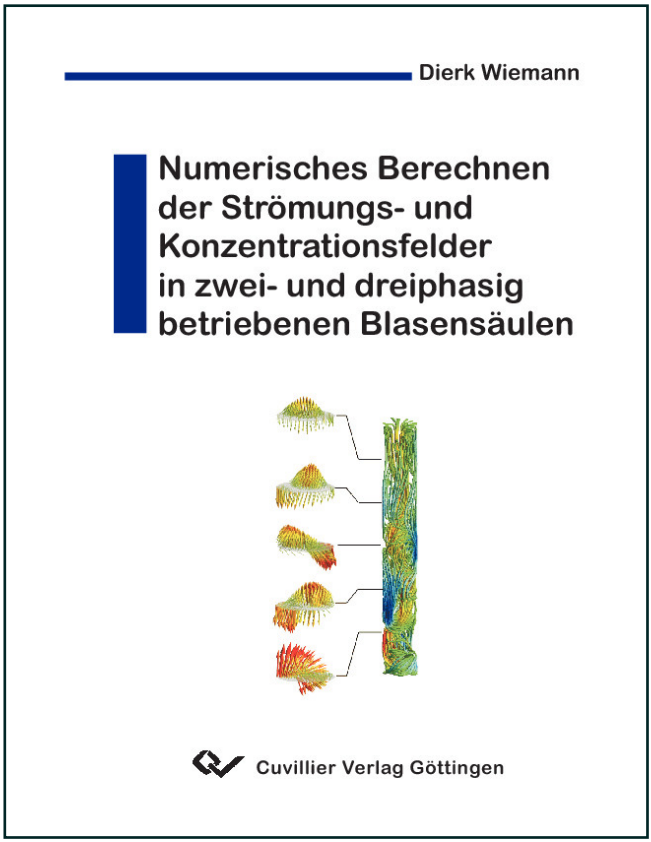
Dierk Wiemann (Autor)

Numerisches Berechnen der Strömungs- und Konzentrationsfelder in zwei- und dreiphasig betriebenen Blasensäulen



https://cuvillier.de/de/shop/publications/2399

Copyright:
Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentzsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen, Germany
Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: https://cuvillier.de

1 Einleitung

Blasensäulen werden in der chemischen Industrie für zahlreiche Prozesse verwendet. Es handelt sich um zylindrische, von einer Flüssigkeit durchströmte Apparate, in deren Sumpfquerschnitt eine Gasphase dispergiert wird. Die entstehenden Blasen steigen als Blasenschwarm infolge der im Schwerefeld wirksamen Auftriebskräfte auf. Im Kopfquerschnitt der Blasensäulen entsteht durch Blasenkoaleszenz eine freie Oberfläche. Die Gasphase entweicht während die flüssige Phase je nach Phasenführung aus Kontinuitätsgründen abwärts strömt. Das resultierende Strömungsfeld der Flüssigkeit ist dreidimensional und zeitlich veränderlich. Für Volumenstromdichten des Gases unter ca. 10 cm/s tritt die homogene Strömungsform auf. Die Blasen besitzen einen nahezu einheitlichen Durchmesser und die Wechselwirkungen zwischen den Blasen sind gering. Für größere Volumenstromdichten des Gases treten starke Wechselwirkungen zwischen den Blasen auf, so dass die Blasengröße durch Koaleszenz und Zerfall von Blasen lokal variiert. Diese heterogene Strömungsform ist durch strömungsfeldabhängige Blasengrößenverteilungen gekennzeichnet. Dabei wird ein großer Anteil des Gases in Form von Großblasen transportiert. Die Verweilzeit dieser Blasen ist kürzer als die Verweilzeit der kleineren Blasen. Infolge der turbulenten Schwankungsbewegungen und der großräumigen Flüssigkeitswirbel entsteht eine Verweilzeitverteilung in der Flüssigkeit. In der Gasphase beeinflussen zusätzlich die Zerfalls- und Koaleszenzvorgänge der Blasen deren Verweilzeitverteilung. Dadurch werden die lokalen treibenden Konzentrations- und Temperaturgradienten verringert.

