1 Einleitung und Aufgabenstellung

Bei vielen verfahrenstechnischen Grundoperationen besitzen Reaktionen in flüssigen Mehrphasensystemen große Bedeutung. In einer kontinuierlichen Flüssigphase befinden sich dabei abhängig vom durchgeführten Prozeß unterschiedliche disperse Phasen, die miteinander oder mit Flüssigkeitskomponenten reagieren. Die dispersen Phasen können ebenfalls in flüssiger Form (Emulsion), in fester Form, z. B. als Katalysator, oder gasförmig vorliegen.

Für den optimalen Reaktionsverlauf ist die Vermischung der beteiligten Reaktionskomponenten entscheidend. Um einen ausreichenden Stofftransport zur Aufrechterhaltung der Reaktion und gleichzeitig die Vermischung der Komponenten zu gewährleisten, wurden bisher zahlreiche unterschiedliche Mehrphasenreaktoren entwickelt. Die modellmäßige Beschreibung solcher Reaktoren beruht in der Regel auf empirischen Untersuchungen integraler, für die Auslegung wichtiger Parameter wie z. B. Stoff- oder Wärmeübergangsgrößen.

Neben den mechanisch gerührten Reaktoren, die die wichtigste Gruppe in der Verfahrenstechnik darstellen, sind pneumatisch gerührte Säulenreaktoren weit verbreitet, die besonders bei Reaktionen eingesetzt werden, die einen hohen Bedarf einer über die Gasphase zugeführten Reaktionskomponente aufweisen. Der einfachste pneumatisch gerührte Reaktor ist die Blasensäule ohne Einbauten, die als ein von unten begastes vertikales Rohr zu beschreiben ist. Wegen der einfachen Bauweise und Führung der Stoffströme in dem kontinuierlich oder absatzweise betreibbaren Reaktor, wird er in zahlreichen Prozessen eingesetzt. Entsprechend groß ist auch die Zahl der in der Literatur beschriebenen Untersuchungen, die sich mit den Strömungsverhältnissen, dem Vermischungsverhalten und den Phasengehalten in der Blasensäule beschäftigen [16, 23, 101]. Ziel dieser Arbeiten ist in der Regel eine Modellbildung anhand experimentell bestimmter Parameter, mit der Aussagen über den Reaktionsverlauf oder die Bestimmung von Auslegungsgrößen ermöglicht werden. Am häufigsten wurden zwei- und dreiphasige Systeme mit wäßriger Flüssigphase, einer Gasphase und einer festen Phase untersucht, da sie die wichtigsten industriellen Anwendungen darstellen [23].

Während mit den bisher vorgestellten Modellen zur Reaktorbeschreibung im wesentlichen integrale Parameter ermittelt werden können, gewinnt die Erfassung lokaler Phänomene in Blasensäulen zunehmend an Bedeutung. Sie können zur Verifikation von Ergebnissen numerischer Simulationsrechnungen herangezogen werden, die auf Modellen zur Beschreibung der Strömungsverhältnisse und Phasenverteilungen basieren [88, 105, 107].

Zur Messung von Strömungsgeschwindigkeiten der einzelnen Phasen wie auch zur Erfassung von Blasengrößen stehen bereits zahlreiche Meßsysteme zur Verfügung, deren Einsatz allerdings häufig durch den Volumengehalt der dispersen Phasen begrenzt wird [25, 30, 43]. Auch zur Bestimmung von Phasengehalten in Zwei- und Dreiphasenströmungen sind viele Untersuchungen durchgeführt worden. Zu unterscheiden ist einerseits zwischen nichtinvasiven und invasiven und andererseits zwischen integral mittelnden und lokalen Meßmethoden [2, 10, 30, 36, 53, 54, 55, 68, 69, 70, 71, 79, 81, 86, 109, 122, 123, 124, 125, 127], wobei besonders für die systematische Messung lokaler Feststoffgehalte nur wenige Arbeiten bekannt sind. Besonders nichtinvasive Meßmethoden sind durch einen extrem hohen Aufwand bezüglich des meßtechnischen Aufbaus und der rechnerischen Auswertung der ermittelten Daten gekennzeichnet. Zudem ist die Anwendbarkeit dieser Meßverfahren für lokale Messungen in der Regel stark begrenzt durch die Größe der Phasengehalte [30, 122, 123, 124] oder durch eine Mittelwertbildung über den vermessenen Querschnitt [43, 103].

