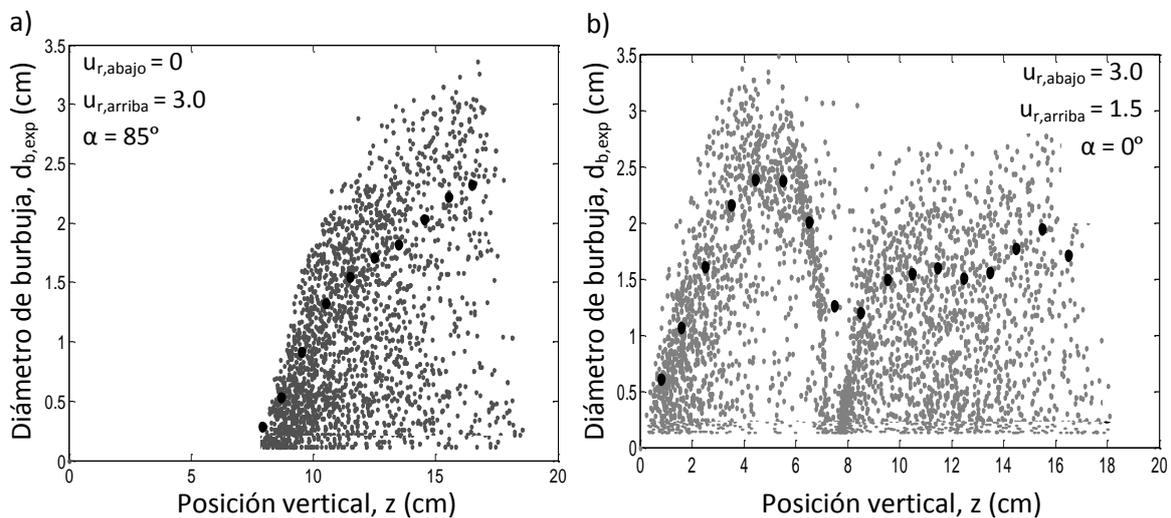


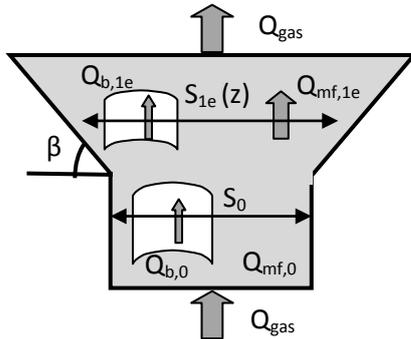
Figura E.5 Perfil axial de diámetros de burbuja experimentales para una única alimentación de gas al RLFZDZ-CS ($\alpha = 0^\circ$). a) Alimentación en la zona superior, b) Alimentación en la zona inferior.

E.4 Descripción del modelo matemático para predecir el perfil $d_b(z)$ en un RLFZDZ-CS

En este trabajo se propone un nuevo modelo matemático para predecir el perfil axial del tamaño de burbuja en un RLFZDZ-CS, basado en las consideraciones descritas en las secciones E.2 y E.3 del presente Anexo. Para ello, se divide el reactor en tres regiones (Figura E.4). En la región inferior se aplica la correlación de Mori y Wen para describir el crecimiento de burbuja promedio desde el distribuidor de gas ubicado en la base del lecho. En la región de transición se promedian dos tamaños de burbuja: el de aquellas que ascienden desde la zona inferior (correlación de cambio de sección, Ec. E.3 – E.7) y el de las burbujas de nueva formación en el distribuidor secundario (correlación de Mori y Wen). Por último, en la región superior se aplica el crecimiento de burbuja asintótico (correlación de Mori y Wen) a ambas contribuciones de burbujeo (correlación de Mori y Wen) y se obtiene su tamaño promedio.

La correlación teórica para predecir la disminución del tamaño de burbuja en función del ensanchamiento del lecho se desarrolla a continuación.

En primer lugar se establece un balance de materia para la fase gas entre dos puntos con diferente sección, S_0 y S_{1e} , (Ec. E.3). Para una sección dada (S), la velocidad relativa se define como: $u_{r,S} = Q_{gas,S}/Q_{mf,S}$. Por tanto, el caudal de mínima fluidización en la sección inferior se puede describir en función del caudal en burbujas y la velocidad relativa según la ecuación E.4. Por su parte, el caudal de mínima fluidización en la zona de sección ancha se puede relacionar con el de mínima fluidización en la sección estrecha a partir de la ecuación E.5. Sustituyendo las expresiones E.4 y E.5 en el balance de materia (E.3), se obtiene la ecuación (Ec. E.6) que relaciona el caudal en burbujas entre regiones de diferente sección: $Q_{b,1e} = f(Q_{b,0})$. Estableciendo la relación entre caudales de burbuja ($Q_{b,i}$) y diámetros de burbuja ($d_{b,i}$) entre zonas con diferente sección de paso ($Q_{b,1e}/Q_{b,0} = d_{b,1e}^2/d_{b,0}^2$), se obtiene la ecuación E.7. En la ecuación E.7, el término β hace referencia al ángulo de defluidización sobre un cambio de sección brusco y el término z_0 está referido a la altura a la que comienza el ensanchamiento del lecho. El ámbito de aplicación de la ecuación E.7 comprende el rango de alturas $[z_0, z_1]$, siendo z_1 la altura máxima de la región defluidizada (si la hay), es decir: $z_1 = z_0 + tg(\beta) \cdot [D_{max} - D_{min}] / 2$. En caso de no existir regiones defluidizadas en el lecho ($\alpha > \beta$), z_1 seguirá siendo la altura máxima de la zona defluidizada hipotética que corresponda al caudal de gas introducido (según la Figura 11 de la Memoria) pero en la ecuación E.7 se sustituirá β por α .



$$Q_{gas} = Q_{mf,0} + Q_{b,0} = Q_{mf,1e} + Q_{b,1e} \quad (E.3)$$

$$Q_{mf,0} = \frac{Q_{b,0}}{u_{r,0} - 1} \quad (E.4)$$

$$Q_{mf,1e} = \frac{S_{1e}}{S_0} Q_{mf,0} \quad (E.5)$$

$$Q_{b,1e} = Q_{b,0} + \frac{Q_{b,0}}{u_{r,0} - 1} - \left(\frac{Q_{b,0}}{u_{r,0} - 1} \right) \frac{S_{1e}}{S_0} = Q_{b,0} \left(1 + \frac{1}{u_{r,0} - 1} \left(1 - \frac{S_{1e}}{S_0} \right) \right) \quad (E.6)$$

$$d_{b,1e} = d_{b,0} \sqrt{1 + \frac{1}{u_{r,0} - 1} \left(1 - \frac{S_{1e}}{S_0} \right)} = d_{b,0} \sqrt{1 - \frac{z - z_0}{(u_{r,0} - 1) \tan \beta}} \quad (E.7)$$

El ángulo de defluidización del lecho, β , es un concepto introducido por Julián y cols. (2012) [60] y que se corresponde con el fenómeno de defluidización observado por Corella y Bilbao [119]. Describe el ángulo de talud o zona muerta de lecho sobre un cambio de sección brusco que tiene lugar para todo tipo de partículas fluidizables en determinadas condiciones de fluidización. Estos autores estudiaron el efecto de la velocidad relativa de gas sobre el ángulo de defluidización para diferentes partículas tipo B (clasificación de los sólidos de Geldart). Las curvas $\beta(u_{r,i})$ mostradas en la Figura 11 de la Memoria (Sección IV.1.3) se obtuvieron a partir de dos técnicas de análisis no invasivas. En el caso de las partículas

fosforescentes, se llevó a cabo la iluminación completa del lecho en reposo y se determinó el ángulo de talud una vez fluidizado, detectando las regiones en las cuales no se había producido mezcla de sólidos tras un determinado tiempo de fluidización (Figuras E.6.a y E.6.b). En el caso de esferas de vidrio o partículas de alúmina, sin propiedades ópticas, el análisis se llevó a cabo mediante técnicas avanzadas de detección del movimiento de partículas (*Particle Image Velocimetry, PIV*), a partir de una cámara digital ultra-rápida de alta definición (*LaVision Pro*) y un software especializado en procesamiento de imágenes para análisis PIV (*DaVis 8.0*) [60]. Dicho software obtiene, para una determinada secuencia de fluidización, un mapa del lecho que contiene la desviación estándar del movimiento de partículas en diferentes regiones (*interrogation areas*) del mismo. Cada región del lecho analizada está formada por cuadrados de 16x16 píxeles en la imagen (Figura E.6.c). Las regiones de lecho con desviaciones estándar muy bajas suponen zonas donde no se detecta movimiento de partículas y, por tanto, zonas donde el lecho está defluidizado o “muerto”. El ángulo de defluidización experimental representado en la Figura 11 (Sección IV.1.3) se corresponde con el promedio de los ángulos de talud que quedan a ambos lados del cambio de sección brusco. Generalmente, dichos ángulo coinciden para unas condiciones de operación (u_r) dadas ya que la circulación de sólido en el lecho es simétrica. Sin embargo, ambos ángulos pueden diferir si se establecen canales preferenciales de circulación de sólido. Esto suele suceder al utilizar bajas velocidades de gas en la zona superior del lecho, como queda recogido en el estudio de Julián y cols. [60].

