

Prof. Dr.-Ing. Georg Fieg
TU Hamburg-Harburg
Prozess- und Anlagentechnik

Theoretische und experimentelle Untersuchungen des instationären Verhaltens von thermischen Trennprozessen

Sommersemester 2008

Dipl.-Ing. Konstantin Jonas
Fraunhofer Institut für Verkehrs- und
Infrastruktursysteme IVI, Dresden

In-situ Alterungsdiagnose und belastungsunabhängige Lebensdauerprognose von Polymer-Elektrolyt-Brennstoffzellensystemen

Werner Baierlein
LINDE-KCA-DRESDEN GmbH,
Dresden

CO₂ – Entfernung aus Rauchgasen
- Ein Beitrag des Anlagenbaus zum Umweltschutz -

4 Aktuelle Forschung

4.1 Wärme- und Stoffübertragung

4.1.1 Untersuchung von dispersen Stoffsystemen in Mikrokomponenten (Dipl.-Ing. Katharina Jasch)

Wärmeübergang und Fluidodynamik in Mikrokanälen sind im letzten Jahrzehnt bereits sehr intensiv im Hinblick auf neue bzw. erweiterte Modelle sowohl experimentell als auch theoretisch untersucht worden. Nichtsdestotrotz herrscht gegenwärtig keine Übereinstimmung über Modellvorstellungen zur eindeutigen Beschreibung und Vorhersage des fluidodynamischen und thermodynamischen Verhaltens in Mikrokanälen. Es besteht lediglich Einigkeit darüber, dass die sog. Skaleneffekte, wie Einlaufeffekte, Temperaturabhängigkeit der Stoffwerte, Wärmeleitungseffekte, Dissipation oder Effekte bedingt durch Oberflächenbeschaffenheiten in Mikrosystemen berücksichtigt werden müssen, anders als in Makrokanälen, wo diese Eigenschaften meist vernachlässigt werden können. Viele Studien auf dem Gebiet der Mikrofluidik befassen sich mit einphasigen flüssigen und gasförmigen Stoffsystemen, aber auch mit mehrphasigen, hier insbesondere zweiphasigen Gas/flüssig- oder flüssig/flüssig-Systemen. Strömungen mit partikulären Bestandteilen wurden dahingegen aufgrund der erhöhten Verblockungs- bzw. Verstopfungsgefahr der mikroskaligen Prozesskomponenten bislang kaum untersucht. In diesem Forschungsprojekt wird deshalb der Einfluss von Oberflächenstrukturierungen auf die Fluidodynamik und den Wärmeübergang in ein- und schwerpunktmäßig in zweiphasigen partikulären Stoffsystemen experimentell und mittels numerischer Strömungssimulation untersucht.

Bei dem mehrphasigen Stoffsystem handelt es sich um eine Suspension bestehend aus einer wässrigen kontinuierlichen Phase und darin dispergierten Lipidnanopartikeln. Diese Lipidpartikel fungieren als Wirkstoffträgersysteme in pharmazeutischen Produkten und können selbst Agglomerate bestehend aus Primärpartikeln, wie z.B. Pigmente oder Proteine, enthalten oder an der Oberfläche adsorbiert haben. Von makroskopischen Kanälen mit aufgerauten Oberflächen ist bekannt, dass die Rauheiten in turbulenten Strömungen eine Verbesserung des konvektiven Wärmeübergangs durch die Störung der viskosen Unterschicht bewirken können. Bei laminarer Strömung hingegen konnten diese Effekte nicht festgestellt werden. Da in Kanälen mit sehr kleinen oder flachen Querschnitten nur schwer voll turbulente Strömungen erzeugt werden können, entsteht die Frage, ob trotz laminarer Strömungsverhältnisse in Mikrokanälen ebenfalls ein solcher Effekt, wie er in Makrokanälen mit Rauheiten zu beobachten ist, auftritt und messtechnisch erfasst werden kann.

