

TU Kaiserslautern, Thermische Verfahrenstechnik

TU München, Fluidverfahrenstechnik

RWTH Aachen, Thermische Verfahrenstechnik

---

Name der Forschungsstelle(n)

40 ZN / 1+2+3 /

---

AiF-Vorhaben-Nr. / GAG

01.01.01 bis 31.10.04

---

Bewilligungszeitraum

**Schlußbericht für den Zeitraum : 01.01.01 bis 31.10.04**

zu dem aus Haushaltsmitteln des BMWi über die



geförderten Forschungsvorhaben

Forschungsthema : Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne

Aachen, den 14.02.2005

---

Ort, Datum

---

Unterschrift der/des Projektleiter(s)

# Dokumentationsblatt

zu dem aus Haushaltsmitteln des BMWi über die



geförderten Forschungsvorhaben

<u>Verfahrens-Technik</u>	<u>40 ZN 1+2+3 /</u>
AiF-Mitgliedsvereinigung (MV)	AiF- Vorhaben-Nr. / GAG
<u>24.8</u>	<u>01.01.01 bis 31.10.04</u>
Wirtschaftszweig (WZ)	Bewilligungszeitraum
<u>Aktenzeichen der MV</u>	<u>€</u> Gesamtzuwendung

## Forschungsstelle(n) :

RWTH Aachen, Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik, Wüllnerstraße 5, 52062 Aachen  
TU München, Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik, Boltzmannstraße 15, 85747 Garching  
TU Kaiserslautern, Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik, Postfach 3049, 67653 Kaiserslautern

## Forschungsthema :

Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne

## Erzielte Ergebnisse und deren Anwendungsmöglichkeiten :

Die Auslegung von Extraktionskolonnen ist bis heute eine schwierige Aufgabe, die mit großem Aufwand und Risiken verbunden ist. In der Praxis werden daher umfangreiche Vorversuche durchgeführt, um die Unsicherheiten zu minimieren. Diese Vorgehensweise ist jedoch äußerst zeit- und kostenintensiv. Vor diesem Hintergrund wurde eine neue Auslegungsmethode entwickelt, um Extraktionskolonnen durch tragfähige Simulationsprogramme und durch experimentelle Untersuchungen mit Einzeltropfen in kleinen Laborapparaten auszulegen. Durch die neue Auslegungsmethode können sowohl pulsierte Siebboden- bzw. geordnete Packungskolonnen sowie gerührte RDC- bzw. Kühni-Kolonnen schnell und flexibel dimensioniert werden. Vor allem klein- und mittelständischen Unternehmen, die nicht über geeignete Technikumsanlagen verfügen, wird dadurch ein höheres Maß an Sicherheit gegeben, da frühzeitig eine Prozessoptimierung und eine Kostenabschätzung durch eine optimale Apparatewahl sowie eine genaue Dimensionierung möglich sind.

## Zusammenfassung

Die Flüssig-Flüssig-Extraktion stellt ein weit verbreitetes Trennverfahren dar, das in der Hydrometallurgie, der Kernbrennstoffaufbereitung, der Abwasserreinigung und der Erdölindustrie seit einigen Jahren als Standardtrennverfahren eingesetzt wird (*Pilhofer 1989, Rydberg et al. 1992, Stichlmair und Steude 1990*). In jüngster Zeit findet dieses Trennverfahren zusätzlich verstärkte Anwendung im Bereich der Umwelttechnik, der Pharmaindustrie und der Biotechnologie (*Schmidt 1994*). Trotz der Vielzahl technischer Anwendungen und der intensiven Entwicklung unterschiedlicher Apparateausführungen in den letzten 50 Jahren ist die Auslegung von Extraktionskolonnen immer noch mit erheblichen Problemen behaftet. Bis heute können Extraktionskolonnen nur basierend auf Voruntersuchungen im Technikumsmaßstab mit den später zum Einsatz kommenden Originalflüssigkeiten ausgelegt werden. Die dafür benötigten großen Mengen an Originalflüssigkeiten sowie die kostenaufwändigen Experimente verringern die Wirtschaftlichkeit eines Extraktionsprozesses.