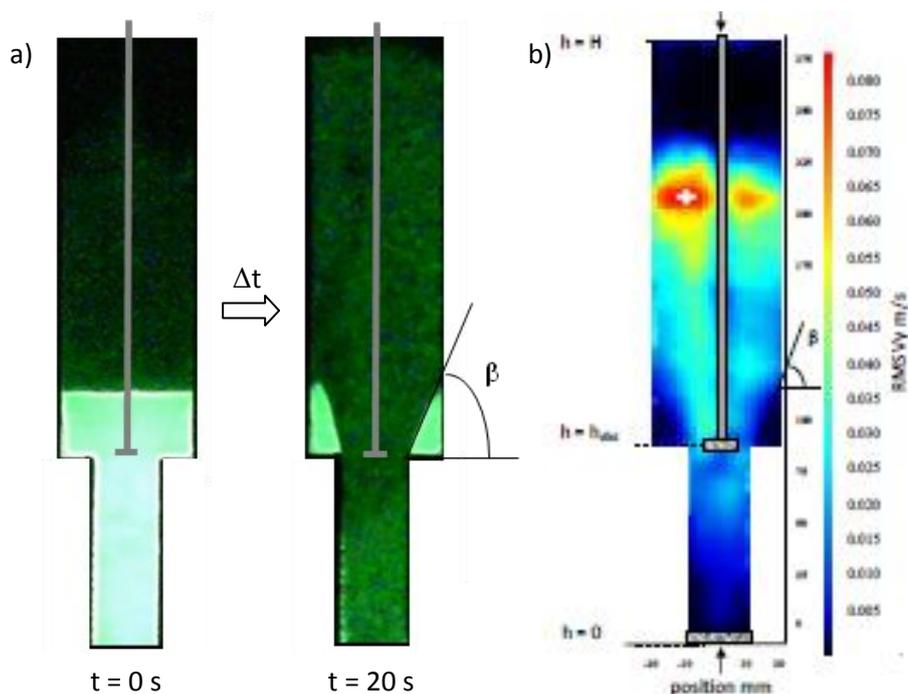


Figura E.6 Determinación experimental del ángulo de defluidización en RLFZD con cambio de sección brusco ($\alpha = 0^\circ$) a partir de: a) propiedades ópticas, b) seguimiento del movimiento de partículas (PIV)

Dado que la mezcla de sólidos en un lecho fluidizado viene dada por el movimiento ascensional de las burbujas de gas, la aparición de regiones defluidizadas indica que las burbujas de gas no atraviesan estas zonas del lecho. Por tanto, el área efectiva de circulación de gas en la zona de transición (S_{1e}) no se corresponde con la geometría del reactor (α) sino

con la geometría de la zona fluidizada del mismo (β). De ahí que el ángulo β , y no α , aparezca en la ecuación E.7.

Por tanto, el modelo matemático propuesto para describir la variación axial del tamaño de burbuja en un RLFZ-CS queda descrito mediante las ecuaciones E.8 a E.15 presentadas a continuación.

- Región inferior del lecho:

$$z < z_0: \quad d_b(z) = 0.65(\pi/4 D_{abajo}^2 u_{mf} (u_{r,0} - 1))^{0.4} (1 - \exp(-0.3z/D_{abajo})) \quad (E.8)$$

- Región de transición:

· Burbujas provenientes de la zona inferior (distribuidor primario):

$$z_1 > z > z_0: \quad d_{b,1e}(z) = d_{b,0} \sqrt{1 + \frac{1}{u_{r,0} - 1} \left(1 - \frac{S_{1e}}{S_0}\right)} = d_{b,0} \sqrt{1 - \frac{z - z_0}{(u_{r,0} - 1) \tan \beta}} \quad (E.9)$$

· Burbujas incipientes provenientes del distribuidor secundario:

$$z_1 > z > z_0: \quad d_{b,orif}(z) = d_{b,m} - (d_{b,m} - d_{b,orif}(z_0)) \exp(-0.3z/D_{arriba}) \quad (E.10)$$

siendo:

$$d_{b,m} = 0.65(\pi/4 D_{arriba}^2 u_{mf} (u_{r,1} - 1))^{0.4} \quad (E.11)$$

· Burbuja promedio en la zona de transición:

$$z_1 > z > z_0: \quad d_b(z) = \frac{d_{b,1e}(z)^2 + d_{b,orif}(z)^2}{d_{b,1e}(z) + d_{b,orif}(z)} \quad (E.12)$$

- Región superior del lecho:

· Burbujas provenientes del distribuidor primario:

$$z > z_1: \quad d_{b,1}(z) = d_{b,m1} - (d_{b,m1} - d_{b,1}(z_1)) \exp(-0.3z/D_{arriba}) \quad (E.13)$$

siendo:

$$d_{b,m1} = 0.65(\pi/4 D_{arriba}^2 u_{mf} (u_{r,0} - 1))^{0.4} \quad (E.14)$$

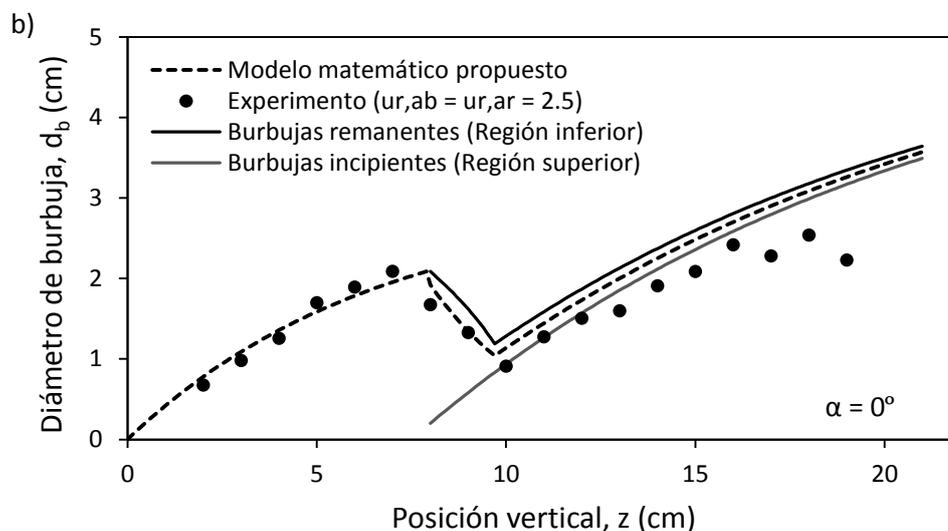
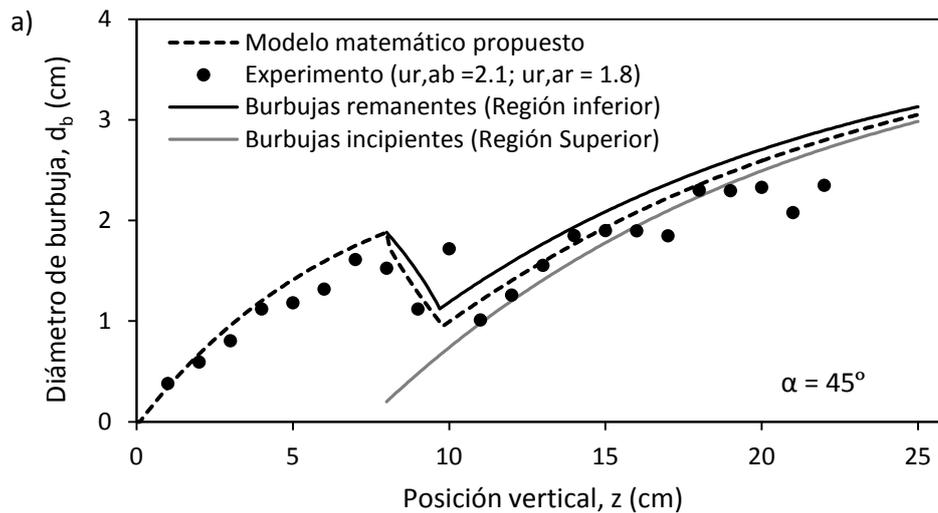
· Burbujas provenientes del distribuidor secundario:

$$z > z_1: \quad d_{b,orif}(z) = d_{b,m} - (d_{b,m} - d_{b,orif}(z_1)) \exp(-0.3z/D_{arriba}) \quad (E.15)$$

· Burbuja promedio en la zona de transición:

$$z > z_1: \quad d_b(z) = \frac{d_{b,1}(z)^2 + d_{b,orif}(z)^2}{d_{b,1}(z) + d_{b,orif}(z)} \quad (E.16)$$