Zu diesem Zweck wurde eine Versuchsapparatur mit einem Strömungskanal aufgebaut, der in der Höhe lediglich wenige hundert Mikrometer groß und dessen beheizbare Unterseite variabel austauschbar ist, damit verschiedene Oberflächenstrukturierungen untersucht werden können. Die folgende Abbildung zeigt den schematischen Versuchsaufbau:

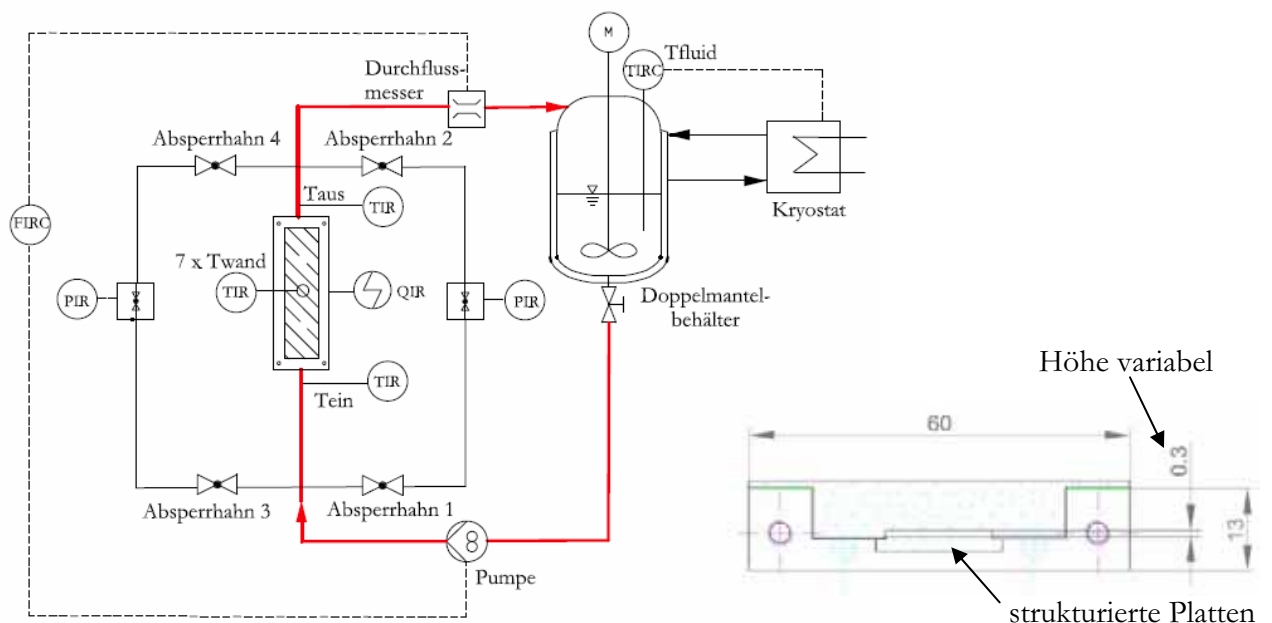


Abb. 4.1: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus

Das im Vorlagebehälter temperierte Fluid wird über eine Mikrozahnringpumpe durch den Testkanal im Kreis gefördert. Zur globalen Bilanzierung werden die Fluidtemperaturen am Ein- und Ausgang des Kanals sowie die Wandtemperaturen in der Mitte des Kanals direkt unterhalb der beheizten strukturierten Platte in Strömungsrichtung gemessen. Die Beheizung des Kanals erfolgt über eine im unteren Teil der Mikrokanalkonstruktion installierte elektrische Heizpatrone. Zur

Quantifizierung des Strömungsverlusts bedingt durch die Strukturierungen der Oberfläche wird der Druckverlust über der Messstrecke erfasst. Dazu sind auf jeder Seite des Kanals zwei Druckverlusttransmitter mit unterschiedlichen Messbereichen angeschlossen, die je nach Strömungsgeschwindigkeit über Absperrhähne vom System entkoppelt werden können. Ein zwischen Durchflussmesser und

Tab. 4.1: Versuchsbedingungen für den strukturierten Mikrokanal

Prozessbedingungen	
d_h	200, 300, 500 μm
w	$\leq 0,6 \text{ m/s}$
Re	≤ 600
\dot{q}	$\approx 33.000 \text{ W/m}^2$
$T_{fl.,ein}$	20°C

Pumpe geschalteter Regler soll bei potentiellen Partikelablagerungen aus der Kolloidsuspension einen konstanten Durchfluss während der Messwertaufnahme gewährleisten. Die gegenwärtig realisierbaren Prozessparameter und Betriebsbedingungen sind in Tab. 4.1 zusammengefasst.