Der Aufbau der Sonden und die rechnerische Auswertung der Meßsignale ist bei invasiven Meßverfahren in der Regel weniger komplex. Bei einer Vernachlässigung der Störung der Strömungsverhältnisse durch die Sonden, lassen sich lokale Phasengehalte von Zwei- und Dreiphasensystemen im Reaktor bestimmen. Die lokale Auflösung der Messung ist dabei lediglich durch die Größe der Meßsonden und durch die Möglichkeiten zur Einbringung der Sonden in den Reaktor begrenzt. Allerdings sind in der Literatur nur sehr wenige Arbeiten zu finden, in denen bei hohen Gas- und Feststoffgehalten erfolgreich lokale Phasenanteile bestimmt werden konnten [70, 71, 81, 86].

Dennoch sind in zwei- und insbesondere dreiphasig betriebenen Blasensäulen bisher noch keine systematischen Messungen der Phasenverteilung mit hoher lokaler Auflösung durchgeführt worden. Ebenso sind in der Literatur keine Arbeiten zu finden, in denen eine systematische Variation von Betriebs- und Systemparametern durchgeführt wurde, um deren Auswirkungen auf die lokale Phasenverteilung der dispersen Phasen beschreiben zu können.

Als erster Schwerpunkt sollen im Rahmen dieser Arbeit basierend auf umfangreichen Literaturstudien Meßverfahren ausgewählt werden, mit denen die Entwicklung eines Meßsystems zur Bestimmung lokaler Phasengehalte in Mehrphasenströmungen ermöglicht wird. Ziel ist dabei zunächst die Einsetzbarkeit des Meßsystems in einem Modellsystem mit für technische Anwendungen relevanten volumetrischen Gas- und Feststoffgehalten bis 30 % oder darüber. Nach Abschluß dieser Entwicklung sind Untersuchungen über eine Erweiterung der Einsatzgebiete des Verfahrens durchzuführen, um nicht nur Messungen in Modell- sondern auch in Realsystemen zu ermöglichen.

Als zweiter Schwerpunkt soll das Meßverfahren bei verfahrenstechnischen Untersuchungen in einem zwei- und dreiphasig betriebenen Blasensäulenreaktor im halbtechnischen Maßstab eingesetzt werden. Dabei sind mit hoher lokaler Auflösung die Phasengehalte bei Variation der Gasleerrohrgeschwindigkeit, des Begasungssystems und der Feststoffeigenschaften bezüglich Volumenbeladung und Dichte zu bestimmen. Die ermittelten integralen und lokalen Phänomene sind anhand der bisher in der Literatur veröffentlichten Meßergebnisse und beschreibenden Modellgrößen zu deuten. Dabei ist zu diskutieren, inwieweit die ermittelten Meßergebnisse mit Literaturdaten übereinstimmen, von ihnen abweichen oder mit entsprechenden Modellansätzen zu erklären sind.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Fluiddynamik in Blasensäulenreaktoren im Zwei- und Dreiphasenbetrieb

Beim Aufstieg von Blasen in einer Flüssigkeit wird die durch die Gasphase eingetragene kinetische und potentielle Energie auf die Flüssigkeit übertragen, die durch die aufsteigenden Blasen nach oben transportiert wird. Aus Kontinuitätsgründen gibt es in der Blasensäule nicht nur Bereiche, in denen Flüssigkeit nach oben strömt, sondern auch Abströmbereiche, so daß sich ausgeprägte Zirkulationsströmungen ausbilden.

2.1.1 Strömungsbereiche

Wesentlich für die Beschreibung des Betriebs einer Blasensäule ist zunächst die axiale Einteilung des Reaktors in eine Begasungs-, eine Gleichgewichts- und eine Entgasungszone sowie die Unterscheidung zwischen dem homogenen und heterogenen Strömungszustand [16, 61, 70].