Der Impuls-, Stoff- und Energietransport zwischen den Phasen ist proportional der lokalen Phasengrenzfläche. Für das Dimensionieren von Blasensäulen ist neben der Phasengrenzfläche auch die Vermischung innerhalb der Flüssig- und Gasphase bedeutend. Für das Beschreiben der Vermischung werden bislang empirische Korrelationen verwendet, deren Gültigkeitsbereich durch die experimentell variierten Parameter und die verwendeten Stoffsysteme begrenzt ist.

Für einige Anwendungen ist neben der Gasphase ein Feststoff in der Flüssigkeit verteilt. Der Feststoff ist dabei Katalysator einer heterogenen chemischen Reaktion oder selbst als Produkt oder Edukt an der Reaktion beteiligt. Für Anwendungen in der Biotechnologie bildet die Biomasse den Feststoff. Durch den Feststoff werden die Phasenverteilung und die Geschwindigkeitsfelder beeinflusst. Für heterogen katalysierte Reaktionen ist in dreiphasigen Systemen der Reaktionsumsatz von der Verteilung des Feststoffs abhängig.

2 Ziele der Arbeit

Das Dimensionieren von Blasensäulen erfolgt bislang mit Hilfe empirischer Gleichungen auf der Basis experimentell an Anlagen im Labormaßstab ermittelter Ergebnisse. Der Gültigkeitsbereich dieser Korrelationen ist durch die Wahl des Stoffsystems, die Abmessungen der Versuchsanlage und die experimentell variierten Parameter begrenzt. Insbesondere ist die Übertragung vom Labor- in den technischen Maßstab nur unvollkommen möglich, da die Strömungsfelder und die Rückvermischung der Phasen von den Abmessungen des Reaktors beeinflusst werden. Ziel dieser Arbeit ist es, die Geschwindigkeits- und Konzentrationsfelder in zwei- und dreiphasig betriebenen Blasensäulen auf der Grundlage eines physikalisch begründeten Modells auf numerischem Wege zu berechnen.

Die im Verlauf einer heterogenen chemischen Reaktion umgesetzte Stoffstromdichte der Reaktanden wird in einer Blasensäule stark durch die Rückvermischung in den einzelnen Phasen beeinflusst. Im ersten Teil der Arbeit wird daher die Dispersion sowohl in der Gas- als auch in der Flüssigphase untersucht. Dazu wird die zweiphasige Strömung mit Hilfe eines Euler-Euler Modells beschrieben. Das dreidimensionale, zeitveränderliche Konzentrationsfeld eines als Spurstoff dosierten Reaktanden wird in der Gas- und in der Flüssigphase berechnet. Aus den erhaltenen Konzentrationsfeldern werden die für die Dispersion in beiden Phasen charakteristischen Dispersionskoeffizienten berechnet und mit bekannten experimentellen Ergebnissen verglichen.
Mit diesen Kenntnissen wird das Modell erweitert, um den Stoffaustausch in zwei- und dreiphasigen Strömungen zu berechnen. Der Feststoff wird dabei als eine eigenständige Eulersche Phase berücksichtigt. Die auf die Feststoffphase wirkenden Schubspannungen werden in Analogie zur kinetischen Gastheorie beschrieben.
Das in Gegenwart eines suspendierten Feststoffs gegenüber der feststofffreien zweiphasigen Gas-Flüssigkeitsströmung veränderte Koaleszenzverhalten der Blasen wird visualisiert und gemessen.
Für heterogen katalysierte Reaktionen zwischen gasförmigen und flüssigen Reaktanden wird der Stofftransport von der Absorption des gasförmigen Reaktanden, den konvektiven und molekularen Transportprozessen innerhalb der flüssigen Phase und durch die chemische Reaktion an der Oberfläche der Partikeln beeinflusst. Die räumlichen, zeitveränderlichen Geschwindigkeits- und Konzentrationsfelder werden für alle drei Phasen berechnet.

