

1 Einleitung

Mehrphasige Strömungen in Blasensäulen sind in der Verfahrenstechnik von großer Bedeutung. Dabei wird Gas in Form von Blasen mit einer kontinuierlichen flüssigen Phase in Kontakt gebracht. In der Flüssigkeit können zusätzlich katalytisch wirksame Partikel oder Mikroorganismen suspendiert sein. Fast immer findet dabei eine chemische oder biologische Umsetzung statt [49]. Typische Beispiele für den Einsatz von Blasensäulenreaktoren sind die Fermentation oder die heterogene Katalyse.

Die Strömungsverhältnisse sind maßgeblich für die optimale Leistungsfähigkeit der ablaufenden Prozesse. Die Strömungsvorgänge beeinflussen den Energieverbrauch, die Ausbeute und die Selektivität von Reaktoren. Bei der Auslegung oder Optimierung von Blasensäulenreaktoren wird häufig auf empirische Korrelationen zurückgegriffen. Diese weisen allerdings eine mangelnde Übertragbarkeit auf, wenn deren Gültigkeitsbereich verlassen wird. Viele Reaktoren werden häufig nach dem „Trial and Error“ Prinzip ausgelegt. Zur Auslegung neuer Reaktoren oder Prozesse sowie zur Verfahrensoptimierung sind daher experimentelle Untersuchungen in Verbindung mit geeigneten theoretischen Modellansätzen erforderlich. Die numerische Strömungssimulation (CFD – Computational Fluid Dynamics) ist eine moderne Methode, um die Strömungsverhältnisse zu optimieren. Die notwendigen Experimente können somit gezielt durchgeführt und auf ein Minimum reduziert werden.

Die experimentellen Untersuchungen einer zwei- und dreiphasig betriebenen Blasensäule im Technikumsmaßstab lieferten lokal aufgelöste Messwerte der Phasengehalte [22] und der Flüssigkeitgeschwindigkeiten [68]. Diese Daten sind die Voraussetzung, um numerische Strömungssimulationen zu validieren. Die Zielsetzung dieser Arbeit besteht darin, mehrphasige Strömungsvorgänge in Blasensäulen unter praxisrelevanten Betriebsbedingungen mittels der numerischen Strömungssimulation zu berechnen.

Die Turbulenzmodelle, die zur Berechnung der turbulenten Strömungsgrößen der kontinuierlichen flüssigen Phase bei mehrphasigen Strömungen eingesetzt werden, sind anfänglich für einphasige Strömungen entwickelt worden [94, 105]. Die in mehrphasigen Strömungen enthaltenen Blasen und Partikel beeinflussen jedoch die Turbulenz der flüssigen Phase [13, 72, 83, 102]. Neben der Wahl eines geeigneten Turbulenzmodells schien zudem die Frage von besonderem Interesse, inwieweit die dispersen Phasen die Turbulenz beeinflussen und ob diese Effekte bei der Modellierung der Turbulenz berücksichtigt werden müssen.

Um bei der Berechnung von Blasensäulen realistische Ergebnisse für die Gasgehalte zu erreichen, werden Schwarmeffekte berücksichtigt. Häufig werden dazu einfache Modelle verwendet, die mit zunehmendem Gasgehalt entweder zu einer Reduzierung oder zu einer Zunahme der Aufstiegsgeschwindigkeit der Blasen führen [36, 38, 50, 57, 85]. Mit derartigen einfachen Modellansätzen werden die integralen sowie die lokalen Gasgehalte im Übergangsbereich von der homogenen zur heterogenen Blasenströmung nur unbefriedigend wiedergegeben. Ziel der Untersuchungen ist es daher, zu prüfen ob ein modifiziertes Modell zur Beschreibung der Schwarmeffekte [90] in Blasensäulen geeignet ist. In dieser Arbeit wird dieser Ansatz erstmals in einem CFD-Modell zur Korrektur des Widerstandsbeiwerts eingesetzt. Dadurch sind die Ergebnisse entscheidend verbessert worden.