Die Begasungszone ist gekennzeichnet durch die Blasenbildungsprozesse am Begaser, Koaleszenz- und Dispergiervorgänge. Die Größe dieser Zone ist abhängig von der Geometrie des Begasers, das heißt von der Loch- bzw. Düsengröße und der damit verbundenen Eintrittsgeschwindigkeit der Gasphase und der Primärblasengröße. An der oberen Grenze dieses Bereichs hat sich ein Gleichgewicht zwischen Koaleszenz- und Dispergiervorgängen und damit eine stabile Blasengröße eingestellt, die sich in der Gleichgewichtszone nur noch unwesentlich durch die Abnahme des hydrostatischen Drucks verändert. Am oberen Ende der Flüssigkeitssäule, der Entgasungszone, treten die Gasblasen aus und zerplatzen, so daß sehr große Turbulenzintensitäten und große lokale Strömungsgeschwindigkeiten auftreten.

Anhand der Blasengröße, deren Strömung und der daraus resultierenden Flüssigkeitsturbulenz wird der Strömungszustand in einer Blasensäule als homogen, heterogen oder als Kolbenströmung bezeichnet [16]. Da die Kolbenströmung, die durch Bildung von Groß- und Kolbenblasen durch den Wandschubspannungseinfluß gekennzeichnet ist, nur als Sonderfall in Reaktoren mit geringem Durchmesser auftritt, wird sie hier nicht weiter behandelt.

Bei geringen Gasbelastungen kann sich eine homogene Strömung einstellen, bei der eine sehr enge Blasengrößenverteilung vorliegt. Die Einzelblasen steigen relativ unbeeinflußt voneinander auf und es liegt kein großer Einfluß der Flüssigkeitsströmung auf die Blasenbewegung vor, was am relativ geradlinigen Aufstieg der Blasen erkennbar ist.

Bei einer Erhöhung der Gasbelastung bis zu einem kritischen Punkt erfolgt der Umschlag zur heterogenen Strömung, die durch starke Zirkulationsströmungen innerhalb der Flüssigkeit gekennzeichnet ist. Durch die Bildung von Blasenagglomeraten und Großblasen sowie durch Redispergiervorgänge kommt es zu einer breiteren Blasengrößenverteilung. Aufgrund der rotierenden Großblasen und der ausgeprägten Wirbelströmung, die in der Flüssigkeit zu einer verstärkten Turbulenz führen, wird dieser Zustand auch als *churn turbulent* bezeichnet [29]. Der Umschlagspunkt zwischen beiden Zuständen ist abhängig von den Stoffeigenschaften des Mehrphasensystems sowie von den Geometrieparametern des Reaktors wie Durchmesser, Begaserform und Füllhöhe. Die Angaben in der Literatur sind daher nicht einheitlich [29, 70, 71, 101, 117]. Es lassen sich aber allgemein Tendenzen formulieren, die vor allem auf der Beobachtung des integralen Gasgehalts (Gleichung 2.7) in Abhängigkeit von der Gasleerrohrgeschwindigkeit

$$u_{G,0} = \frac{4 \cdot V_G}{\pi \cdot d_{B,1}^2}$$
(2.1)

basieren, die in Bild 2.1 dargestellt ist.





Sowohl im homogenen wie auch im heterogenen Betriebsbereich nimmt der integrale Gasgehalt beinahe linear mit der Gasleerrohrgeschwindigkeit zu, allerdings ist die Zunahme im heterogenen Bereich deutlich geringer. Der kritische Übergangsbereich ist durch eine deutliche Krümmung der Kurven gekennzeichnet. Die hier teilweise auftretenden Maxima erklärt Linneweber [70] mit der Abnahme der Blasenaufstiegsgeschwindigkeit durch eine Behinderung der Blasen untereinander bei einer erhöhten Blasendichte im Schwarm. Durch diesen Bremseffekt steigt der Gesamtgasgehalt überproportional an, bevor sich Großblasen und Blasenagglomerate bilden, durch deren schnelleren Aufstieg der Gasgehalt dann wieder abnimmt. Bei koaleszenzfördernden Medien stellt sich der heterogene Betriebszustand früher ein, da sich schneller Großblasen bilden können. Mit Zunahme des Begaserlochdurchmessers oder bei speziellen Begasergeometrien kann die Bildung einer homogenen Strömung auch unterdrückt werden.