3 Stand des Wissens

Anwendungen zwei- und dreiphasig betriebener Blasensäulen werden von Deckwer [1], Nigam und Schumpe [2] und Fan [3] beschrieben.

3.1 Strömungsfelder in Blasensäulen

Dudukovic, Larachi und Mills [4] erläutern die experimentellen Ergebnisse zum Strömungsfeld zwei- und dreiphasig betriebener Blasensäulen. Die Geschwindigkeitsfelder weisen in allen Phasen große Gradienten nach den Orts- und Zeitkoordinaten auf. Für Partikeln kleinen Durchmessers wird der Feststoff allein durch die blaseninduzierte Flüssigkeitsströmung und die Wechselwirkung mit den Nachlaufwirbeln der Blasen in der Schwebe gehalten. Für das Fluidisieren größerer und schwererer Partikeln ist neben der Gasströmung eine dieser überlagerte Flüssigkeitsströmung notwendig. Für sehr kleine Partikeln, geringe Volumenanteile des Feststoffs und geringe Dichtedifferenzen zwischen der flüssigen Phase und den Partikeln sind letztere gleichmäßig in der Flüssigkeit verteilt. Die Suspension aus Feststoff und Flüssigkeit kann dann als eine homogene Phase beschrieben werden. Dabei wird der Feststoff durch eine gegenüber der reinen Flüssigkeit höhere Viskosität der Suspensionsphase berücksichtigt ([1], [2]). Für Partikeln großen Durchmessers und hoher Dichtedifferenz zur Flüssigphase ist der Feststoff inhomogen in der Flüssigkeit verteilt. Das Strömungsfeld der Flüssigkeit wird durch den Impulsaustausch mit den Partikeln beeinflusst. Die Flüssigkeit und der Feststoff müssen dann als separate Phasen beschrieben werden.

Die Phasenverteilungen in drei- und zweiphasig betriebenen Blasensäulen weisen eine große Übereinstimmung auf ([5] bis [7]). Die mit Hilfe der Ultraschalltomographie gemessenen Phasenverteilungen und Strömungsfelder werden durch das in Bild 3.1 dargestellte Schema wiedergegeben.

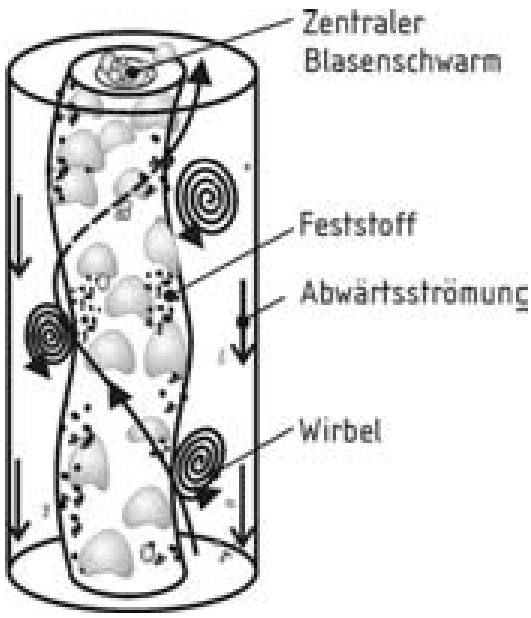


Bild 3.1: Phasenverteilung und Strömungsfeld in einer dreiphasig betriebenen Blasensäule nach Warsito, Ohkawa, Maezawa und Uchida [5]

Die Gasblasen steigen als Blasenschwarm vorrangig in der Säulenmitte auf. Im Zentrum des Schwarms und im Wandbereich der Blasensäule sind die Volumenanteile des Feststoffs gering, dagegen wird in den Randbereichen des Blasenschwarms der Feststoff aufwärts transportiert. Die Flüssigkeit strömt im Bereich des Blasenschwarms aufwärts und im Wandbereich abwärts.