La Figura E.7 muestra algunos ejemplos del ajuste del modelo matemático propuesto a los datos experimentales para distintas velocidades de gas y distintas geometrías. La Figura E.7.a muestra que la calidad del ajuste es independiente del hecho de que la velocidad relativa coincida o no en ambas zonas del lecho. En el caso de la Figura E.7.a, la velocidad relativa $u_{r,arriba} = 1.8$ supone un ángulo de defluidización experimental, $\beta = 67^\circ$. Es por ello que la caída del diámetro de burbuja por efecto del cambio de sección se prolonga más allá de la altura de transición del lecho ($z_{trans} = tg(\alpha) \cdot (D_{arriba} - D_{abajo})/2 = 1\text{ cm}$). En el caso de la Figura E.7.b, la geometría con cambio de sección brusco ($\alpha = 0^\circ$) y velocidad $u_r = 2.5$ supone una defluidización similar ($\beta = 63^\circ$) y, por tanto, la caída del diámetro de burbuja se da en una distancia análoga a la anterior. Por último, la Figura D.7.c muestra el ajuste del modelo respecto a un experimento llevado a cabo en un RLFZD-CS con cambio de sección suave ($\alpha = 80^\circ$) y elevada velocidad de gas, $u_r = 2.8$, en ambas regiones del lecho. En estas condiciones, el ángulo hipotético de defluidización es $\beta = 58^\circ$. Como $\alpha > \beta$, se sustituye β por α en la ecuación E.7 y se utiliza dicha ecuación en el rango $[z_0, z_1]$, siendo $z_1 = z_0 + tg(\beta) \cdot (D_{arriba} - D_{abajo})/2$, según se ha descrito anteriormente. Los resultados de ajuste obtenidos para condiciones de operación analizadas confirman la validez del modelo matemático propuesto.



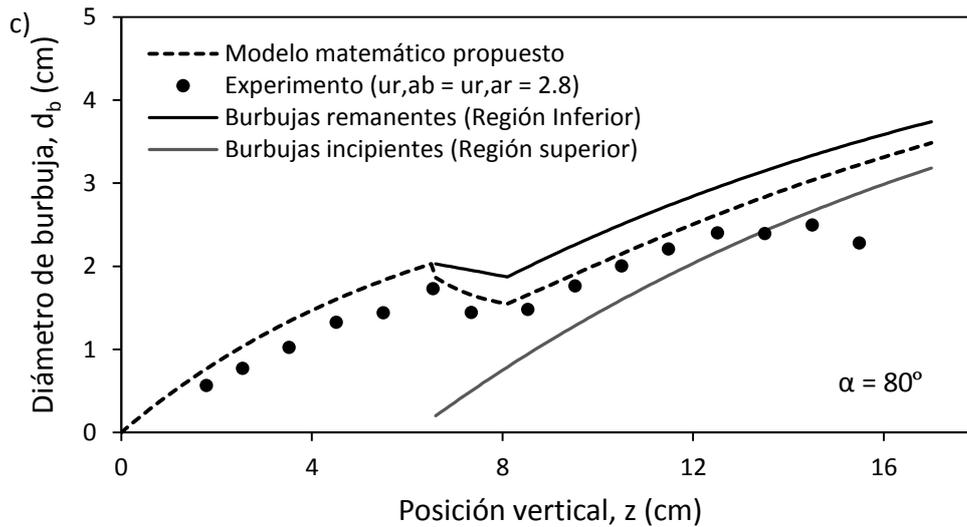


Figura E.7 Comparativa entre las predicciones del modelo propuesto y los datos experimentales obtenidos en RLFZD-CS con partículas fosforescentes y diferentes condiciones de operación: a) $u_{r,abajo} = 2.1$, $u_{r,arriba} = 1.8$, $\alpha = 45^\circ$; b) $u_{r,abajo} = u_{r,arriba} = 2.5$, $\alpha = 0^\circ$; c) $u_{r,abajo} = u_{r,arriba} = 2.8$, $\alpha = 80^\circ$

E.5 Adaptación del modelo propuesto para predecir el perfil $u_b(z)$ en un RLFZD-CS

Una vez validado el modelo para predecir el tamaño promedio de burbuja en función de la posición axial en el lecho se va a realizar lo propio con el perfil axial de velocidad promedio de burbuja, $u_b(z)$. Para ello, se parte de la correlación empírica de Davidson y Harrison [8], ampliamente aceptada en la literatura. Esta ecuación constituye el modelo más utilizado para predecir la evolución de la velocidad de burbuja en función de su tamaño y, por tanto, de su posición axial en el lecho (según se ha descrito en la Sección E.4 del presente Anexo). La ecuación genérica propuesta por estos autores (ec. E.17) muestra la dependencia de u_b respecto a un parámetro empírico K . En la literatura existen discrepancias sobre el valor de este parámetro. Por ejemplo, Davidson y Harrison (8) obtienen un valor de $K = 0.71$ para burbujas formadas en lechos tridimensionales mientras que Clift y cols. [120] señalan que este valor puede sobreestimar la velocidad de burbuja siendo más realista un valor de K en torno a $0.5 - 0.66$. Según Littman y Homolka [121], la velocidad de burbuja (para un mismo diámetro equivalente) es menor en reactores pseudo-bidimensionales debido al efecto de las paredes. Estos autores encontraron el mismo tipo de relación entre u_b y d_b pero con una constante de proporcionalidad inferior, $K = 0.41$. Este estudio está de acuerdo con los resultados obtenidos por Lim y cols. [41] y Lim y Agarwal [122]. Los primeros presentan un valor de $K = 0.4$ mientras que los segundos obtienen $K = 0.5$ como valores de ajuste del parámetro. Ambas investigaciones se realizaron mediante análisis de imágenes de burbujeo en lechos pseudo-bidimensionales.

$$u_b = (u_{gas} - u_{mf}) + K \sqrt{g d_b} \quad (D.17)$$

Una vez descrita la ecuación de partida y teniendo en cuenta que la evolución del diámetro de burbuja promedio se puede predecir a partir del modelo definido por las

ecuaciones E.8 – E.16 del presente Anexo, es posible predecir ahora el perfil de velocidades de burbuja promedio en el lecho $u_b(z)$. La única incógnita en el modelo es el valor que debe de tomar la constante K para llevar a cabo una predicción óptima de los datos experimentales.

Se ha llevado a cabo un estudio paramétrico de la constante de proporcionalidad K para elegir aquella que mejor se adapta a los resultados experimentales y validar los resultados presentados por otros autores. La Figura E.8 muestra la calidad del ajuste entre las predicciones del modelo y los datos experimentales para distintos valores de K. Analizando los resultados del ajuste para dos condiciones de fluidización diferentes (Fig. E.8.a y E.8.b), se observa que los valores de K que mejor predicen la velocidad de burbuja promedio experimental están en el rango [0.4 – 0.5], esto es, el rango propuesto por los autores que trabajan con reactores de lecho fluidizado pseudo-bidimensionales. El valor K = 0.71 propuesto por Davidson y Harrison (8) para reactores tridimensionales sobreestima, efectivamente, el perfil axial de velocidades de burbuja en el lecho. Se validan, por tanto, los resultados obtenidos por Lim y cols. [41] para lechos bidimensionales y se toma K = 0.4 como valor de referencia para el modelo matemático propuesto en base a las ecuaciones E.8 – E.17.

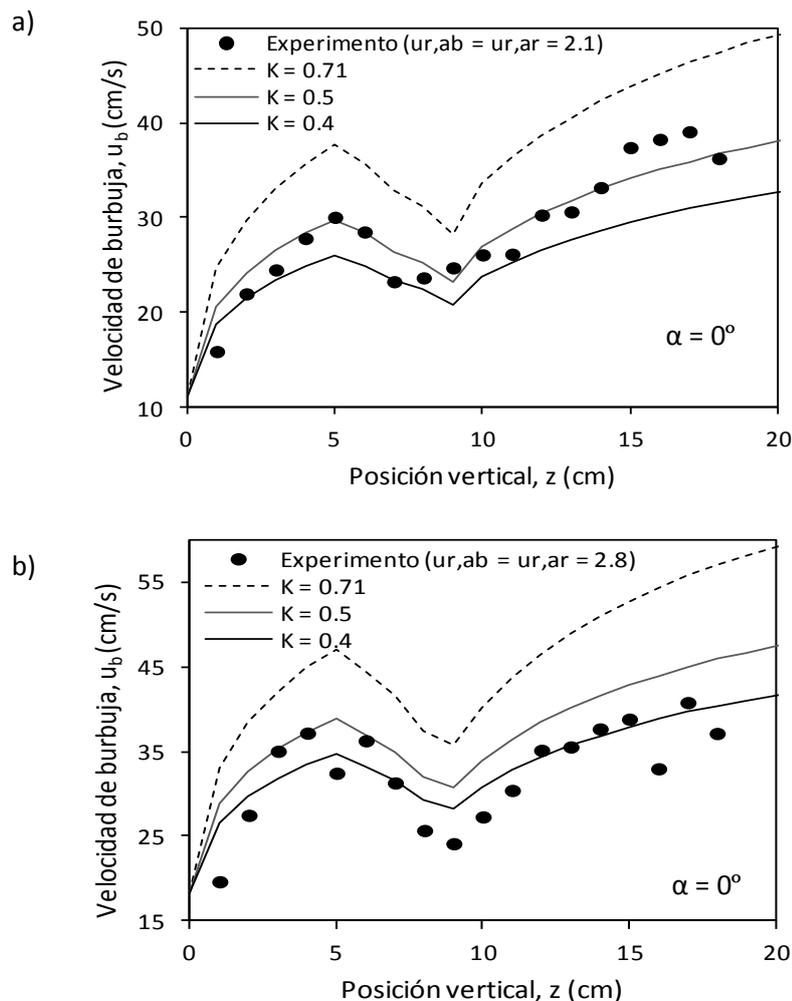


Figura E.8 Estudio paramétrico de la constante de proporcionalidad, K, en el cálculo de $u_b(z)$ a partir de la correlación genérica de Davidson y Harrison. a) $u_{r,exp} = 2.1$; b) $u_{r,exp} = 2.8$.