2.1.2 Gas- und Flüssigkeitsströmung

Zur Beschreibung der Gas- und Flüssigkeitsströmung in Blasensäulen wurden zahlreiche Untersuchungen durchgeführt und fluiddynamische Modelle entwickelt, deren Zielgrößen vor allem charakteristische Phasengeschwindigkeiten und -verteilungsparameter sind. Im folgenden werden von den zahlreichen Ansätzen nur die Modelle ausgewählt, die bei der Erklärung der experimentell ermittelten Ergebnisse dieser Arbeit verwendet werden.

Hills [36] sowie Ueyama und Miyauchi [118] entwickelten ein Zirkulationsströmungsmodell, das von der Vorstellung ausgeht, daß die radiale Verteilung der Gasphase die treibende Kraft der Flüssigkeitszirkulation in der Blasensäule ist. Wesentliche Grundannahmen sind die Radialsymmetrie sowie die Kontinuitätsbedingung der Flüssigphasenströmung (integrale Massenbilanz). Wesentliche Modellgröße ist die turbulente kinematische Viskosität v_t. Sie stellt eine radiale Impulsaustauschgröße zwischen Fluidelementen dar, die den durch den radialen Gasgehaltsgradienten wirkenden Zirkulationskräften entgegenwirkt. Riquarts [93, 94] verwendet diese Größe, die trotz formaler Ähnlichkeit zur kinematischen Viskosität nicht als Stoffwert zu verstehen ist, als einen den Strömungszustand beschreibenden Modellparameter. Während Ueyama und Miyauchi [118] eine lokal invariante turbulente Viskosität postulieren, die allein vom Reaktordurchmesser abhängig ist, beschreibt Menzel [76] eine Abhängigkeit vom Gasgehalt und von der Flüssigkeitsgeschwindigkeit, das heißt auch von der Axial- und Radialkoordinate. Mürtz [81] überträgt das Zirkulationsströmungsmodell auf dreiphasig betriebene Blasensäulen und führt die turbulente Suspensionsviskosität v_{t. Sus} ein.

Als wesentliche gemeinsame Ergebnisse dieser verschiedenen Ansätze sind die parabolischen Geschwindigkeitsprofile der flüssigen Phase sowie ebenfalls parabolische Gasgehaltsprofile zu nennen, deren Maximalwerte sich jeweils im Reaktorzentrum befinden.

Die Flüssigkeitsströmung ist, wie in **Bild 2.2** dargestellt, durch ein zentrales Aufströmen im Bereich der größten Gasgehalte und Abströmen in Wandnähe bzw. im Bereich der geringsten Gasgehalte gekennzeichnet.



Bild 2.2: Prinzipdarstellung des radialen Flüssigphasengeschwindigkeitsprofils nach dem Zirkulationsströmungsmodell [118]

Joshi und Sharma [44] sowie Zehner [130] entwickelten Strömungsmodelle, die anhand stationärer Wirbel- bzw. Zirkulationsströmungen die Strömung der Flüssig- und Gasphase sowie verschiedene fluiddynamische Phänomene in der Blasensäule erklären. **Bild 2.3** zeigt das Zirkulationszellenmodell nach Joshi und Sharma [44], bei dem sich übereinander angeordnete Zirkulationszellen im Reaktor ausbilden, deren Höhe etwa dem Reaktordurchmesser entspricht. Durch diese Anordnung lassen sich die zentrale Aufströmung der Gas- und Flüssigphase sowie die Abströmbereiche in Wandnähe erklären.