Für geringe Volumenstromdichten des Gases wird die axiale Rotationsbewegung des Blasenschwarms in einem dreiphasigen Strömungsfeld gegenüber einem zweiphasigen bereits durch geringe Feststoffanteile verstärkt. Die weitere Erhöhung des Feststoffvolumenanteils führt nicht zur Verstärkung der Rotationsbewegung [8].

In einigen experimentellen Untersuchungen gehen die Forschergruppen von einer homogenen Verteilung des Feststoffs in der Blasensäule aus und messen deshalb keine lokalen Phasenanteile der festen partikelfömigen Phase ([9] bis [13]). Durch die Zugabe von festen Partikeln kleinen Durchmessers und hoher Dichte treten Änderungen der lokalen Phasenanteile der Flüssig- und Gasphase sowie der Phasengeschwindigkeiten auf. Auch die Blasengrößenverteilung und die Turbulenz in der flüssigen Phase werden beeinflusst. Die gemittelten Volumenanteile des Feststoffs nehmen für das Stoffsystem Wasser-Luft-Quarzsand vom Sumpf- zum Kopfquerschnitt ab ([14], [15]). Kleinere Partikeldurchmesser und höhere Volumenstromdichten des Gases führen zu einer gleichmäßigeren Verteilung des Feststoffs. Demgegenüber wird für Partikeln großen Durchmessers und geringer

Dichtedifferenz zur umgebenden Flüssigkeit in Blasensäulen großer Abmessungen auch für hohe überlagerte Volumenstromdichten der Flüssigphase keine gleichmäßige Verteilung des Feststoffs in der Säule erreicht [16].
Für das Messen des zeitveränderlichen Strömungsfelds der festen Phase in dreiphasigen Gas-Flüssig-Feststoff und zweiphasigen Fest-Flüssig-Strömungen werden die Bahnkurven radioaktiv markierter Partikeln detektiert ([17] bis [20]). Aus den gemessenen Bahnkurven werden das zeitgemittelte Strömungsfeld der festen Phase sowie die örtliche Verteilung der Turbulenzintensität in der kontinuierlichen Phase erhalten.

3.2 Dispersion in Blasensäulen

Als Dispersion bezeichnet Deckwer [1] den stochastischen Ausgleichsvorgang, durch den Gradienten intensiver Größen verringert werden. Die Dispersion tritt sowohl in ein- als auch in mehrphasigen Strömungen auf. Für Mehrphasenströmungen wird die Dispersion innerhalb einer Phase durch die Anwesenheit der weiteren Phasen beeinflusst. Für zweiphasige Gas-Flüssigkeit-Strömungen in Blasensäulen kann die Dispersion durch makroskopische und mikroskopische Phänomene verursacht werden.
Zu den makroskopischen Ursachen der Dispersion gehören die Kanalbildung, Strömungstoträume, Geschwindigkeitsprofile, Zirkulationsströmungen und Wirbelschleppen-effekte im Nachlauf der Blasen. Die Kanalbildung entsteht durch eine inhomogene Verteilung der Gasphase über den Säulenquerschnitt. Dadurch bilden sich Zonen hohen Gasgehalts, in denen ein Großteil des Gases aufwärts strömt. Strömungstoträume entstehen durch Einbauten oder in der Nähe der Phasenverteiler. Die sich innerhalb der Strömungstoträume befindliche Flüssigkeit wird nur in geringem Maße mit der die Blasensäule durchströmenden Flüssigkeit vermischt, so dass eine sehr lange Verweilzeit für diese Fluidelemente auftritt. In Blasensäulen strömen die Blasen und die Flüssigkeit bevorzugt in der Säulenmitte aufwärts. Dadurch bildet sich ein radiales Geschwindigkeitsprofil. Fluidelemente in Wandnähe durchströmen den Reaktor in einer längeren Zeit als solche in der Säulenmitte. Es entstehen radiale Geschwindigkeitsprofile, welche durch die Größenverteilung der Blasen und die inhomogene Phasenverteilung bedingt sind. In Blasensäulen treten insbesondere für hohe Volumenstromdichten der Gasphase großräumige Wirbel in der Flüssigkeit auf. Dadurch erfolgt deren axiale und radiale Vermischung. Kleine Gasblasen werden von der abwärtsgerichteten Flüssigkeitsströmung vertikal abwärts transportiert. Im Nachlauf des aufsteigenden Blasenschwarms bilden sich innerhalb der Flüssigphase Wirbel aus. Die