ANEXO F

SIMULACIÓN FLUIDODINÁMICA EN ANSYS CFX

CFX es el simulador de flujo de fluidos de Ansys Inc., un potente software de simulación en ingeniería basado en la resolución de problemas complejos mediante algoritmos numéricos en base al método de los elementos finitos. Ansys – CFX es una herramienta muy potente para llevar a cabo simulaciones fluidodinámicas y constituye el software de simulación más utilizado por ingenieros y diseñadores a nivel mundial. Por este motivo, éste ha sido el programa elegido para llevar a cabo la simulación de un flujo multifásico (fases gas y lecho particulado) en un reactor de lecho fluidizado de dos zonas con cambio de sección pseudo-bidimensional.

Los códigos de Ansys-CFX se estructuran a través de tres elementos principales: pre-procesado (*pre-processing*) o definición de los parámetros de simulación, fase de resolución (*solver*) o cálculo de la solución numérica por el método de elementos finitos y post-procesado de resultados de simulación (*post-processing*).

F.1 Etapa de pre-procesado

El pre-proceso constituye el primer paso a la hora de diseñar y analizar un modelo fluidodinámico. El método consiste en introducir en el programa una serie de valores de entrada necesarios para que éste sea capaz de resolver el problema. Durante la fase de pre-procesado tienen lugar las siguientes operaciones:

- a) Definición de la geometría que constituirá el dominio computacional.
- b) Creación de la malla (superficial o volumétrica) para la geometría definida. Si es necesario se crearán en este paso dominios y subdominios.
- c) Definición de las propiedades del fluido o fluidos (flujo multifásico) a simular.
- d) Especificación de las condiciones de contorno, de aplicación en subdominios de la geometría.

La definición y, especialmente, el mallado de la geometría suponen un punto clave en el éxito o fracaso de una simulación fluidodinámica. La definición de la geometría del reactor es bastante sencilla, ya que únicamente se trata de construir una placa plana con la forma de un RLFZD-CS con un ángulo de cambio de sección y espesor de placa deseados. En primer lugar se dibuja una geometría planar y, posteriormente, se lleva a cabo la extrusión de dicha figura de acuerdo con el espesor elegido. El mallado de la figura tridimensional se genera automáticamente mediante una subrutina de Ansys (*Workbench*). El usuario puede elegir si desea un mallado superficial (triángulos) o volumétrico (tetraedros), puede definir la máxima distancia entre nodos de malla e incluso una resolución variable en cuanto al número de elementos o nodos en zonas críticas de la geometría (vértices, aristas, etc.). Generar una malla con un gran número de nodos facilita la convergencia de los cálculos numéricos pero aumenta notablemente el coste computacional. Por este motivo, la calidad del mallado debe moverse por dos intereses contrapuestos: asegurar la convergencia y la calidad de los resultados de la

simulación sin resultar computacionalmente inabordable. La Figura E.1 muestra una imagen correspondiente a la definición de la geometría del reactor (F.1.a) y dos imágenes para mostrar sendos ejemplos de mallado grueso (F.1.b) y mallado apropiado para el objeto diseñado (F.1.c).

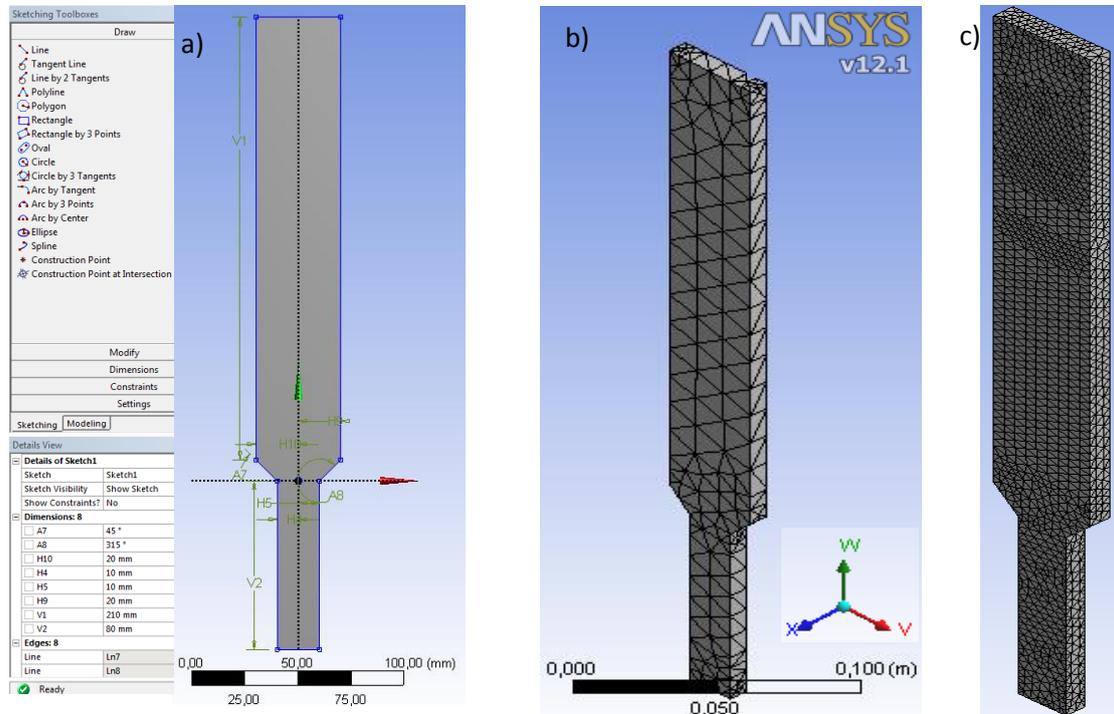


Figura F.1 Ejemplos de la interfaz gráfica de definición de geometrías (a), de un mallado deficiente (b) y apropiado para la geometría de un RLFZ-CS, $\alpha = 45^\circ$ (c).

Una vez se tiene la malla construida en Ansys Workbench, se puede pasar a utilizar el preprocesador de Ansys CFX para definir las propiedades del fluido o fluidos a analizar y las condiciones de contorno basadas en subdominios de la geometría. Se importa la malla y aparece un cuadro de diálogo donde es posible seleccionar el tipo de simulación, definir los tipos de materiales a utilizar (gas y lecho particulado) y sus propiedades físicas, seleccionar las opciones de cálculo para el dominio computacional, los modelos de flujo multifásico a utilizar, el método numérico de resolución, las condiciones iniciales, las condiciones de contorno o las variables que se van a calcular a cada instante de tiempo en la simulación transitoria. A continuación se detallan las opciones de simulación introducidas en el menú del preprocesador de Ansys CFX.

- 1) *Tipo de simulación.* Simulación transitoria, con un paso temporal de iteración adaptativo (0.0001 – 0.0002 s) y un número máximo de bucles por iteración, $n_{\max, \text{bucles}} = 8$. Se detalla el tiempo total de simulación, que ha de ser representativo del régimen de burbujeo pseudo-estacionario que se ha establecido en 6 s (ver estudios de estacionalidad de burbujeo: Anexo D.3).
- 2) *Definición del material.* Se definen las dos fases presentes en el lecho: fase gas y fase sólido particulado. La fase gas está compuesta por aire, gas ideal, en condiciones estándar de presión y temperatura para simular los ensayos en frío llevados a cabo en el laboratorio.

Esta sustancia viene incorporada en la biblioteca del programa por lo que no es necesario definirla. La fase dispersa, por el contrario, la constituye una sustancia “lecho” definida por el usuario. Entre las propiedades de material a introducir destacan: estado termodinámico (sólido), densidad (3.6 g/cm^3), capacidad calorífica específica ($4200 \text{ J/kg}\cdot\text{K}$) y viscosidad dinámica. Por definición, una sustancia sólida no es viscosa. Sin embargo, es necesario definir un valor de viscosidad en el lecho fluidizado para resolver las ecuaciones de transporte de fluido. Se ha establecido un valor bajo de viscosidad: $\nu_{\text{lecho}} = 1 \cdot 10^{-6} \text{ Pa}\cdot\text{s}$.