<u>Bild 2.3:</u> Zirkulationszellenmodell nach Joshi und Sharma [44] ohne (links) bzw. mit (rechts) Wechselwirkungen zwischen benachbarten Zellen

Dabei ist zwischen der mittleren Zirkulationsgeschwindigkeit der Flüssigphase im Zweiphasensystem

$$u_{L, Z} = 1.31 \cdot \sqrt[3]{g \cdot d_{R, I}} \cdot \left(u_{G, 0} - \frac{\varepsilon_{G, Int}}{1 - \varepsilon_{G, Int}} \cdot u_{L, 0} - \varepsilon_{G, Int} \cdot u_{B, \infty} \right),$$
(2.2)

der mittleren Geschwindigkeit auf der Reaktorachse

$$u_{L, ax} = 1,18 \cdot \sqrt[3]{g \cdot d_{R,I}} \cdot \left(u_{G,0} - \frac{\varepsilon_{G,Int}}{1 - \varepsilon_{G,Int}} \cdot u_{L,0} - \varepsilon_{G,Int} \cdot u_{B,\infty} \right)$$
(2.3)

und der mittleren Zirkulationsgeschwindigkeit der Flüssigphase im Dreiphasensystem

$$u_{L,Z} = 1,31 \cdot \sqrt[3]{g \cdot d_{R,1}} \cdot \left(u_{G,0} + u_{L,0} - \frac{\rho_L \cdot u_{L,0}}{\rho_{S/L}} - \varepsilon_{S,Int} \cdot u_{S,Sed} \cdot \left(\frac{\rho_S}{\rho_{S/L}} - 1 \right) - \varepsilon_{G,Int} \cdot u_{B,\infty} \right)$$
(2.4)

 $\text{mit} \ \rho_{\text{S/L}} = \epsilon_{\text{S,Int}} \cdot \rho_{\text{S}} + \epsilon_{\text{L,Int}} \cdot \rho_{\text{L}}$

zu unterscheiden [44].

Da sich die übereinander angeordneten Zellen des Zirkulationszellenmodells durch entgegengesetzte Strömungsrichtungen in der Horizontalen behindern würden, wurde von Zehner [130] ein erweitertes Strömungsmodell entwickelt (**Bild 2.4**), das die Strömung der Flüssigphase durch übereinander angeordnete Walzenwirbelpaare beschreibt, die kreuzweise gegeneinander versetzt sind.



Bild 2.4: Walzenwirbelmodell nach Zehner [130]

Nach einer Vereinfachung der Strömungsverhältnisse, bei der die Flüssigkeitsbewegung auf horizontale und vertikale Strömungen reduziert wird, vereinfacht sich auch deren mathematische Beschreibung. Die Blasenströmung läßt sich halbempirisch durch eine Überlagerung der Flüssigkeitszirkulationsgeschwindigkeit

$$u_{L,Z} = \sqrt[3]{\frac{1}{\zeta} \cdot \frac{\rho_L - \rho_G}{\rho_L} \cdot g \cdot d_{R,1} \cdot u_{G,0}} \qquad \text{mit } \zeta = 2,5$$
(2.5)

mit der mittleren Aufstiegsgeschwindigkeit der Gasblasen

$$u_{B,\infty} = 1.41 \cdot \sqrt[4]{\frac{g \cdot \sigma_L}{\rho_L} \cdot \frac{\rho_L - \rho_G}{\rho_L}}$$
(2.6)

erfassen [62, 130, 131]. Die Zirkulationsbewegung der Flüssigphase basiert auf einem Mammutpumpen-Effekt, der durch die alternierende Fluidströmung zwischen zwei parallel angeordneten Wirbelpaaren verursacht wird, die zwischen diesen einen Gasgehaltsunterschied und damit eine hydrostatische Druckdifferenz erzeugt.