Flüssigkeit im Nachlauf der Blasen wird aufwärts transportiert und durch turbulente Schwankungen mit der Flüssigkeit der Kernphase vermischt. Zusätzlich verdrängen die aufsteigenden Blasen einen Teil der Flüssigkeit in radialer Richtung.
Für die Dispersion in der Gasphase sind darüber hinaus die Koaleszenz und der Zerfall der Blasen von großer Bedeutung. Durch diese Vorgänge wird zum Einen die Vermischung innerhalb der Gasphase gefördert, zum Anderen entsteht dadurch eine Blasengrößenverteilung. Die unterschiedlichen Blasendurchmesser führen zu unterschiedlichen Aufstiegsgeschwindigkeiten, so dass für die Blasen ebenfalls eine Verweilzeitverteilung entsteht.
Ursachen für die Dispersion im Mikrobereich der Ortskoordinate sind die turbulenten Schwankungsbewegungen in der Flüssigphase. Die unterschiedlichen Formen der Turbulenz in mehrphasigen Strömungen werden von Brauer [21] eingehend beschrieben. Von Banerjee [22] wird eine Zusammenfassung bisheriger vorliegender Ergebnisse aus Forschungsarbeiten zur Struktur der Turbulenz gegeben. Brauer [21] unterscheidet für mehrphasige Strömungen zwischen der Reynoldschen Turbulenz, der Grenzflächen-Turbulenz, der Deformations-Turbulenz, der Gitter-Turbulenz und der Schwarm-Turbulenz. Die Reynoldsche Turbulenz tritt in einphasigen Strömungen und in den kontinuierlichen Phasen mehrphasiger Strömungen auf. Die Grenzflächenturbulenz tritt an der Phasengrenze in Mehrphasenströmungen auf, wenn infolge eines durch die Phasengrenze hindurchtretenden Stoffstroms Gradienten der Oberflächenspannung entstehen. Dabei wird durch eruptionsartige Vorgänge Material aus der Phasengrenze abtransportiert. Die Deformations-Turbulenz entsteht durch stochastische Formänderungen der Phasengrenze. In der unmittelbaren Umgebung der Phasengrenze werden dadurch die Geschwindigkeits- und Konzentrationsfelder beeinflusst. Für formveränderliche Blasen wird die Verringerung oder Steigerung des übertragenen Stoffstroms gegenüber formstabilen Blasen beobachtet. Die Gitter-Turbulenz wird im Nachlauf durchströmter Schichtungen fester Partikeln infolge von Strömungsablösungen an der Oberfläche der Partikeln hervorgerufen. Beim Durchströmen von Schwärmen aus frei beweglichen Partikeln spricht man von Schwarmturbulenz, die eine Überlagerung unterschiedlicher Turbulenzarten darstellt.

Durch die zuvor beschriebenen Anteile der Dispersion wird in einer Blasensäule eine Verweilzeitverteilung in der flüssigen und der gasförmigen Phase erzwungen. In Bild 3.2 ist schematisch die Wirkung der Dispersion auf die Ausbreitung von als sogenannte Tracer eingesetzten Partikeln für einen Rohrreaktor dargestellt.