Als Strukturierungen werden u.a. Würfel mit Kantenlängen von ca. 100 μm untersucht. Dabei sind die

Oberflächen unterschiedlich mit Strukturen belegt und die Würfel zudem noch unterschiedlich angeordnet. Die folgende Abbildung zeigt zwei verschiedene Varianten und eine vergrößerte Würfelstruktur auf einer Siliziumoberfläche.



Abb. 4.2: Beispiele von Strukturierungen unterschiedlicher Belegung

Die ersten Versuche mit deionisiertem Wasser für eine technisch glatte Oberfläche und für eine strukturierte Oberfläche (6% Belegung) sind in Abb. 4.3 dargestellt.

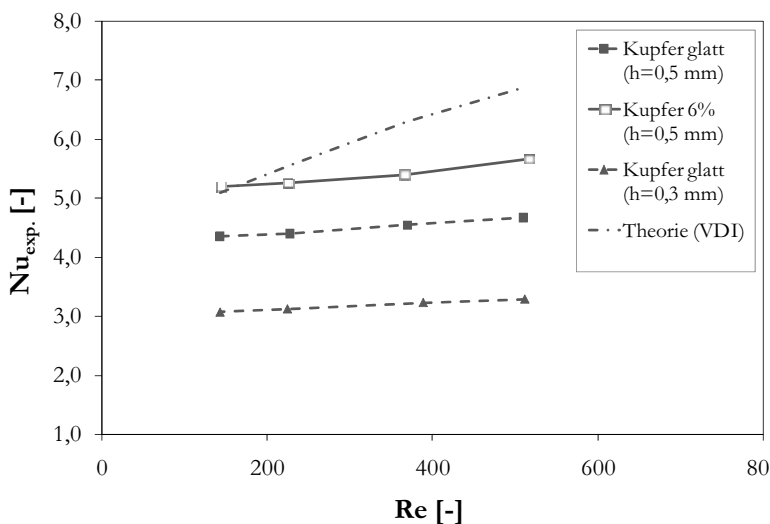


Abb. 4.3: Vergleich Wärmeübergang strukturierte und glatte Oberfläche

Aus Abb. 4.3 wird ersichtlich, dass trotz laminarer Strömungsverhältnisse mit der strukturierten Oberfläche eine Wärmeübergangsverbesserung von ca. 20% erzielt werden kann. Ein Vergleich mit theoretischen Werten für einen glatten Kanal, berechnet nach dem Ansatz einer hydrodynamisch ausgebildeten Laminarströmung und einer konstanten Wärmestromdichte nach dem VDI-Wärmeatlas, zeigt, dass anhand der Theorie der Verlauf der experimentellen Werte sowohl quantitativ als auch qualitativ nicht abgebildet werden kann. Von einer hydrodynamisch ausgebildeten Strömung kann in diesem Fall ausgegangen werden, da die theoretische Einlaufstrecke bei den vorherrschenden Reynolds-Zahlen lediglich 10 mm beträgt und der untersuchte Kanal einen Einlauf von 60 mm aufweist. Bei dem Vergleich mit theoretischen Ansätzen muss darauf geachtet werden, dass derartige Ansätze z. B. Randbedingungen voraussetzen, die in Mikrokanälen möglicherweise durch weitere Randeffekte ergänzt werden müssen. Ein Beispiel dafür ist die in Strömungsrichtung auftretende Temperaturdifferenz im Fluid, die im Mikrokanal wesentlich deutlicher ausgeprägt ist als in Makrokanälen. Aufgrund der laminaren Strömung ist außerdem davon auszugehen, dass in Strömungsrichtung eine nicht vernachlässigbare Wärmeleitung im Fluid aber auch in den Kanalwänden stattfindet, die bei der Berechnung des Wärmeübergangs neben dem konvektiven Anteil berücksichtigt werden muss.