Die in den genannten Strömungsmodellen beschriebenen parabolischen Geschwindigkeitsprofile der Flüssigphase wurden in zahlreichen experimentellen Untersuchungen bestätigt (z. B. [25, 36, 84]). Franz et al. [25] finden mit ansteigender Gasleerrohrgeschwindigkeit steiler werdende Profile, jedoch nur eine geringe Zunahme der Steilheit der Profile mit der Axialkoordinate. Dies bedeutet, daß die Größe der zentralen Aufströmzone (Blasenstraße), der wandnahen Abströmzone und des Übergangsbereichs mit verstärkt auftretenden Turbulenzwirbeln (Wirbelstraße) über der gesamten Reaktorhöhe nahezu konstant bleibt.

2.1.3 Definitionen und Modelle zur Beschreibung und Berechnung der Phasengehalte

2.1.3.1 Integraler Gas- und Feststoffgehalt

Als beschreibende Parameter für den Betriebszustand einer Blasensäule können der auf das Betriebsvolumen bezogene integrale Gasgehalt

$$\varepsilon_{G,Int} = \frac{V_{G,Ges}}{V_{Ges}} \qquad \text{mit } V_{Ges} = V_{G,Ges} + V_{L,Ges} + V_{S,Ges} \qquad (2.7)$$

sowie die Feststoffvolumenbeladung des Reaktors

$$\varepsilon_{S,Bel} = \frac{V_{S,Ges}}{V_{L,Ges} + V_{S,Ges}}$$
(2.8)

herangezogen werden. Letztere bezieht sich auf das Reaktorfüllvolumen vor Beginn der Begasung.

Die Berechnung des integralen Gasgehalts basiert in der Regel auf empirischen Korrelationen, die Betriebsparameter, Stoffeigenschaften und Strömungsverhältnisse berücksichtigen. Aus experimentellen Untersuchungen werden dann Koeffizienten abgeleitet, mit denen die Korrelationen an die Versuchsergebnisse angepaßt werden.

Den einfachen Potenzansatz

$$\varepsilon_{G,Int} = a_{G,Int} \cdot u_{G,0}^{D_{G,Int}}$$
(2.9)

verwendet Sommer [106] in leicht abgewandelter Form zur Beschreibung des Zusammenhangs zwischen der Gasleerrohrgeschwindigkeit und dem integralen Gasgehalt in Mehrphasenreaktoren, indem er die Koeffizienten $a_{G, int}$ und $b_{G, int}$ an die physikalischen Eigenschaften des Dreiphasensystems und den sich ausbildenden Strömungszustand im Reaktor anpaßt. Zehner [131] ermittelt den integralen Gasgehalt

$$\varepsilon_{G,Int} = \frac{\frac{u_{G,0}}{u_{B,\infty}}}{\sqrt{1 + 4 \cdot \left(\frac{u_{G,0}}{u_{B,\infty}}\right)^{2/3} \cdot \frac{u_{L,Z}}{u_{B,\infty}}}}$$
(2.10)

rechnerisch mit den aus seinem Walzenwirbelmodell abgeleiteten Strömungsgrößen. Bei zahlreichen weiteren Berechnungsansätzen werden neben der Gasleerrohrgeschwindigkeit Stoffgrößen wie die Fluiddichte, die Viskosität, die Oberflächenspannung sowie die Reaktorgeometrie in empirische Korrelationen eingebunden (z. B. [1, 37, 77]).

Auch speziell für Dreiphasensysteme wurden solche Korrelationen entwickelt, die neben den oben genannten Betriebsparametern und Stoffgrößen Feststoffeinflußgrößen wie die Feststoffbeladung, die Partikelgröße, die Dichte sowie die in Abschnitt 2.1.4.4 definierte Suspensionsdichte und -viskosität beinhalten (z. B. [74, 77, 81, 102, 108]). Springmann et al. [108] berechnen für ein koaleszierendes System, wie es auch in dieser Arbeit vorliegt, den integralen Gasgehalt in Abhängigkeit von der Gasleerrohrgeschwindigkeit und von der Suspensionsviskosität (Gleichung 2.32):

$$\varepsilon_{G,\text{Int}} = 0,0378 \cdot u_{G,0}^{0,42} \cdot \eta_{Sus}^{-0,37}.$$
(2.11)

Ergänzend zur Feststoffbeladung, die auf den Reaktorzustand ohne Begasung bezogen ist, kann auch ein integraler Feststoffgehalt

$$\varepsilon_{\rm S, \, Int} = \frac{V_{\rm S, \, Ges}}{V_{\rm Ges}} \tag{2.12}$$

definiert werden, der auf das sich im Betrieb einstellende gesamte Dispersionsvolumen bezogen ist (vgl. Gleichung 2.7).