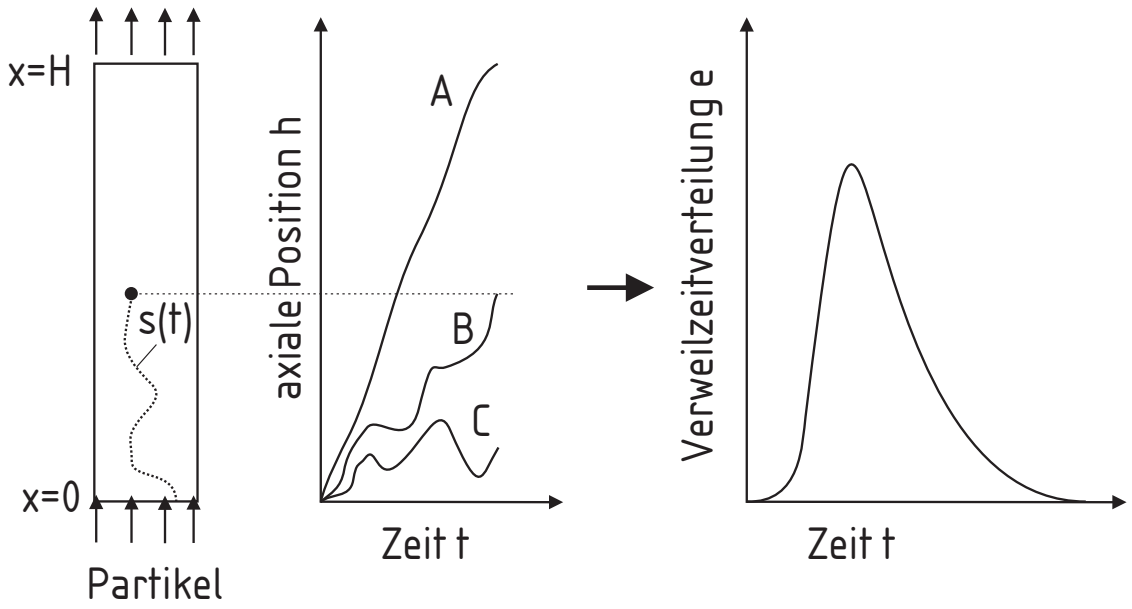


Bild 3.2: Wirkung der Dispersion auf die Ausbreitung von Tracerpartikeln

Die Partikeln treten zum Zeitpunkt t im Sumpfquerschnitt bei x= 0 in den Reaktor ein und verlassen den Reaktor im Kopfquerschnitt bei x= H. Infolge der Dispersion unterscheidet sich die axiale Position der Partikeln A, B und C zum Zeitpunkt t, so dass sie den Reaktor zu unterschiedlichen Zeiten verlassen und ihre Verweilzeit im Reaktor unterschiedlich ist. Die Verteilungsdichte der Verweilzeit ist

$$e(t) = \frac{dN}{N\,dt}. \tag{3.1}$$

In Gl. (3.1) bezeichnet N die Anzahl der Tracerpartikeln und t die Zeit. Das Integral der Verteilungsdichtefunktion ist

$$E(t) = \int_0^t e(t)\,dt \tag{3.2}$$

und bezeichnet den Anteil der eingespeisten Partikeln, die zum Zeitpunkt t den Reaktorausgang passiert haben. Der Wert des Integrals in Gl. (3.2) ergibt für unendlich lange Zeitintervalle den Wert Eins. Für die statistische Auswertung der Verweilzeitverteilung werden die mittlere Verweilzeit

$$\bar{t} = \frac{\int_0^\infty tNdt}{\int_0^\infty Ndt} \tag{3.3}$$

und die Varianz der Verweilzeit

$$\sigma^2 = \frac{\int_0^\infty (t-\bar{t})^2 Ndt}{\int_0^\infty Ndt} \tag{3.4}$$