- 3) *Dominio de simulación.* Se localiza en el interior de la geometría mallada y se define como dominio fluido, estableciendo los dos materiales que lo constituyen: aire y “lecho”. Se asigna una presión de referencia a dicho dominio ($P = 1 \text{ atm}$) y se establece la opción de flotabilidad o ‘*buoyancy*’ para tener en cuenta la diferencia de densidades entre los gases y el material del lecho, lo cual resulta importante a la hora de calcular el flujo de lecho en el gas. Se define la densidad de referencia de flotabilidad como la densidad del gas y se establece la dirección vectorial y el valor de la fuerza de gravedad. Se descarta la opción de deformación de malla, ya que el reactor está constituido por paredes rígidas y se obvia la transferencia de calor entre fases, ya que se opera a temperatura constante. Se establece (o no) un modelo de turbulencia frente al de régimen laminar en función de la velocidad de gas a introducir.
- 4) *Detalles del dominio fluido.* El aire se define como un fluido continuo con un modelo de flotabilidad basado en la diferencia de densidades con la fase “lecho”. El lecho, por su parte, se define como fase sólida dispersa con un diámetro de partícula promedio, $d_p = 200 \mu\text{m}$ y una fracción máxima de empaquetamiento, $(1-\varepsilon_{\text{lecho}}) = 0.65$. Se establece un coeficiente de restitución, $CR = 0.97$. Esto implica choques entre partículas prácticamente elásticos, es decir, recuperando el 97% de la energía previa al choque. Este valor es utilizado por varios autores en sus simulaciones [10, 123-125]. La estimación de las propiedades reológicas de la fase sólida a partir de la Teoría Cinética de Flujo Granular (*Kinetic Theory of Granular Flow, KTGF*) no ha sido posible hasta la fecha por problemas de convergencia asociados a la imposibilidad de mantener el límite máximo de empaquetamiento del lecho en regiones con cambio de sección brusco donde el sólido queda depositado. A fin de alcanzar convergencia se utiliza el modelo de flotabilidad, comentado anteriormente, junto la correlación de Gidaspow para el intercambio de momento entre las fases gas y sólida.
- 5) *Condiciones iniciales.* Se indican las condiciones iniciales con las que comienza la simulación. Se deben especificar valores para las dos fases que componen el dominio fluido: aire y “lecho”. La presión relativa se toma respecto de la presión absoluta que ha sido definida en el apartado 3 y en este caso se corresponde con la presión atmosférica, 1 atm. Puesto que el reactor está abierto por la parte superior, la presión relativa es igual a 0 atm. La fracción volumétrica inicial de gas y fase dispersa se define en este punto. De modo general, se opta por “cargar” el reactor con un 30% de fase sólida y un 70% de fase gas y se deja decantar la fase densa por gravedad (estableciendo una velocidad de flujo igual a cero en ambas fases) antes de fluidizar el lecho.

6) *Condiciones de contorno.* Se establecen condiciones tipo pared, flujo de entrada en la sección inferior del reactor, reactor abierto a la atmósfera en la parte superior y entradas puntuales de gas en un punto intermedio del lecho, en la región de transición.

- La condición impuesta en las paredes laterales varía para las fases gas y sólido. En caso del gas se impone una condición de tipo '*Free Slip*' que supone las siguientes hipótesis: esfuerzo tangencial nulo en la pared (el fluido no se ve frenado por efectos de fricción), campo de velocidades normales a la pared igual a cero y campo de velocidades paralelo a la pared calculado en la simulación. Para el sólido se utiliza la condición de tipo '*No Slip*' que implica que el fluido situado inmediatamente junto a la pared asume la velocidad de ésta, que es cero por defecto.

- El flujo de entrada de gas alimentado por la parte inferior del lecho ('*inlet*') se define con la opción de flujo másico ('*mass flow rate*', kg/s) ya que, de este modo, se erige una pared artificial en la base del reactor que impide el escape de sólido por abajo como producto de la gravedad. De otro modo, especificando condiciones de velocidad de entrada de gas se permitiría el escape de sólido, como queda recogido en la Figura F.2.

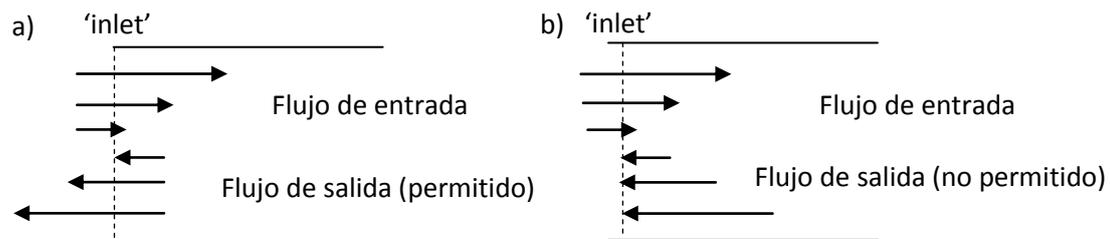


Figura F.2 Definición de la condición de contorno tipo '*inlet*' especificando:
a) velocidad de gas, b) flujo másico de gas

- La salida de gases del reactor está definida con una condición de tipo '*opening*' para evitar problemas numéricos. Con esta condición se evita que el programa construya una pared artificial que impida un posible flujo de entrada. Por tanto, si se generase una presión de vacío en el lecho durante la simulación, la convergencia no se vería afectada ya que gas externo podría alimentarse al lecho desde la zona superior. Asimismo, si la fase densa alcanza la sección de salida puede suceder la elutriación, es decir, el escape de sólido del lecho.

- Las entradas puntuales o términos fuente constituyen entradas de gas al sistema en puntos localizados del lecho para simular el efecto del aporte de gas que tiene lugar en el lecho experimental desde el distribuidor de orificios. Se define el flujo másico inyectado en cada uno de los términos fuente establecidos en el lecho así como sus coordenadas y la presión relativa impuesta en la salida del gas.

7) *Definición de parámetros para la resolución del modelo.* En este apartado se define el método numérico a utilizar en la resolución del problema ('*Upwind*' de primer orden), así como las variables que se van a calcular para cada instante de tiempo y una serie de

parámetros independientes que facilitan la convergencia del modelo. Entre otros, el criterio de convergencia (residuo RMS = 0.001), el número de bucles máximo por paso de tiempo para obtener dicha convergencia (10) y la frecuencia de escritura o creación de archivos transitorios de simulación ($\Delta t = 0.004$ s).

- 8) *Grabación del problema.* Una vez definido el problema a simular, se graba el archivo con .def que es la extensión que necesita el módulo de resolución de Ansys-CFX.

F.2 Etapa de resolución

En el módulo 'solver' se realizan los cálculos sobre el flujo y se desarrollan los resultados. Como se ha comentado, Ansys-CFX emplea el método de los elementos finitos y lo resuelve mediante un algoritmo numérico. Dicho algoritmo funciona iterativamente de la siguiente manera: se establecen los parámetros de la simulación y se inicializa el problema, después se va calculando la solución y verificando la convergencia. Si no se consigue reducir el error en el valor asignado se sigue iterando hasta alcanzar el grado de precisión marcado. Una vez concluido el proceso de cálculo se comprueba si la solución obtenida es coherente y satisfactoria. La secuenciación lógica de la etapa de resolución se muestra en el esquema de la Figura F.3.

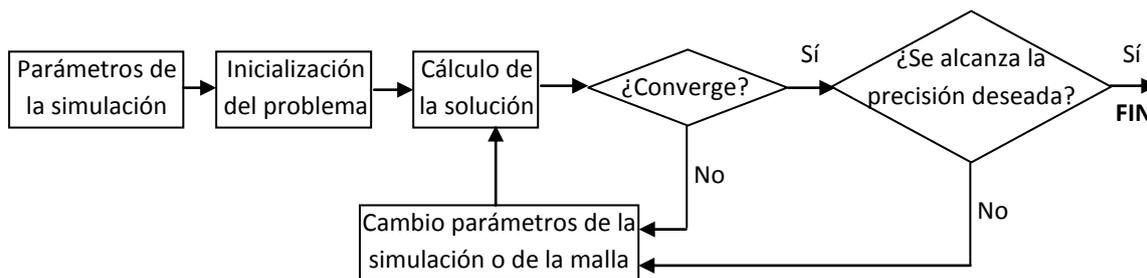


Figura F.3 Secuencia lógica para resolver un problema fluidodinámico en Ansys CFX

El módulo 'solver' de Ansys CFX permite visualizar la resolución del problema obteniendo gráficos transitorios de la evolución del error en el cálculo de diferentes variables del proceso: presión en el lecho y componentes tridimensionales de la velocidad de gas y de la fase sólida o fracción volumétrica de ambas fases. La Figura F.4 representa una captura de pantalla que muestra la variabilidad de la media cuadrática del error (RMS) para las variables mencionadas anteriormente. Condiciones de simulación: RLFDZ-CS con $\alpha = 0^\circ$, $u_{r,abajo} = u_{r,arriba} = 2.0$ y altura relativa del distribuidor, $z = 2.0$ cm sobre el comienzo del cambio de sección. En el caso concreto de la resolución presentada en la Figura F.4, la utilización de la "Teoría cinética de flujo granular" (KTGF) para el cálculo del movimiento de la fase sólida presenta un error de convergencia debido al incumplimiento del límite máximo de empaquetamiento del lecho ($\epsilon_{max,lecho} = 0.65$) en las zonas defluidizadas (o "muertas") sobre el cambio de sección brusco. Por este motivo, el error en el cálculo de la pérdida de carga en el lecho ("RMS P-vol" en la Figura F.4) se dispara una vez rebasado el límite de empaquetamiento permitido. Junto al gráfico de la evolución temporal del error en el cálculo de las variables, en la parte derecha de la Figura F.4, se muestran los valores transitorios de las variables calculadas en cada iteración.