Neben den experimentellen Versuchen sollen die Fluid- und Thermodynamik auch mittels numerischer Simulation nachgebildet werden. Die Simulation ist dabei zum einen ein Werkzeug, mit dem ohne großen experimentellen Aufwand zahlreiche verschiedene Strukturen getestet werden können und letztendlich eine Vorauswahl an Strukturierungen getroffen werden kann, bevor sie aufwendig produziert und in Experimenten eingesetzt werden. Die in Abb. 4.2 gezeigten Würfelstrukturen wurden daraufhin mit dem kommerziellen Softwaretool Gambit erstellt und vergittert und ihre Auswirkung auf eine ein- und mehrphasige Fluidströmung mit dem CFD-Code Fluent berechnet. Da die Rechendauer und –leistung einer CFD-Simulation durch die Gitterzellenanzahl und die Gitterqualität begrenzt sind, ist es nicht möglich, den in den Experimenten verwendeten Mikrokanal in seinem

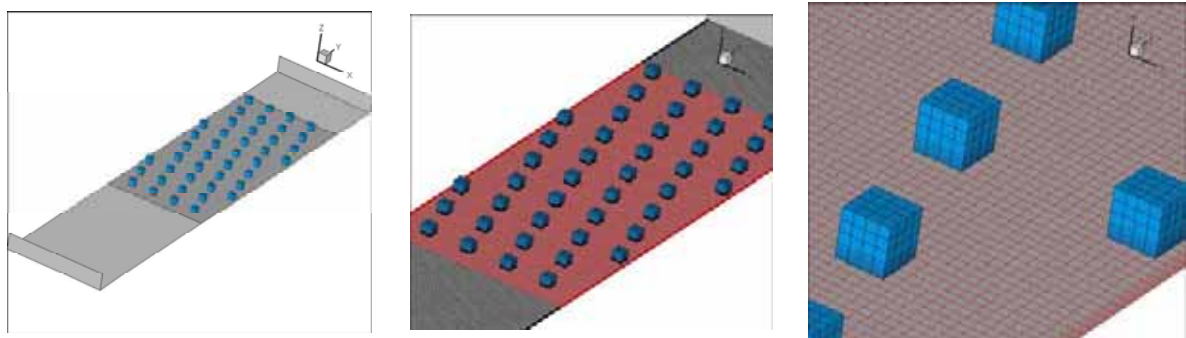


Abb. 4.4: Gesamte Geometrie Modellsystem (links); Vergitterung des Modells und der Würfelstrukturen

realen Längen-zu-Breiten-Verhältnis abzubilden. Dennoch kann anhand des Modellsystems die Fluid- und Thermodynamik qualitativ nachgebildet werden. In den Grafiken in Abb. 4.4 ist ein Beispiel einer Geometrie und des dazugehörigen Rechengitters gezeigt.

Die numerische Berechnung dieses Modells liefert nicht nur globale Ergebnisse für den Wärmeübergang, wie er zur Zeit experimentell bestimmt wird, sondern auch lokale Werte für die Nusselt-Zahl oder andere Parameter. Darüber hinaus ist es möglich, den Verlauf von Strömungslinien über den Strukturen anzeigen zu lassen, so dass daraus bereits eine erste Einschätzung bezüglich der Effektivität der Strukturen gewonnen werden kann. Eine solche Lösung, für die die Strömungslinien über einer strukturierten Oberfläche berechnet wurden, ist in Abb. 4.5 gezeigt.