berechnet. Grenzfälle der Verweilzeitverteilungen liegen für das ideale Strömungsrohr und den idealen Rührkessel vor. Für den erstgenannten Fall des kolbenförmigen Geschwindigkeitsprofils besitzen alle Partikeln die gleiche Verweilzeit. Für den Fall des idealen Rührreaktors wird eine exponentielle Verweilzeitverteilung erhalten. Die Verweilzeitverteilung realer Reaktoren liegt zwischen diesen Grenzfällen. Für einige Sonderfälle kann der Dispersionskoeffizienten aus der mittleren Verweilzeit und der Varianz der Verweilzeitverteilung berechnet werden [23].

Für das Beschreiben der Dispersion wird vielfach vorausgesetzt, dass die dispersive Vermischung einer Komponente ungerichtet durch Flüssigkeitswirbel erfolgt. Für das Beschreiben des Vermischungsprozesses wird daher angenommen, dass die Ausbreitungsvorgänge stochastisch sind [23]. In Analogie zur molekularen Diffusion wird die dispersiv transportierte Stoffstromdichte

$$\dot{n}_{disp} = -E\frac{\partial c}{\partial x} \tag{3.5}$$

in Abhängigkeit des Dispersionskoeffizienten E und des Gradienten der Konzentration beschrieben, obwohl die physikalischen Ursachen der Dispersion und die der molekularen Diffusion unterschiedlich sind. Für ein ringförmiges Bilanzgebiet sind die ein- und austretenden konvektiven und dispersiven Stoffströme in Bild 3.3 dargestellt.

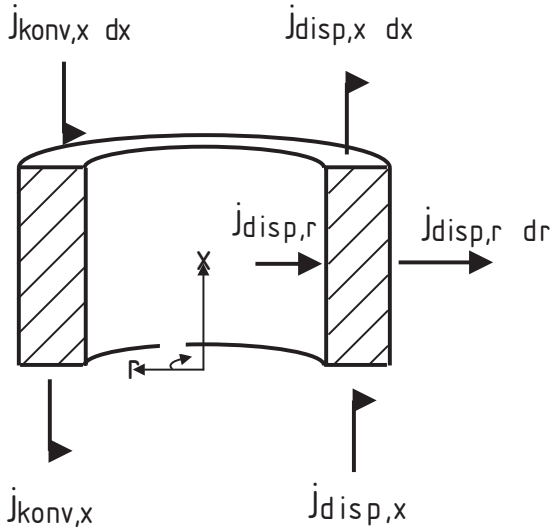


Bild 3.3: Konvektive und dispersive Stoffströme an einem Ringelement

Für eine konstante Volumenstromdichte und konstante Diffusions- und Dispersionskoeffizienten gilt unter Berücksichtigung der diffusiven Stoffströme für die Massenbilanz der Komponente A am Ringelement:

$$\frac{\partial c_A}{\partial t} + j\frac{\partial c_A}{\partial x} = (D + E_{rad})\left(\frac{\partial^2 c_A}{\partial r^2} + \frac{\partial c_A}{r\partial r}\right) + (D + E_{ax})\frac{\partial^2 c_A}{\partial x^2} \tag{3.6}$$

In Gl. (3.6) werden der molekulare Diffusionskoeffizient mit D, die Molkonzentration der Komponente A mit c_A, die axialen und radialen Dispersionskoeffizienten mit E_{ax} und E_{rad} und die Volumenstromdichte mit j bezeichnet. In Blasensäulen ist der molekulare Transport gegenüber dem dispersiven zu vernachlässigen ([1], [23]). Unter Vernachlässigung der radialen Dispersion folgt aus Gl. (3.6) das axiale Dispersionsmodell

$$\frac{\partial c_A}{\partial t} = -j\frac{\partial c_A}{\partial x} + E_{ax}\frac{\partial^2 c_A}{\partial x^2}. \tag{3.7}$$

Mit den dimensionslosen Größen