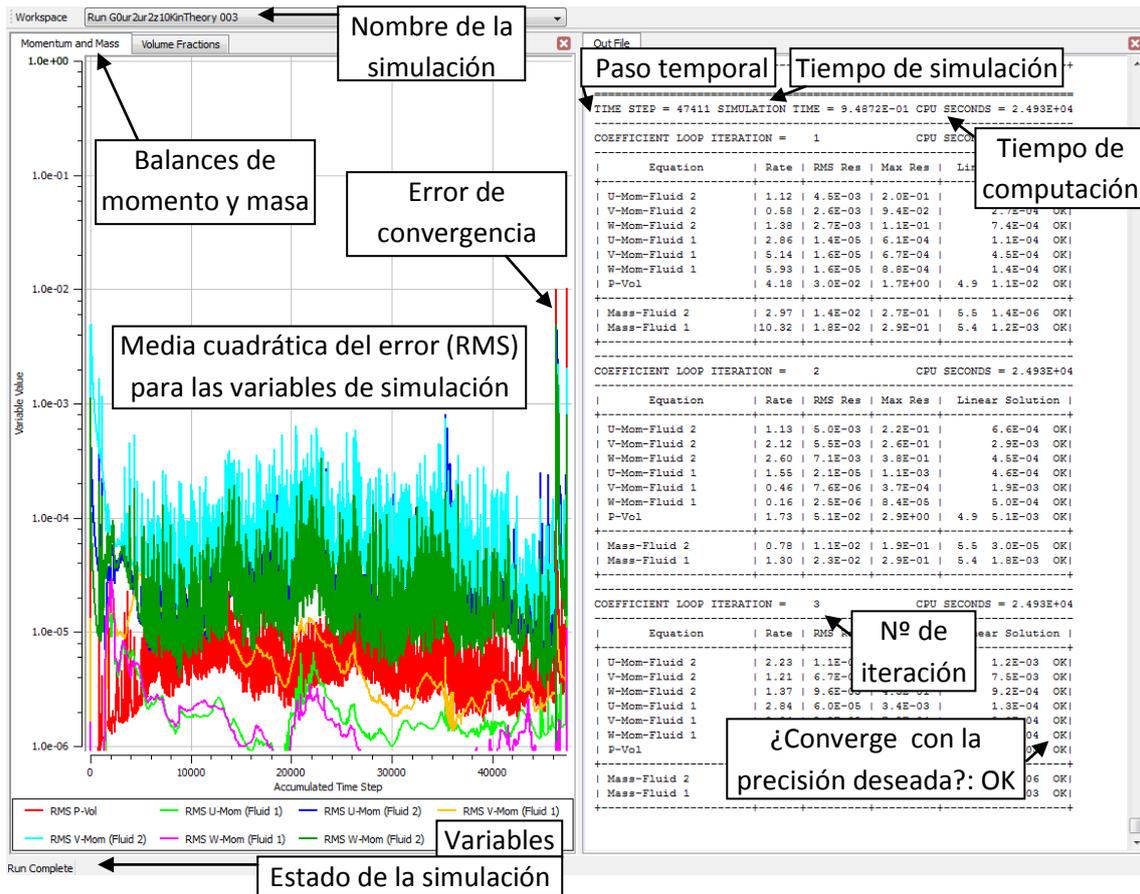


Figura F.4 Evolución transitoria del error RMS en el cálculo de las variables de simulación

El fallo de convergencia ilustrado por el pico “RMS P-vol” que aparece próximo a los 50000 s de computación en la Figura F.4 es mucho más notorio al analizar los RMS correspondientes a la fracción volumétrica de gas (ϵ_{gas}) y de lecho (ϵ_{lecho}) en la simulación. La evolución de estas dos variables a lo largo del tiempo de computación se detalla en la Figura F.5.a. La Figura F.5.b muestra la fracción volumétrica de lecho en función de la posición para el tiempo de simulación en el cuál el problema diverge.

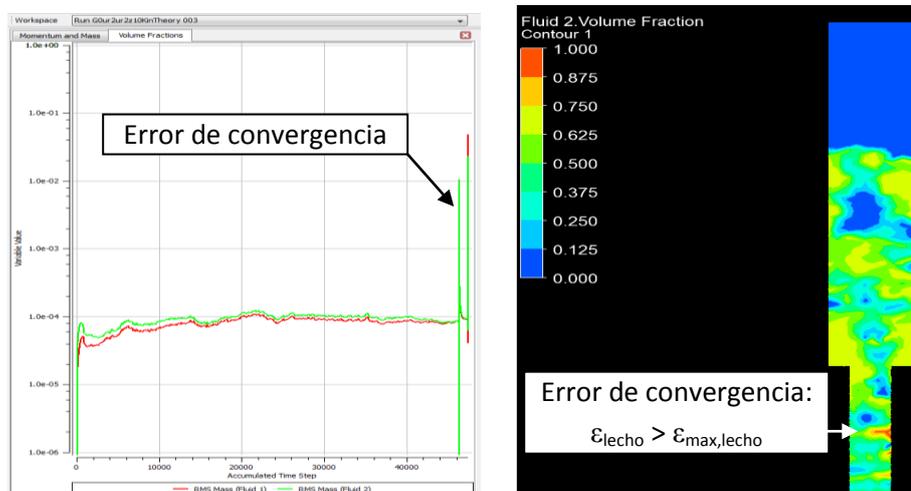


Figura F.5 a) Evolución transitoria del error RMS en el cálculo de ϵ_{lecho} y ϵ_{gas} . b) Fotograma de divergencia

F.3 Etapa de post-procesado

El post-procesado constituye el paso final en un análisis CFD y es en este módulo donde se analizan e interpretan los resultados. Ansys-CFX presenta numerosas herramientas que facilitan el procesado de datos de simulación. Algunas posibilidades que se nos ofrecen son: trabajar con toda o una parte de la geometría, dibujar líneas y superficies de corriente (Figuras F.6.a y F.6.b), analizar trayectorias de partículas discretas (Figuras F.6.d y F.6.f), perfiles de presión (Figura F.6.f) además de diversas opciones de visualización (translación del objeto de estudio, rotación, obtención de diferentes perspectivas, etc.). Además, es posible exportar los datos de determinadas variables desde los archivos transitorios de simulación generados para poder trabajar con ellos desde otros programas como Matlab. En el caso concreto de este trabajo, los datos de malla transitorios correspondientes a las fracciones volumétricas de fase gas y fase “lecho” (Figura F.6.c) han sido exportados a Matlab para llevar a cabo el análisis digital de imágenes de simulación y obtener los perfiles de tamaño y velocidad de burbuja.