Die Berechnung der Bewegung zwischen einer dispersen und einer kontinuierlichen Phase lassen sich im Zweiphasensystem mit den bekannten Widerstandsgesetzen gut beschreiben. Dagegen stellen Dreiphasenströmungen insbesondere hinsichtlich der Turbulenz- und Impulsaustauschmodellierung noch ein weitgehend unerforschtes Gebiet dar. Werden dreiphasige Strömungen berechnet, sind die Wechselwirkungen weitaus komplizierter, als wenn nur eine flüssige und eine gasförmige Phase betrachtet werden. Neben der Wechselwirkung zwischen der flüssigen und der festen Phase sind zudem auch Wechselwirkungen zwischen den beiden dispersen Phasen – Gas und Feststoff – zu berücksichtigen [68, 81, 109].

Um diese Wechselwirkungen aufzuklären, werden Simulationen für sehr kleine Berechnungsgebiete von wenigen Kubikzentimetern durchgeführt [61, 62, 109]. Die in diesen Arbeiten verwendeten Berechnungsansätze zielen allerdings nicht darauf ab, gesamte Reaktorsysteme zu berechnen. In anderen Arbeiten wird die Annahme getroffen, dass der Feststoff und die kontinuierliche Phase als eine Sus-

pension betrachtet werden [10, 31, 39, 65]. Der Feststoff ist dann ein die Eigenschaft der Flüssigkeit beeinflussender Bestandteil. Die Bewegungsgleichungen für die feste Phase werden nicht gelöst. Der Nachteil dieser Methode liegt darin, dass die berechneten Feststoffverteilungen keine gute Übereinstimmung mit entsprechenden Messdaten aufweisen. Zudem gehen Informationen über die Geschwindigkeit und den Phasenanteil der festen Phase verloren, so dass sich weitere Wechselwirkungen des Feststoffs mit anderen Phasen nicht implementieren lassen. Wird der Feststoff als zusätzliche Phase berechnet [68, 71, 81], können entsprechende Wechselwirkungen berücksichtigt und die Phasenverteilung berechnet werden. In den meisten Arbeiten werden die Ergebnisse jedoch nur teilweise oder gar nicht mit Messwerten verglichen.

Im Rahmen dieser Arbeit wird der Feststoff als weitere disperse Phase neben der Gasphase berechnet und es werden direkte Wechselwirkungen zwischen den Feststoffpartikeln und den Gasblasen implementiert. Erstmals werden relevante Einflussgrößen wie lokaler Gas- und Feststoffgehalt, Schwarmeffekte und der Einfluss der dispersen Phasen auf die Turbulenz der flüssigen Phase in einem Modell zusammengefasst und bewertet. Die Simulationen werden für eine Blasensäule im Technikumsmaßstab unter praxisrelevanten Betriebsbedingungen durchgeführt. Die Ergebnisse für die Geschwindigkeit der Flüssigkeit und die lokalen Phasengehalte sowohl für zweiphasige als auch für dreiphasige Strömungen werden mit örtlich aufgelösten experimentellen Daten verglichen. Können diese Parameter mit guter Qualität von dem Modell berechnet werden, ist dies die Grundlage für weiterführende Berechnungen, die Stofftransport und Reaktionen enthalten können.

2 Stand des Wissens

2.1 Mehrphasenströmungen in Blasensäulenreaktoren

Blasensäulenreaktoren werden häufig in der Verfahrenstechnik eingesetzt. Sie ermöglichen trotz ihrer einfachen Bauweise und bei vergleichbar geringem Energieeintrag einen guten Stoff- und Wärmeaustausch zwischen einer kontinuierlichen flüssigen Phase und einer dispersen Gasphase. Sie sind zudem in der Lage eine dritte feste Phase zu fluidisieren und ebenfalls mit der flüssigen Phase reagieren zu lassen. Um optimale Austauschbedingungen zwischen den Phasen zu erreichen, sollte die Phasengrenzfläche sowie die Turbulenz möglichst groß sein [16]. Diese wird im Wesentlichen vom Energieeintrag und der Reaktorgeometrie beeinflusst. Der Energieeintrag erfolgt meist durch die Zugabe der Gasphase an einem statischen Dispergierorgan. Statt vom Energieeintrag wird häufig auch von der Gasleerrohrgeschwindigkeit $u_{G,0}$ gesprochen. In Abhängigkeit von der zugeführten Gasmenge können sich im Wesentlichen zwei Strömungszustände einstellen: Die homogene und die heterogene Blasenströmung.