2.1.3.2 Lokale Gas- und Feststoffgehalte

Die Bestimmung lokaler Phasenanteile in Mehrphasenströmungen ist wesentlich komplizierter als die Ermittlung der integralen Betriebsparameter. Der lokale Gasgehalt

$$\varepsilon_{\rm G} = \frac{V_{\rm G}}{V_{\rm G} + V_{\rm L} + V_{\rm S}},\tag{2.13}$$

der lokale Feststoffgehalt

$$\varepsilon_{\rm S} = \frac{V_{\rm S}}{V_{\rm G} + V_{\rm L} + V_{\rm S}} \tag{2.14}$$

sowie der lokale Flüssigkeitsanteil

$$\varepsilon_{\rm L} = \frac{V_{\rm L}}{V_{\rm G} + V_{\rm L} + V_{\rm S}} \tag{2.15}$$

erfüllen in der Addition die Kontinuitätsbedingung:

 $\varepsilon_{\rm G} + \varepsilon_{\rm S} + \varepsilon_{\rm L} = 1. \tag{2.16}$

Während für Zweiphasensysteme zur Erfassung von lokalen Gas- bzw. Feststoffgehalten in Flüssigkeitsströmungen zahlreiche Untersuchungen durchgeführt und veröffentlicht wurden, ist die Beschreibung lokaler Phänomene in Dreiphasensystemen nur vereinzelt in der Literatur zu finden. Dies ist einerseits damit zu begründen, daß viele Meßverfahren, die erfolgreich in Zweiphasensystemen eingesetzt wurden (z. B. Nadelsonden), durch die zweite disperse Phase gestört werden [10]. Andererseits ist in vielen Fällen die Erfassung der Phasenanteile durch die Meßtechnik beschränkt, die nur eine Mittelung über relativ große Reaktorabschnitte zuläßt oder nur bei geringen Dispersphasengehalten einsetzbar ist (z. B. [30, 54, 55, 103, 122, 123, 124]). Entsprechend gering ist auch die Zahl der Modelle, die sich mit der Beschreibung lokaler Phänomene befassen. Abgeleitet aus der reaktionstechnischen Beschreibung von Konzentrationsprofilen in nichtidealen Einphasenströmungen durch Rohre [15], reduziert das für Blasensäulen angewendete axiale Dispersionsmodell in der auf die Phasenanteile i beschränkten Form

$$\frac{\partial \varepsilon_i}{\partial t} = \mathsf{D}_{\mathsf{ax},i} \cdot \frac{\partial^2 \varepsilon_i}{\partial \mathsf{h}^2} - \mathsf{u}_{i,0} \cdot \frac{\partial \varepsilon_i}{\partial \mathsf{h}}$$
(2.17)

die dreidimensionale Strömung auf eine eindimensionale Axialströmung. Es können folglich nur

jeweils über eine Reaktorebene gemittelte Werte berechnet werden. Die Strömung bzw. die Verteilung einer Phase wird dabei durch einen konvektiven Anteil unter Einfluß einer überlagerten Strömungsgeschwindigkeit sowie durch einen statistischen Anteil beschrieben, der durch die Dispersion erfaßt wird. Wesentlicher Modellparameter ist der analog zum 2. Fick´schen Gesetz der molekularen Diffusion definierte axiale Dispersionskoeffizient D_{ax, i} der einzelnen Phasen, der jeweils die Abweichung vom idealen Strömungsverhalten durch statistische Vorgänge für den gesamten Reaktor beschreibt.