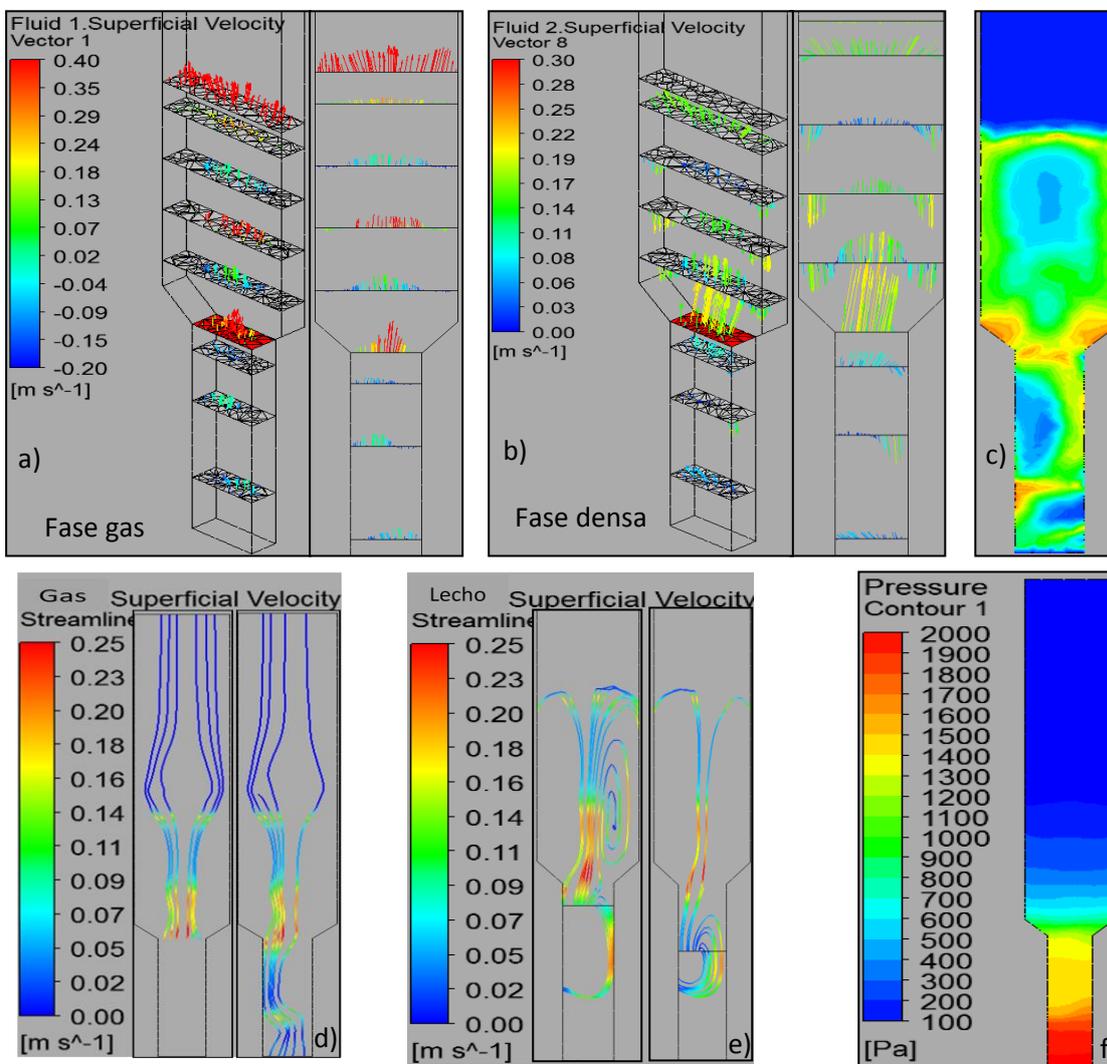


Figura F.6 Ejemplos de post-procesado en la simulación de flujos multifásicos: a) Velocidad superficial de la fase gas a distintas alturas de lecho; b) Velocidad superficial de la fase “lecho”; c) Fracción volumétrica de sólido en el lecho; d) Trayectoria de partículas de gas en el lecho; e) Trayectoria de partículas sólidas en el lecho; f) Perfil de presión en el lecho

ANEXO G

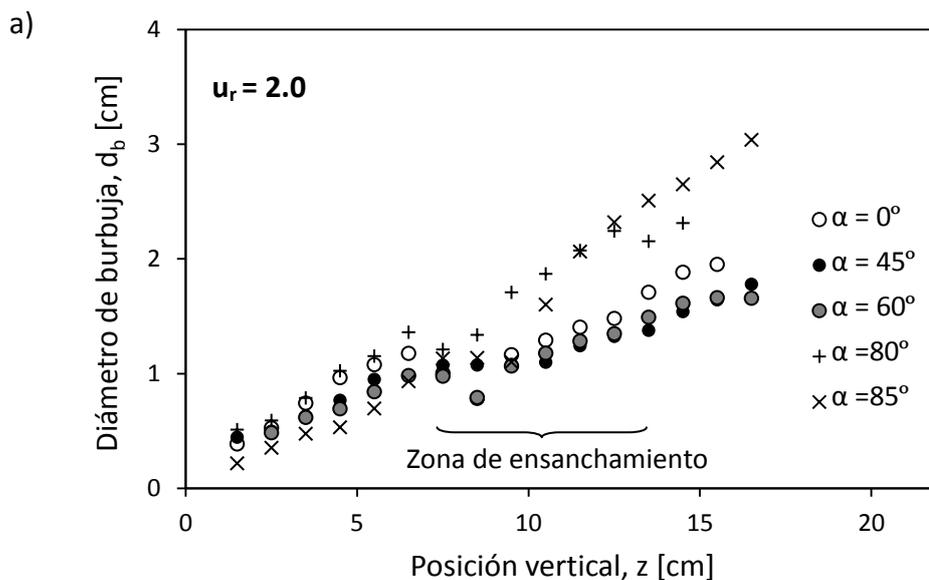
ANÁLISIS HIDRODINÁMICO. RESULTADOS ADICIONALES

En este Anexo se van a presentar resultados adicionales a los mostrados en la Memoria del proyecto en referencia a la variación axial del tamaño de burbuja en el lecho para un RLFZD-CS al fluidizar partículas fosforescentes tipo A. En concreto, se analizará la influencia de la geometría del RLFZD-CS en el perfil de d_b para la zona de transición en el lecho y se comentarán las limitaciones del modelo MW + J al tratar de predecir la evolución del d_b experimental en condiciones extremas de fluidización: fluidización incipiente ($u_{r,PF} \leq 1.5$) y régimen de 'slugging' ($u_{r,PF} \geq 3.0$).

G.1 Influencia de la geometría del RLFZD-CS en el perfil de tamaños de burbuja para la zona de transición en el lecho.

Como se ha comentado en la Memoria, el perfil axial de d_b en la zona de transición del lecho difiere entre geometrías de reactor debido esencialmente al ángulo de defluidización en el lecho (β) y no tanto debido al ángulo de transición (α) para cambios de sección bruscos y velocidades de gas moderadas.

En las Figuras G.1.a y G.1.b se muestran perfiles axiales de d_b obtenidos a una misma velocidad relativa de gas, u_r , en distintas geometrías de reactor, α . Se comprueba que cuanto mayor es la velocidad con la que se fluidiza el lecho, mayor es la diferencia de tamaños de burbuja en el ensanchamiento entre geometrías de RLFZD-CS con ángulos de cambio de sección alejados entre sí.



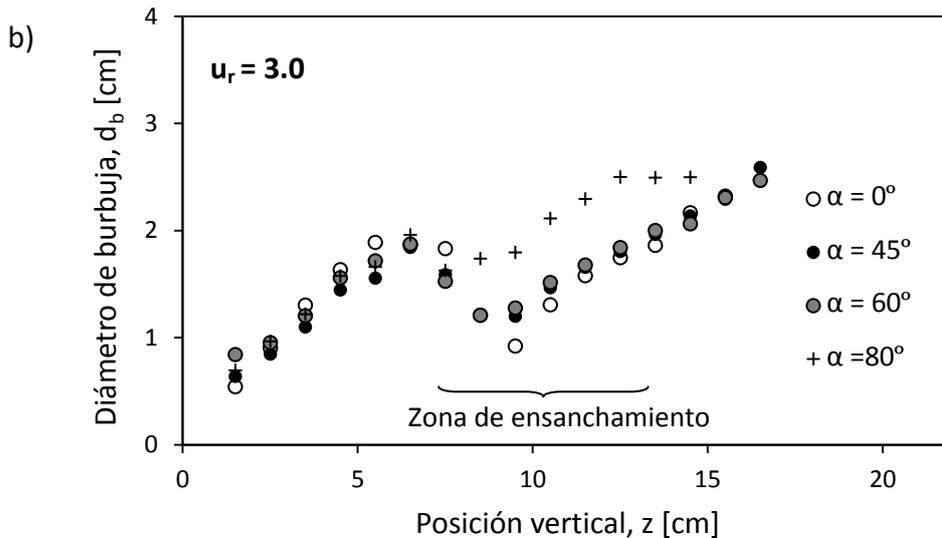


Figura G.1. Influencia de la geometría del RLDZ-CS en el perfil de tamaños de burbuja para la zona de transición del lecho para velocidades relativas de gas: a) $u_r = 2.0$, b) $u_r = 3.0$

Los resultados mostrados en las Figuras G.1.a y G.1.b presentan tendencias muy similares para los perfiles obtenidos en geometrías con cambio de sección brusco ($\alpha = [0^\circ - 60^\circ]$), independientemente de la velocidad de gas utilizada. Estos resultados validan la utilización de β para describir la evolución axial del tamaño de burbuja en el modelo matemático propuesto en este trabajo y, además, están en consonancia con el estudio de la variación de β con la velocidad de fluidización, u_r , presentado en la Figura 11 de la Memoria y reproducido en la Figura G.2 para el caso de las partículas fosforescentes tipo A.