2.1.1 Strömungszustände

In Abhängigkeit von dem Begaser, der Reaktorgeometrie, den physikalischen Eigenschaften des Mehrphasensystems und der Gasleerrohrgeschwindigkeit bilden sich verschiedene Strömungszustände aus. Bei geringem Gasdurchsatz liegt eine enge Blasengrößenverteilung vor und die Blasenauftiegs geschwindigkeit ist einheitlich. Dieser Strömungszustand wird als homogene Blasenströmung bezeichnet [97]. Die Einzelblasen steigen relativ unbeeinflusst voneinander auf und es kommt nur zu geringen radialen Vermischungen.

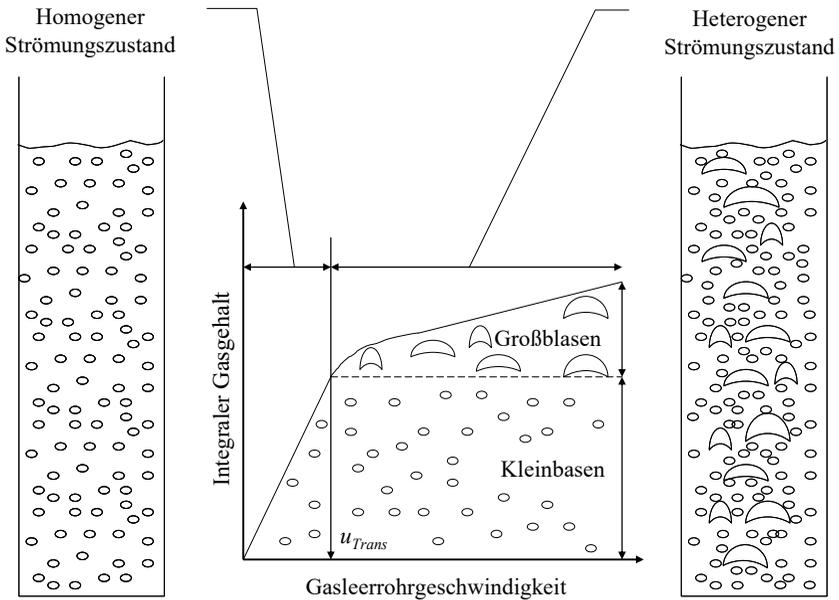


Abbildung 2-1: Strömungszustände von Blasensäulen: Abhängigkeit des integralen Gasgehalts von der Gasleerrohrgeschwindigkeit

Ab einer kritischen Gasleerrohrgeschwindigkeit kommt es durch die Bildung von Blasenagglomeraten und Großblasen, die mit erhöhter Geschwindigkeit aufsteigen, sowie durch Blasenzerfall zu einer breiten Blasengrößenverteilung. Innerhalb der Flüssigkeit bilden sich großräumige Strömungsstrukturen aus, die zu einer starken radialen Vermischung führen. Diese Blasenströmung wird heterogen genannt [51]. In **Abbildung 2-1** sind schematisch die Auswirkungen des homogenen und des heterogenen Strömungszustands auf den integralen Gasgehalt dargestellt.

Im homogenen Strömungszustand ist der integrale Gasgehalt linear abhängig von der Gasleerrohrgeschwindigkeit. Ab der kritischen Gasleerrohrgeschwindigkeit u_{Trans} nimmt die Steigung ab, was auf die Ausbildung des heterogenen Strömungszustandes schließen lässt. Großblasen und Blasenagglomerate steigen mit höheren Geschwindigkeiten auf, so dass der integrale Gasgehalt mit zunehmender Gasleerrohrgeschwindigkeit nicht so stark zunimmt wie im homogenen Strömungszustand. Wird der integrale Gasgehalt gegen die Gasleerrohrgeschwindigkeit aufge-

tragen, lässt sich daraus sehr gut bestimmen, welcher Strömungszustand vorliegt und welchen Wert die kritische Gasleerrohrgeschwindigkeit annimmt. Unter bestimmten Voraussetzungen tritt der homogene Strömungszustand nicht auf, so dass auch bei niedrigen Gasleerrohrgeschwindigkeiten der heterogene Strömungszustand vorliegt. Dies ist zum Beispiel bei hohen Viskositäten der flüssigen Phase oder bei Anwesenheit einer dritten festen Phase der Fall [16].

