

Título de la Tesis: “Estudio de reactores monolíticos autotérmicos para la generación primaria de calor”

Doctorado en Ingeniería Química

Autor: López, Eduardo

Director: Dr. Daniel O. Borio

Resumen

La presente Tesis presenta resultados vinculados al diseño y operación de un combustor catalítico para la generación de calor a escala doméstica. Como combustible se ha seleccionado gas natural y para la combustión del mismo se han utilizado catalizadores de Pd dispersos sobre un washcoat de $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ y un monolito cerámico de cordierita. Se ha impuesto como condición de diseño que el combustor catalítico opere en ausencia total de llama, aún para el precalentamiento de la mezcla reactiva. Por esta razón los estudios se han centrado en el diseño y simulación de reactores autotérmicos.

En esta tesis, en primer lugar, se presenta y discute el modelo matemático utilizado para representar el comportamiento del reactor monolítico en estado estacionario. Se validan las diferentes hipótesis asumidas y se discute la relevancia de las resistencias internas y externas al transporte de masa y energía. Se realiza un análisis de sensibilidad paramétrica. Además, se presenta un modelo dinámico del reactor.

El modelo matemático en estado estacionario del reactor es utilizado para explorar diferentes alternativas para la operación autotérmica del combustor catalítico. Se analizan tres diseños autotérmicos: un reactor con flujo reversible, un sistema integrado reactor-intercambiador de calor y un reactor con reciclo. Se selecciona la mejor alternativa y se realizan estudios adicionales para evaluar la performance estacionaria y dinámica del sistema autotérmico seleccionado.

Con el objetivo de contar con un catalizador propio para la combustión de metano se llevan a cabo tareas experimentales de preparación y caracterización de un catalizador monolítico de Pd. Se realizan experimentos tendientes a la obtención de los parámetros cinéticos de dos expresiones comunmente reportadas en la bibliografía.

Se desarrolla un modelo riguroso del reactor en estado no estacionario para determinar cómo influyen distintas perturbaciones sobre los fenómenos de difusión-reacción en el washcoat y en el soporte. Se evalúa la capacidad predictiva de varias expresiones de bibliografía para el cálculo aproximado del factor de efectividad.

Por último, se estudia la influencia de la expresión cinética sobre el diseño y la performance de un combustor catalítico autotérmico. Se obtiene un criterio conservativo que se utiliza, junto con otros resultados obtenidos en la Tesis, para realizar un re-diseño del reactor monolítico autotérmico para la generación primaria de calor a escala doméstica.

Título de la Tesis: “Estudio de reactores monolíticos autotérmicos para la generación primaria de calor”

Doctorado en Ingeniería Química

Autor: López, Eduardo

Director: Dr. Daniel O. Borio

Abstract

This Thesis presents results regarding the design and operation of a catalytic combustor for domestic-scale heat generation. Natural gas has been selected as fuel, to be combusted using a Pd catalyst, dispersed on a $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ washcoated cordierite monolith. A flameless operation has been imposed as a design constraint for the catalytic combustor, even for the feed stream preheating. Therefore, studies were focused on the design and simulation of autothermal reactors.

Mathematical models, used to represent the steady and non-steady-state behavior of the monolithic reactor are presented. Different hypothesis assumed in the development of the mathematical models are validated and the importance of external and internal heat and mass transfer limitations is analyzed. Besides, a parametric sensitivity study is performed.

Different alternatives for the autothermal operation of the catalytic combustor are studied using the steady-state mathematical model of the monolith reactor. Three designs are analyzed: a reverse-flow reactor, a reactor with external heat exchanger and a recycle reactor. The best option is selected and additional studies are conducted to evaluate the steady and non-steady-state performance of the selected autothermal unit.

Aiming to obtain a laboratory catalyst for methane combustion, experimental work regarding the preparation and characterization of a Pd monolithic catalyst is carried out. Acquired experimental data are used to fit the parameters of two types of kinetic expressions for methane combustion usually reported in bibliography.

A dynamic rigorous mathematical model for the monolith reactor is developed to evaluate the influence of different perturbations over the diffusion-reaction phenomena in the washcoat and support. The predictive ability of three approximated expressions reported in the bibliography to calculate the effectiveness factor is evaluated.

The influence of the used kinetic expression in the design and operation of an autothermal catalytic combustor is studied. A conservative criterion is obtained which is utilized, in addition to other results obtained in this Thesis, to perform the re-design of the autothermal monolith reactor for domestic-scale heat generation.