Das Ziel der Industrie sowie des Forschungsvorhabens AiF 40 ZN „Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne“ ist es deshalb, Extraktionskolonnen basierend auf experimentellen Untersuchungen mit einzelnen Tropfen in standardisierten Laboranlagen sowie basierend auf Simulationen auszulegen. Dabei war die Aufgabe der Arbeitsgruppe Stichlmair im Gesamtprojekt, den Einfluss eines Tropfenschwarms, d. h. den Übergang vom Einzeltropfen zum Tropfenschwarm, auf die Fluidodynamik und die Trennleistung einer Extraktionskolonne zu bestimmen. Die Anstrengungen der Arbeitsgruppe Pfennig zielten darauf ab, eine Kolonnenauslegung für pulsierte Siebboden- und Packungskolonnen mit Hilfe des Simulationsprogramms ReDrop zu entwickeln. Die Arbeitsgruppe Bart beschäftigte sich mit der Entwicklung des Simulationsprogramms LLECMOD zur Dimensionierung gerührter Extraktionskolonnen. Durch die enge Verknüpfung der am Gesamtprojekt beteiligten Arbeitsgruppen konnten die Kompetenzen der einzelnen Gruppen ideal ausgeschöpft werden.

**Das Ziel des Gesamtprojektes, nämlich unterschiedliche Extraktionskolonnen auf der Grundlage von Einzeltropfenuntersuchungen mit Hilfe der Simulationsprogramme auszulegen, konnte auf diese Weise im Rahmen des Gemeinschaftsprojektes „Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne“ erreicht werden.**

## **Forschungsprojekt AiF 40 ZN:**

### **„Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne“**

#### **Kurzfassung der erzielten Ergebnisse**

In der chemischen und biochemischen Industrie ist die Flüssig-Flüssig-Extraktion ein weit verbreitetes Trennverfahren. Infolge der gestiegenen Anforderungen, Produkte schnell und kostengünstig auf den Märkten einzuführen, sind kurze Entwicklungszeiten und effektive Entwicklungswerkzeuge notwendig. Neben der Auswahl des Lösungsmittels und den entsprechenden thermodynamischen Daten stellen die notwendigen Technikumsversuche für eine zuverlässige Dimensionierung geeigneter Extraktionsapparate auch heute noch einen kosten- und zeitintensiven Faktor dar. Die Kosten bei der Dimensionierung eines Extraktionsapparates werden vor allem durch die enormen Mengen an Originalflüssigkeiten, die bei den Technikumsversuchen benötigt werden, sowie das benötigte Fachpersonal verursacht. Das Ziel der Industrie sowie des Forschungsvorhabens AiF 40 ZN „Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne“ ist es deshalb, Extraktionskolonnen nur auf der Basis von Einzeltropfenuntersuchungen in standardisierten Labormesszellen und mit dazugehörigen Simulationen auszulegen. Das neue Auslegungskonzept soll vor allem klein- und mittelständischen Unternehmen ein höheres Maß an Sicherheit geben und eine Kostenreduzierung durch eine schnellere und flexiblere Auslegung ermöglichen.

Die Aufgabe der Arbeitsgruppe Stichlmair im Gesamtprojekt ist es, den Einfluss eines Tropfenschwarms, d. h. den Übergang vom Einzeltropfen zum Tropfenschwarm, auf die Fluidodynamik und die Trennleistung einer Extraktionskolonne zu bestimmen. Der Einfluss eines Schwarms soll dabei basierend auf Einzeltropfenexperimenten in unterschiedlichen Extraktionsapparaten modelliert werden. Dazu wurden Untersuchungen mit einem Fest-Flüssig-Stoffsystem (Wasser + starre Polypropylenkugeln) und mit zwei Flüssig-Flüssig-Stoffsystemen (Wasser + Aceton + Toluol, Wasser + Aceton + Butylacetat) sowohl mit einzelnen Partikeln als auch mit Partikelschwärmen durchgeführt. Die Untersuchungen mit starren Partikeln dienten dabei im Wesentlichen der Bestimmung der grundlegenden Gesetzmäßigkeiten bei der Beschreibung der Fluidodynamik in Extraktionskolonnen. Vor allem die Bestimmung des Hold-up starrer Partikelschwärme in unterschiedlichen Extraktionskolonnen und die Entwicklung neuer Modelle zur Beschreibung der Geschwindigkeiten einzelner Tropfen in den zu untersuchenden Extraktionskolonnen lieferte die Basis für eine wissensbasierte Modellierung der Fluidodynamik von Tropfenschwärmen. Bei der Modellierung der Geschwindigkeiten ein-

zelter Tropfen in unterschiedlichen Extraktionskolonnen wurde vor allem der Einfluss der Einbauten und der Energieeintrag in die entsprechende Kolonne berücksichtigt. Die Ergebnisse in einer pulsierten Siebboden- und geordneten Packungskolonne sowie in einer gerührten RDC- und Kühni-Kolonne zeigen, dass der Schwarmeinfluss auf die Fluidodynamik und den Stoffübergang durch das in der Arbeitsgruppe Stichelmair neu entwickelte Modellkonzept sehr gut bestimmt werden kann.