Bei diesem Modell handelt es sich um einen rein empirisch übertragenen Ansatz, dessen Aussagekraft in vielen Arbeiten bestritten wird (z. B. [19, 40, 94]). Als wesentliche Probleme sind die fehlende Berücksichtigung lokaler Strömungseffekte durch die integrale Betrachtung der Geschwindigkeiten der einzelnen Phasen und die Anpassung der Dispersionskoeffizienten an die experimentell ermittelten Phasenanteile anzusehen. Bei kontinuierlichem Betrieb wird dabei für die Gasphase die Gasleerrohrgeschwindigkeit eingesetzt, für die Flüssigphase die überlagerte Fluidleerrohrgeschwindigkeit, während für den Feststoff eine Differenz zwischen Flüssigkeitsströmung und Sedimentationsgeschwindigkeit der Partikel (Gleichung 2.24) zu berechnen ist. Im Batch-Betrieb, wie er im Rahmen dieser Arbeit vorliegt, ist allerdings nur für die Gasphase eine überlagerte Strömungsgeschwindigkeit vorhanden, die Strömung der Flüssigkeit sowie die Partikelbewegung erfolgt durch rein dispersive Vorgänge. Bei allen Phasengeschwindigkeiten werden die bereits beschriebene Ausbildung von Zirkulationsströmungen sowie die axiale und radiale Varianz der Strömungsgeschwindigkeiten der Flüssig- und Gasphase vernachlässigt. Dennoch werden in zahlreichen Untersuchungen mit dem sogenannten Sedimentations-Dispersionsmodell erfolgreich die axiale Feststoffverteilung bzw. die Dispersionskoeffizienten für alle drei Phasen beschrieben (z. B. [24, 41, 42, 47, 49, 54, 73, 80, 85, 104, 115]).

Um die radial stark variierenden Konzentrations- und Geschwindigkeitsprofile berücksichtigen zu können, wurde das eindimensionale Dispersionsmodell durch die Einführung eines zweiten Dispersionsparameters erweitert, der die statistischen Strömungseffekte in radialer Richtung beschreibt [90, 110]. Dabei ist zu beachten, daß der effektive axiale Dispersionskoeffizient im zweidimensionalen Modell eine andere Bedeutung hat als im eindimensionalen axialen Dispersionsmodell und nicht mit den hier ermittelten empirischen Korrelationen abgeschätzt werden kann [101]. Kölbel et al. [60] sowie Langemann und Taubert [64] führen außerdem die in späteren Untersuchungen z. B. von Ueyama und Miyauchi [118] oder Riquarts [93] nachgewiesenen radialen Geschwindigkeitsprofile der Phasen ein. Durch eine Auswertung der differentiellen Massenbilanz

$$\frac{\partial \varepsilon_{i}}{\partial t} = \mathsf{D}_{\mathsf{ax},i} \cdot \frac{\partial^{2} \varepsilon_{i}}{\partial \mathsf{h}^{2}} - \mathsf{u}_{i} \cdot \frac{\partial \varepsilon_{i}}{\partial \mathsf{h}} + \frac{1}{\mathsf{r}} \cdot \mathsf{D}_{\mathsf{rad},i} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathsf{r}} \cdot \left(\mathsf{r} \cdot \frac{\partial \varepsilon_{i}}{\partial \mathsf{r}}\right)$$
(2.18)

wird das eindimensionale Dispersionsmodell auf ein Zylinderkoordinatensystem erweitert. Mit diesem Ansatz wird der dreidimensionale Blasensäulenreaktor unter der Annahme, daß alle Profile rotationssymmetrisch sind, auf ein zweidimensionales Modell reduziert.

Im Rahmen der betrachteten Zylinderkoordinaten kann die Modellbetrachtung diversifiziert werden, wenn sämtliche veränderliche Größen berücksichtigt werden. Hier sind die lokalen Geschwindigkeiten und Volumenanteile der Phasen zu nennen, die mit der axialen und der radialen Koordinate variieren [25, 70, 81]. Eine entsprechende örtliche Varianz setzen Taubert [110], Reuß [91] und Molzahn [79] auch bei der Erfassung der Dispersionskoeffizienten voraus, da die