Die Blasensäule kann in axialer Richtung in eine Begasungs-, eine Gleichgewichts- und eine Entgasungszone eingeteilt werden [23]. In der Begasungszone kommt es zu Blasenbildung am Begasungssystem und ist durch Koaleszenz sowie Dispergierung der Blasen geprägt. Die Größe der Blasen, die sich bilden (Primärblasengröße), wird durch die Loch- oder Düsengröße des Begasungssystems und der daraus resultierenden Gaseintrittsgeschwindigkeit der Gasphase, der lokalen Energiedissipationsrate und durch oberflächenaktive Substanzen beeinflusst [20]. An der oberen Grenze der Begasungszone hat sich ein Gleichgewicht zwischen Koaleszenz- und Dispergiervorgängen und damit eine stabile Blasengrößenverteilung eingestellt. In der Entgasungszone treten die Blasen an der Flüssigkeitsoberfläche aus und zerplatzen. Dabei kommt es zu großen lokalen Strömungsgeschwindigkeiten und entsprechenden hohen Intensitäten der Turbulenz [8].

2.1.2 Einfluss des Feststoffs auf eine Blasenströmung

Wird in einer Blasensäule Feststoff fluidisiert, sind die Wechselwirkungen weitaus komplizierter, als wenn nur eine flüssige und eine gasförmige Phase vorhanden sind. Wie die dritte feste Phase die Fluidodynamik in der Blasensäule beeinflusst kann sehr unterschiedlich sein. Die auftretenden Effekte hängen von verschiedenen Parametern des Feststoffs wie Durchmesser, Form und Dichte sowie integriertem und lokalem Feststoffgehalt ab. Aber auch die eingestellte Gasleerrohrgeschwindigkeit und die Eigenschaften der gasförmigen Phase beeinflussen wiederum die Verteilung des Feststoffs [42].

Die Strömungsgeschwindigkeiten verändern sich durch die Anwesenheit einer dritten Phase. Ist die Dichte der festen Phase größer als die der kontinuierlichen flüssigen Phasen, wirkt der Feststoff sich durch einen „Bremseffekt“ auf die Bewegung der flüssigen Phase aus, da Energie aufgewendet werden muss, um den Feststoff anzuheben. Die Strömungsgeschwindigkeit der flüssigen Phase verrin-

gert sich. Nimmt der integrale Feststoffgehalt oder der Dichteunterschied zwischen der flüssigen und der festen Phase zu, wird dieser Effekt verstärkt [74].

Es kommt sowohl zu direkten als auch zu indirekten Wechselwirkungen zwischen den dispersen Phasen. Eine Kollision zwischen festen Partikeln und Blasen sind direkte Wechselwirkungen. Dies kann entweder zu einem elastischem Stoß, einer Deformation der Blasenoberfläche oder zu einer Zerteilung der Blase führen [22]. Von größerer Bedeutung für die Fluidodynamik sind in der Regel die indirekten Wechselwirkungen, mit denen der Feststoff auf die Strömungen von Gas und Flüssigkeit einwirkt [106].

Sehr kleine Blasen können infolge elektrochemischer Wechselwirkungen an Partikel angelagert werden und führen dadurch zu Flotationseffekten [26]. Sehr kleine Partikel im Mikrometermaßstab können sich an der Phasengrenzfläche zwischen Blasen und Flüssigkeit anlagern, so dass die Blasen stabilisiert werden. Die daraus resultierende Hemmung der Koaleszenz erhöht den integralen Gasgehalt [47]. Sehr kleine Partikel können sich auch im Nachlaufgebiet von Blasen anreichern, wodurch sich die Aufstiegsgeschwindigkeit dieser Blasen verringert. Auch dieser Effekt führt zu einer Erhöhung des integralen Gasgehalts.