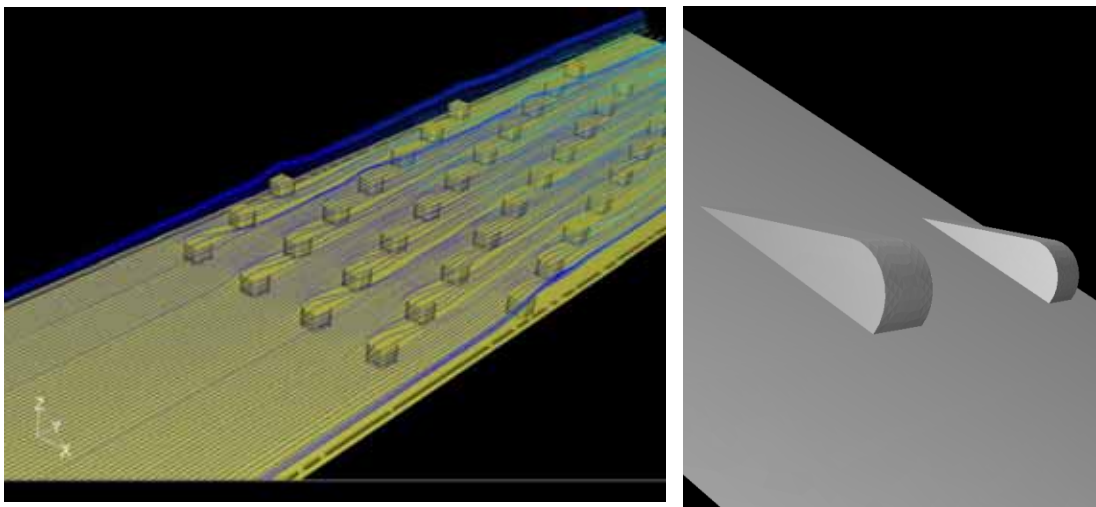


Abb. 4.5: Darstellung von Ribletstrukturen (rechts) und Strömungslinien über Würfelstrukturen (links)

Die numerischen Berechnungen von vier verschiedenen Strukturen mit unterschiedlichen Oberflächenbelegungen (6%, 25%), aber auch verschiedenen Geometrien (Würfel, Riblets) und Anordnungen (6%: um 45° gedrehte Würfel; 25%: in Reihe angeordnete Würfel) haben gezeigt, dass für Reynolds-Zahlen bis $Re = 2600$ mit einer 6%igen Belegung im Vergleich zu den 25%igen Belegungen ein höherer Wärmeübergangskoeffizient erzielt wird. Ein direkter Vergleich der Würfelstrukturen mit den Ribletstrukturen, die in Abb. 4.5 rechts gezeigt sind, ergab über den gesamten Reynolds-Zahlenbereich für die Riblets eine um ca. 4% höhere Nusselt-Zahl. Wie auch bereits bei den experimentellen Ergebnissen festgestellt werden musste, liegen die numerisch ermittelten Werte für die Nusselt-Zahl unterhalb der Theorie, berechnet nach dem VDI-Wärmeatlas. Zudem ergaben die numerischen Berechnungen der strukturierten Oberflächen verglichen mit den Ergebnissen eines glatten Kanals ohne Strukturen, dass lediglich mit den Riblets eine Verbesserung des Wärmeübergangs erzielt werden kann. Während mit den Würfelstrukturen einer 6 %igen Belegung weder eine Verbesserung noch eine Verschlechterung festgestellt werden konnte, bewirkten die Strukturen mit einer

25% igen Belegung nach den numerischen Berechnungen eine deutliche Verschlechterung des Wärmeübergangs.

Bei der Betrachtung der numerischen Ergebnisse muss allerdings erwähnt werden, dass das zunächst verwendete Gitter keine optimale Qualität aufwies, welche jedoch bei neuen gegenwärtigen Berechnungen, deren Ergebnisse noch nicht vollständig vorliegen, stark verbessert werden konnte.

Berechnungen des Mehrphasenmodells wurden bislang lediglich mit dem Euler-Euler Modell durchgeführt, welches die größte Rechenkapazität und den höchsten Zeitaufwand erfordert. Die Ergebnisse unter Verwendung des Mehrphasenmodells bei der Berechnung einer wässrigen Suspension mit festen Nanopartikeln ergab im Vergleich zu der einphasigen Simulation im Hinblick auf den Wärmeübergang keine erfassbaren Unterschiede. Inwieweit das verwendete Modell im Vergleich zu dem Discrete-Phase-Modell, bei dem im Gegensatz zum Euler-Euler Modell eine reale feste Phase berechnet wird, für das untersuchte Stoffsystem geeignet ist, müssen weitere Berechnungen mit dem neuen Gitter zeigen.

Gegenwärtige und zukünftige Arbeiten des Forschungsvorhabens:

a) Experimentell:

- Erweiterung des Strömungsbereichs bis hin zu Reynoldzahlen von $Re = 3000$
- Untersuchungen der lokalen Strömungsbedingungen mittels Mikro Particle Image Velocimetry (μ PIV) in Zusammenarbeit mit der DFG-Forschergruppe „mikroPART“
- Untersuchungen lokaler Temperaturfelder mittels Laser Induzierter Fluoreszenz (LIF) in Zusammenarbeit mit der DFG-Forschergruppe „mikroPART“
- Untersuchungen zum gezielten Abkühlen von Kolloidemulsionen zur Herstellung von Lipidnanopartikeln in strukturierten Mikrokanälen als Alternative zu herkömmlichen Mikrowärmeübertragern (siehe auch Kap. 4.4.3)

b) Numerische Strömungssimulation:

- Überprüfung der Wärmebilanzen und Auswertemethoden
- Validierung der Ergebnisse mit experimentellen Untersuchungen
- Erweiterung und Anpassung der Mehrphasensimulation; Verwendung des Discrete-Phase-Modells
- Vergleich und Validierung der μ PIV Aufnahmen mit Strömungssimulation
- Vorauswahl weiterer Strukturen anhand von einphasigen Berechnungen

4.1.2 Wärmeübertragung an hochviskose Medien

(Dipl.-Ing. Florian Albert)

Die Wärmeübertragung an hochviskose Medien zeigt in der Praxis häufig Abweichungen von dem mit theoretischen Modellen ermittelten Wärmeübertragungsverhalten. Stoffströme mit hohen Prandtl-Zahlen und/oder deutlich ausgeprägten Viskositätsgradienten in Abhängigkeit von der Temperatur treten an vielen Stellen der technischen Praxis auf, in der Erdöl- und Kunststoff- speziell Polymerverarbeitung ebenso wie in biotechnologischen Prozessen. Die einphasige Wärmeübertragung, d.h. Abkühlung oder Aufheizung eines solchen Stromes, stellt dabei ein besonderes Problem dar, da ein starker Viskositätsanstieg mit sinkender Temperatur zu einer Minderung des Wärmetransports führt. In kritischen Fällen kann dies zur Ausbildung einer isolierenden, hochviskosen bis festen Randschicht führen, die eine weitere Wärmeübertragung nahezu vollständig unterbindet. Ziel in diesem Forschungsvorhaben war die Bewertung der existierenden, in ihren Berechnungsergebnissen mitunter stark differierenden Wärmeübergangskorrelationen sowie die Verbesserung bei der Vorausberechnung des Wärmeübergangs.

In der Literatur finden sich verschiedene Ansätze, die bestehenden Berechnungsgrundlagen für den einphasigen Wärmeübergang für niederviskose Stoffsysteme mit konstanten Stoffwerten auf temperaturabhängige Stoffeigenschaften erweitern, siehe Tab. 4.2. *Sieder und Tate* führten hierzu bereits 1936 einen Korrekturterm ein, bestehend aus dem Viskositätsverhältnis zwischen Kern- (bulk) und Wandviskosität und einem empirisch ermittelten Exponenten p . Die Literaturangaben zum Exponenten p variieren je nach Autor und Spektrum der Versuchsfluide jedoch deutlich.

Tab. 4.2 Korrekturansätze zur Berücksichtigung temperaturabhängiger Stoffwerte

$Nu = C^p \cdot Nu_0$	
$C = \frac{\eta_b}{\eta_w}$	
<i>Sieder und Tate</i> (1936)	$p = 0,14$
<i>Hausen</i> (1959)	$p = 0,14$
$C = \frac{Pr_b}{Pr_w}$	
<i>Yakovlev</i> (1957)	$p = 0,11$
<i>Kutateladse</i> (1968)	$p = 0,25$
<i>Hufschmidt und Burck</i> (1968)	$p = 0,11$

Die Methode nach *Sieder und Tate* sowie von *Hausen* findet unter Berücksichtigung neuerer Messdaten aktuell Eingang in die von der *Engineering Science Data Unit* (ESDU) publizierte Berechnungsmethode zum konvektiven Wärmeübergang. Mitte des 20. Jahrhunderts etablierten *Yakovlev*, *Kutateladse* sowie *Hufschmidt und Burck* einen Korrekturfaktor, basierend auf dem Verhältnis der Prandtl-Zahlen von Kern- und Wandströmung, ein Vorteil aus Ähnlichkeitstheoretischer Sicht

aufgrund des zusätzlichen Einflusses von Dichte, Wärmeleitfähigkeit und Wärmekapazität. Die im VDI-Wärmeatlas dokumentierte Berechnungsmethode zum einphasigen Wärmeübergang bei Rohrströmungen basiert auf dem Ansatz von *Hufschmidt und Burck*. Wandeffekte werden bei den heute einschlägigen Berechnungsansätzen durch einen Korrekturterm berücksichtigt. Wichtig ist hierbei die Frage nach den Gültigkeitsgrenzen der Methoden und damit nach dem Messbereich der hinterlegten experimentellen Daten.