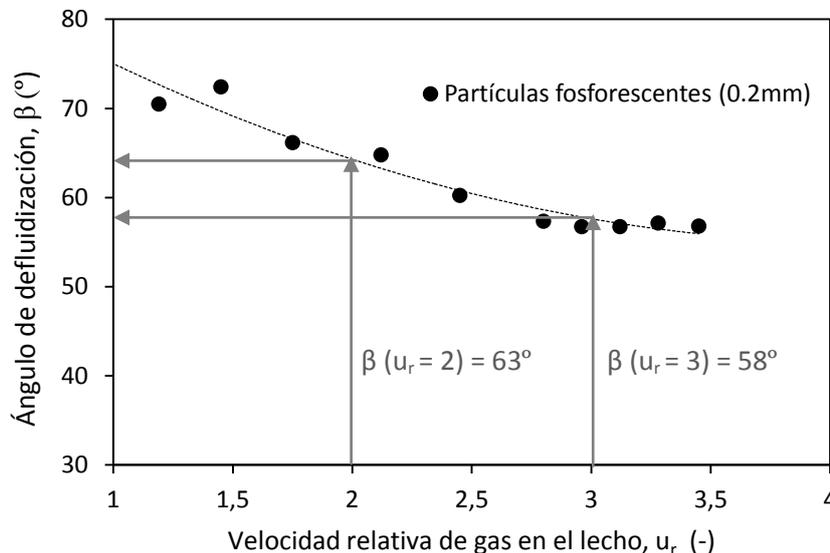


Figura G.2 Variación del ángulo de defluidización con la velocidad relativa de gas en el lecho para partículas fosforescentes tipo A

Según se muestra en la Figura G.2, para velocidades de gas $u_r = 2.0$ se obtiene un ángulo de defluidización experimental, $\beta = 63^\circ$. Esto significa que el modelo matemático propuesto estimaría una misma evolución del tamaño de burbuja para el ensanchamiento en el rango de

ángulos de transición, $\alpha = [0^\circ - 60^\circ]$, ya que $\beta > \alpha$ en este caso. Esta predicción coincide con la evidencia experimental de la Figura G.1.a para la zona del ensanchamiento del lecho.

A una velocidad de fluidización mayor, $u_r = 3.0$, se obtiene un $\beta = 58^\circ$. Esto implica que el tamaño de burbuja predicho por el modelo para una geometría de RLFDZ-CS, $\alpha = 60^\circ$ en la región de ensanchamiento sería ligeramente superior al estimado utilizando geometrías con cambios de sección más bruscos ($\alpha < 58^\circ$). Esta tendencia es la mostrada por los resultados experimentales de la Figura G.1.b.

Por otro lado, las Figuras G.1.a y G.1.b confirman que para geometrías con ángulo de transición suave, $\alpha \geq 80^\circ$, la reducción del tamaño de burbuja en el ensanchamiento es menor. El uso de cambios de sección suaves minimiza la contracción de las burbujas de gas por lo que favorece la circulación de partículas entre las dos zonas del lecho. Además, minimiza el riesgo de aparición de regiones defluidizadas en la zona de transición. Sin embargo, en un régimen de reacción catalítica, las grandes burbujas de gas podrían dificultar el contacto gas-sólido y favorecer la llegada del agente oxidante a la zona superior del lecho, situación indeseada.

Por tanto, aunque los ángulos de transición suaves favorecen la fluidodinámica de los RLFDZ-CS, el elevado tamaño de las burbujas en la zona de transición podría tener implicaciones negativas en la actividad catalítica.

G.2 Limitaciones del modelo MW + J en condiciones de fluidización extremas.

En el presente trabajo se denomina “modelo MW + J” al modelo matemático propuesto, producto de la consideración conjunta de la correlación de Mori y Wen para describir la evolución de d_b en las zonas de sección constante del lecho y del modelo de flujo propuesto que tiene en cuenta el cambio de sección y la alimentación de gas adicional en un RLFDZ-CS.

Este modelo ha sido utilizado para predecir el perfil axial de d_b en función de variables de operación del sistema: ángulo de cambio de sección, velocidad relativa de gas en cada zona del lecho o ángulo de defluidización o posición vertical del distribuidor de gas secundario. En prácticamente todos los casos analizados, la predicción del tamaño de burbuja promedio a lo largo del lecho ha sido satisfactoria. Sin embargo, existen condiciones de fluidización en las que el modelo sobreestima el d_b obtenido experimentalmente. Estas condiciones se corresponden con la fluidización incipiente y régimen de ‘slug’.

La fluidización incipiente es aquella a la cual comienzan a aparecer burbujas de gas en el lecho. Si bien una de las características de las partículas tipo B en la clasificación de Geldart es que el burbujeo comienza al mismo tiempo que la fluidización ($u_{mb} = u_{mf}$), se ha comprobado para las partículas fluidizadas en este estudio que, experimentalmente, el burbujeo aparece una vez rebasada u_{mf} . Esto implica que el exceso de gas sobre el de mínima fluidización no se corresponde necesariamente con el caudal de gas en las burbujas y, por tanto, la correlación de Mori y Wen sobreestima los d_b experimentales de la región inferior del lecho en condiciones próximas a la mínima fluidización (Figura G.3.a). Además, al ser el d_b máximo de la zona de regeneración inferior al d_b mínimo de la zona de reacción, no tiene lugar una

contracción experimental de burbujas en el ensanchamiento tan brusca como la que predice el modelo. Por tanto, en Figura G.3.a, el modelo sí predice cualitativamente que el perfil axial de d_b es prácticamente idéntico para geometrías con cambio de sección brusco ($\alpha = [0^\circ - 60^\circ]$), ya que $\beta (u_r = 1.5) \approx 70^\circ$, pero no es capaz de predecir cuantitativamente la evolución de dichos perfiles.

Si, por el contrario, el caudal de gas introducido al lecho es muy grande y las burbujas de gas alcanzan un tamaño tal que llegan a ocupar la sección transversal del lecho (régimen de 'slugging') el modelo también tiende a sobreestimar los d_b experimentales. Este efecto es debido, probablemente, a que el modelo no considera el efecto de las paredes laterales sobre el crecimiento de las burbujas como 'slugs' (Figura G.3.b).

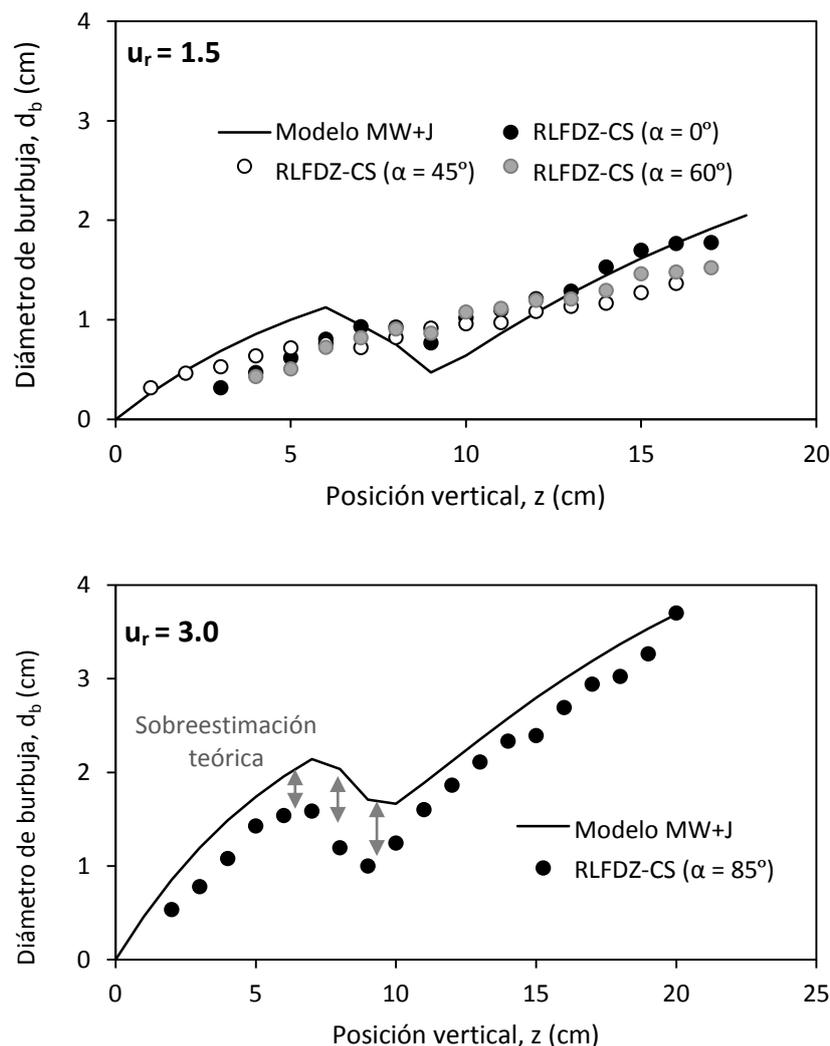


Figura G.3 Comparativa entre perfiles axiales de d_b promedio experimental y modelado para partículas fosforescentes tipo A en distintos RLFZ-CS. a) Fluidización incipiente ($u_r = 1.5$), b) 'Slugging' ($u_r = 3.0$)

En cualquier caso, las condiciones a las que se pretende operar en el reactor están alejadas de los regímenes de fluidización incipiente y 'slugging' por lo que el modelo es suficientemente robusto para describir el comportamiento hidrodinámico de un RLFZ-CS.