Im Gegensatz dazu wird häufig beobachtet, dass durch die Anwesenheit von Feststoff in einer Blasensäule der integrale Gasgehalt abnimmt [22, 60, 61, 100, 101]. Der Feststoff führt hier zu einer größeren mittleren Blasengröße. Die größeren Blasen steigen mit einer höheren Geschwindigkeit auf. Somit ist eine koaleszenzfördernde Wirkung des Feststoffs zu unterstellen. Allerdings wird in anderen Arbeiten von einer gleichzeitigen Abnahme des Anteils der Großblasen berichtet [60, 92], was auf eine Zerteilung von Großblasen hindeutet. Gemessene Größenverteilungen zeigen eine homogene Glockenverteilung. Daher sollte in diesem Zusammenhang nicht von Koaleszenz und Zerteilung, sondern von einer Verschiebung zu größeren oder kleineren Gleichgewichtsblasen gesprochen werden [89]. Der Feststoff führt auf der einen Seite durch Koaleszenz zu einer Abnahme der kleineren Blasen [100]. Auf der anderen Seite können sich auch keine Großblasen ausbilden, wie es bei dem heterogenen Strömungszustand der Fall ist. Das Blasenpektrum wird zu einer mittleren Blasengröße verschoben. Ob die Feststoffpartikel zu Koaleszenz oder Zerfall der Blasen führen, wird in der Arbeit von Zhang [110] auf die Größe der Feststoffpartikel zurückgeführt. Der bei zweiphasigen Systemen

zu beobachtende homogene oder heterogene Strömungszustand ist dementsprechend bei dreiphasigen Strömungen häufig nicht zu unterscheiden.

Die Anwesenheit von Feststoff kann sowohl zu einer Intensivierung als auch zu einer Dämpfung der Turbulenz der flüssigen Phase führen (siehe Abschnitt 2.3.4.2). Der flüssigseitige Stoffübergangskoeffizient ist von der Turbulenz der flüssigen Phase abhängig [30, 93]. Eine erhöhte Turbulenz verbessert den Stoffübergang, was in der Regel erwünscht ist. Auch die sich einstellende Blasengrößenverteilung ist unter anderem von der Turbulenz der flüssigen Phase abhängig [59, 70]. Die Aufstiegsgeschwindigkeit der Gasblasen und somit auch der integrale Gasgehalt werden maßgeblich durch die Blasengröße bestimmt [25]. Die veränderte Blasengröße und Strömungsgeschwindigkeit wirken wiederum auf die Turbulenz ein. Diese Ausführungen verdeutlichen, wie unterschiedlich und komplex sich der Feststoff auf eine mehrphasige Strömung in Blasensäulen auswirken kann.

2.2 Modellierung

Zur Auslegung und Optimierung von Reaktoren oder Prozessen in der Verfahrenstechnik werden mehr oder weniger komplizierte Modelle verwendet. Ein mathematisches Modell versucht die in der Natur auftretenden Effekte zu beschreiben und somit eine Berechnung zu ermöglichen. Im Idealfall lassen sich alle Parameter berücksichtigen und der Prozess könnte ohne ein einziges Experiment berechnet und die optimalen Betriebsbedingungen eingestellt werden. Die Realität sieht anders aus, da in der Regel nicht alle Einflussparameter bekannt sind oder nicht beschrieben werden können. So werden immer noch viele Prozesse nach dem „Trial and Error“ Prinzip ausgelegt.

Die Modelle sollen helfen, die Anzahl der Versuche zu verringern, um möglichst schnell und kostengünstig zu einem optimalen Prozess oder Reaktor zu gelangen. Zum einen gibt es zahlreiche empirische und semi-empirische Modelle zur Auslegung von Reaktoren mit mehrphasigen Strömungen. Zum anderen wird die numerische Strömungssimulation bzw. Computational Fluid Dynamics (CFD), die ihren Ursprung in der Luft- und Raumfahrttechnik hat, aufgrund der zunehmenden Re-

chenkapazität und Leistungsfähigkeit der Computer immer interessanter für verfahrenstechnische Anwendungen.

2.2.1 Empirische Modelle

Empirische und semi-empirische Modelle basieren auf Modellvorstellungen und Anpassungsparametern, die aus Experimenten gewonnen werden. Diese oft einfachen und unkomplizierten Modelle erlauben meist nur die Berechnung einzelner Größen, wie z.B. den integralen Gasgehalt oder die axiale Flüssigkeitgeschwindigkeit. Meist gelten diese Korrelationen nur für einen bestimmten Reaktortyp und einen entsprechend eingeschränkten Parameterbereich. Daher ist bei der Verwendung entsprechender Modelle auf deren Gültigkeitsbereich zu achten. Diese Modelle liefern innerhalb ihres Gültigkeitsbereichs oft sehr gute Ergebnisse, allerdings ist eine Extrapolation über den Gültigkeitsbereich hinaus häufig mit großen Fehlern behaftet. Da empirische Modelle in der Regel auf einer breiten Datenbasis angelegt sind und somit auf einer Vielzahl von Experimenten basieren, eignen sie sich ebenfalls zur Validierung von numerischen Strömungssimulationen. Es lassen sich somit Trends wie z.B. der Einfluss des Durchmessers einer Blasensäule auf die mittlere Geschwindigkeit überprüfen [52].