Abb. 4.6 zeigt das Viskositätsverhältnis η_b/η_w abhängig von der Temperatur der Kernströmung für eine hochviskose Polymerschmelze mit starker Temperaturabhängigkeit der Prandtl-Zahl.

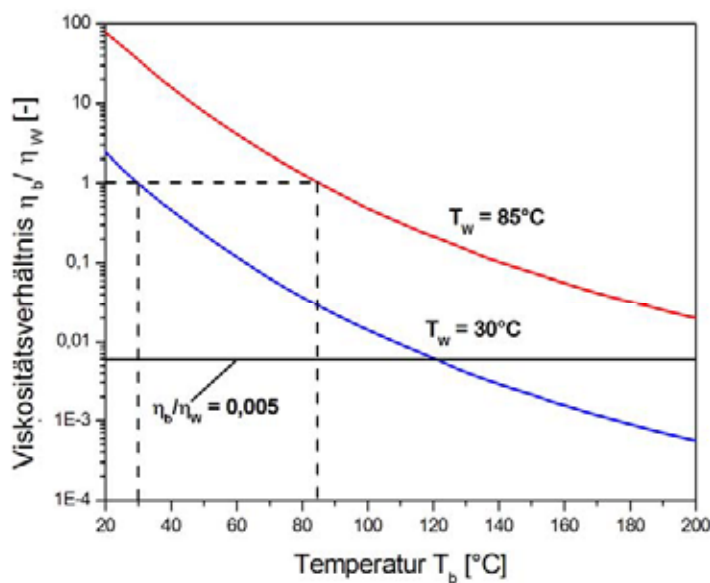


Abb. 4.6: Viskositätsverhältnis vs. Temperatur der Kernströmung

Die üblicherweise eingesetzten Wärmeübergangskorrelationen sind für Viskositätsverhältnisse $\eta_b/\eta_w \geq 0,005$ validiert. Das Diagramm verdeutlicht die Verletzung dieser Gültigkeitsgrenze mit höheren Temperaturen der Kernströmung bei gleichzeitig geringer Wandtemperatur. Diese Situation tritt insbesondere bei der Abkühlung von Polymerschmelzen auf und war Anlass für die vorliegenden Untersuchungen.

Zur Untersuchung des konvektiven Wärmeübergangs an Medien mit einem Viskositätsverhältnis $\eta_b/\eta_w \ll 0,005$ wurden entsprechende experimentelle Untersuchungen durchgeführt. Als zweites Stoffsystem wurde ein Polymer eingesetzt, das zwar newtonsches Verhalten aufweist, bei einer hohen Absolutviskosität jedoch das Verhältnis von η_b/η_w außerhalb der Gültigkeitsgrenzen der etablierten Rechenmethoden liegt.

Zur Beurteilung des Wärmeübergangs viskoser Fluide mit stark temperaturabhängiger Prandtl-Zahl wurde die im folgenden beschriebene und in Abb. 4.7 dargestellte Versuchsanlage eingesetzt. Die experimentellen Arbeiten beschränkten sich zunächst auf den Fall der Rohrströmung. Das Versuchsmedium befindet sich im doppelwandigen Behälter B1, der durch im Thermostaten W4 erwärmtes Öl beheizt wird. Mittels Zahnrادpumpe P1 wird das Versuchsmedium durch die Messstrecke, den Doppelrohrwärmeübertrager W1, gefördert. Das Innenrohr der Messstrecke hat dabei die Geometrie $d_a \times s \times L = 20 \times 2 \times 2000$ mm. Das Mantelrohr hat bei gleicher Länge einen Innendurchmesser von 36 mm. Der Wärmeübertrager W1 wird im Gegenstrom von Kühlwasser