Zur Berechnung der axialen Flüssigkeitgeschwindigkeit in Blasensäulenreaktoren ohne Anwesenheit einer dritten festen Phase stehen zahlreiche Korrelationen zur Verfügung. Riquarts [86] entwickelte eine Beziehung zur Berechnung der maximalen axialen Flüssigkeitgeschwindigkeit von zweiphasigen Strömungen in Blasensäulen. Die Korrelation ist mit Hilfe von Literaturdaten entwickelt worden und beinhaltet Daten aus Säulen mit einem Durchmesser von bis zu 0.6 m und einer Gasleerrohrgeschwindigkeit von bis zu 1.4 m s^{-1} .

$$u_{L,ax} = 0.21 \cdot \sqrt{D \cdot g} \left(\frac{u_{G,0}^3 \rho_L}{\mu_L g} \right)^{\frac{1}{8}} \quad (2-1)$$

Unter der Annahme, dass die Wirbelgröße dem Durchmesser der Säule entspricht, leitete Zehner die folgende Korrelation her, wobei ein Parameter durch Experimente und Literaturwerte angepasst wurde [107].

$$u_{L,ax} = \sqrt[3]{\frac{1}{2.5} \left(\frac{\rho_L - \rho_G}{\rho_L} \right) \cdot g \cdot D \cdot u_{G,0}} \quad (2-2)$$

In Blasensäulen können schon bei niedrigen Gasleerrohrgeschwindigkeiten großräumige Zirkulationsströmungen entstehen. Eine Modellvorstellung geht davon aus, dass sich in der Blasensäule übereinander geschichtete Wirbel befinden, die zu Rückvermischungen führen. Diese Modelle werden als Zirkulationszellenmodelle bezeichnet, wobei Wechselwirkungen zwischen den benachbarten Zellen möglich sind [14, 43, 108]. Der Durchmesser einer Zelle entspricht dem Durchmesser der Blasensäule und kann als der größte Wirbel in der Säule betrachtet werden [44]. Einige Modelle besitzen als Modellparameter die turbulente Viskosität, die den durch den turbulenten Strömungszustand in Blasensäulen auftretenden zusätzlichen Impulsaustausch berücksichtigt. Dieser Modellparameter kann zur Berechnung der axialen Flüssigkeitgeschwindigkeit oder eines Dispersionskoeffizienten verwendet werden [27, 86].

Als weitere Modelltypen zur Bestimmung von Geschwindigkeitsverteilungen und Phasengehalten stehen Dispersionsmodelle zur Verfügung. Dabei handelt es sich um Differenzialgleichungen, die den Transport durch Konvektion und Dispersion beschreiben. Bei der Dispersion handelt es sich um einen zur Diffusion analogen Transportvorgang von stochastischer Natur. Es existieren sowohl eindimensionale als auch zweidimensionale Dispersionsmodelle. Eindimensionale Dispersionsmodelle ermitteln die in axialer Richtung auftretenden Veränderungen innerhalb einer Blasensäule, können allerdings die auftretenden radialen Effekte nicht berücksichtigen. Mit einem zweidimensionalen Dispersionsmodell können sowohl axiale als auch radiale Unterschiede, die in einer Blasensäule vorkommen, berechnet werden. Eindimensionale Dispersionsmodelle eignen sich z.B. zur Beschreibung von Airlift-Schlaufenreaktoren [64]. Der zu berechnende Reaktor wird in mehrere Abschnitte eingeteilt und dann abschnittsweise berechnet.

Auch bei dem Kaskadenmodell wird der Reaktor in mehrere Segmente unterteilt, wobei davon ausgegangen wird, dass jedes Segment ideal durchmischt ist. Die numerische Strömungssimulation (CFD) stellt im Prinzip eine konsequente Fortsetzung der Modellierung mit Segmenten (Kompartimente) dar [91].