durchströmt. Das Kühlwasser wird in einem zweiten Kühlkreislauf temperiert und über den Plattenwärmeübertrager W3 in die Versuchsanlage geführt. Mit den Thermoelementen TIR 02 und TIR 07 des Produktstromes sowie durch die Thermoelemente TIR 03 und TIR 04 des Kühlwasserstromes kann die Wärmebilanz um den Doppelrohrwärmeübertrager W1 kühlwasser- wie produktseitig bestimmt werden. Um die mittlere Ausgangstemperatur an der Stelle TIR 07 des Produktstromes messen zu können, wird das Temperaturprofil zuvor mit einem statischen Mischer ausgeglichen. Unmittelbar hinter dem Wärmeübertrager W1 befindet sich ein verschiebbares Thermoelement TIR 06, um den radialen Temperaturgradienten im Rohrquerschnitt ermitteln zu können. Um eine zu starke Abkühlung des Mediums zu vermeiden, wird das Versuchsmedium, bevor es in den Behälter B1 zurück gelangt, durch den Wärmeübertrager W2 geführt. Der Doppelrohrwärmeübertrager W2 wird im Gegenstrom mit heißem Öl aus dem Thermostaten W5 betrieben.

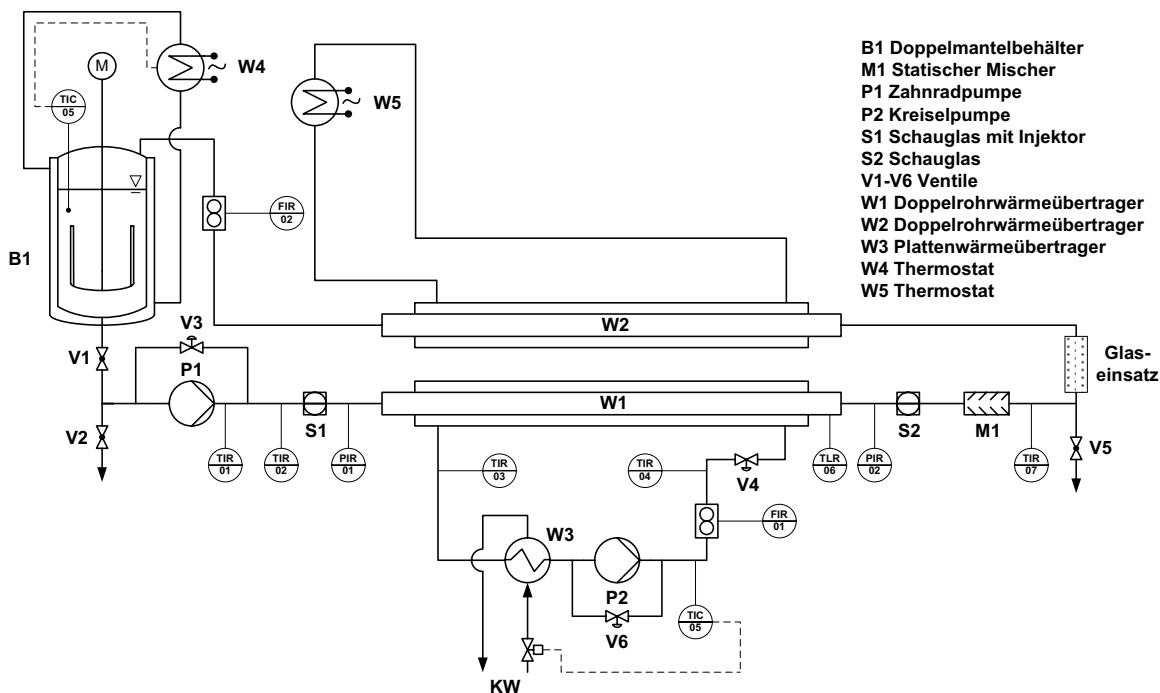


Abb. 4.7: Versuchsanlage zur Messung der Wärmeübertragung an hochviskose Stoffe

Alle Rohre sind mit Steinwolle isoliert und teilweise begleitend durch Heizschnüre extern beheizt. Durch den in der Edelstahlleitung eingebrachten Glaseinsatz werden Verfälschungen der Messergebnisse am Thermoelement TIR 07 durch axiale Wärmeleitung seitens des Wärmeübertragers W2 vermieden. Schaugläser (S1, S2) vor und hinter dem Doppelrohrwärmeübertrager W1 ermöglichen die optische Beobachtung des Strömungsverhaltens des Mediums. Der Produktmassenstrom wird mit Hilfe eines Coriolis-Durchflussmengenmessers FIR 02 ermittelt, während im Kühlkreislauf der Volumenstrom induktiv gemessen wird (FIR 01). Alle Temperaturen sowie die Volumenströme werden online von einer Messdatenerfassung aufgezeichnet.