Die Aufgabe der Arbeitsgruppe Pfennig ist die Modellierung von pulsierten Siebboden- und Packungskolonnen auf der Basis von Einzeltropfenexperimenten. Um das Forschungsziel der Arbeitsgruppe Pfennig zu erreichen, wurde zum einen die ReDrop-Extraktionskolonnen-simulation, die für pulsierte Siebbodenkolonnen erfolgreich entwickelt wurde, für das vorgesehene Stoffsystem n-Butylacetat + Wasser + Aceton für pulsierte Siebbodenkolonnen validiert. Zum anderen wurde das ReDrop-Modell auf die Anwendung für pulsierte Packungskolonnen übertragen. Für die Weiterentwicklung der ReDrop-Simulation sind die Modelle für die Einzelphänomene an Einzeltropfen – die Sedimentation, der Stoffaustausch und die Spaltung – in Packungskolonnen erarbeitet und in das Simulationsprogramm implementiert worden. Für die Beschreibung der Sedimentation wurde das in der AG Stichelmair entwickelte Modell übernommen. Zusätzlich sind die zu untersuchenden Stoffsysteme charakterisiert und die Datenbasis für die Entwicklung von Detailmodellen für die Tropfensedimentation und den Stoffaustausch gewonnen worden, indem experimentelle Untersuchungen in einer Einzeltropfenmesszelle mit geeigneten Packungselementen durchgeführt wurden. Somit konnte das Ziel der AG Pfennig, pulsierte Siebboden- und Packungskolonnen basierend auf Einzeltropfenexperimenten auszulegen, im Rahmen des Verbundprojektes erreicht werden.

Die Arbeiten der Arbeitsgruppe Bart verfolgen das Ziel, gerührte Extraktionskolonnen auf Basis von Einzeltropfenexperimenten und Tropfenschwarmexperimenten zu modellieren und zu simulieren. In der Praxis werden Extraktionskolonnen meist durch stark vereinfachte Modelle angenähert, welche das reale Verhalten der beteiligten Phasen, vor allem der dispersen Phase, nicht genau beschreiben. Ein viel versprechender Ansatz zur Entwicklung eines Simulationsprogramms für gerührte Extraktionskolonnen stellt das bivariate Tropfenpopulationsbilanzmodell (BTPBM) dar. Das Modell beschreibt die axiale Entwicklung des Hold-up, der Tropfengrößenverteilung sowie der Wertstoffmassenverteilung. Zur Entwicklung des Simulationsprogramms LLECMOD, das auf dem BTPBM-Ansatz basiert, wurden von der Arbeitsgruppe Bart grundlegende Untersuchungen zum Einzeltropfenzerfall und zur Koaleszenz in gerührten Extraktionskolonnen unter Berücksichtigung des Geometrie-, Energie- und Stoff-

systemeinflusses durchgeführt. Für den Einzeltropfenzerfall konnte eine neue Modellgleichung unter Berücksichtigung der oben genannten Einflussfaktoren entwickelt werden. Hinsichtlich der Tropfen-Tropfen-Koaleszenz wurden geeignete Parameter für die untersuchten Geometrien und Stoffsysteme über die Lösung des inversen Problems des Tropfenpopulationsmodells bestimmt. Zur Beschreibung der Fluidodynamik konnten die neu entwickelten Modelle der Arbeitsgruppe Stichlmair herangezogen werden. Die Simulationsergebnisse für gerührte Extraktionskolonnen im Technikumsmaßstab zeigen, dass die Hydrodynamik und der Stoffaustausch gerührter Extraktionskolonnen mit guter Genauigkeit beschrieben werden können.

Durch die enge Zusammenarbeit zwischen den einzelnen Arbeitsgruppen konnten die Kompetenzen der einzelnen Gruppen ideal ausgeschöpft werden. Zusätzlich konnten durch die Untersuchungen mit Tropfenschwärmen in unterschiedlichen Extraktionskolonnen durch die Arbeitsgruppe Stichlmair die entwickelten Simulationsprogramme der Arbeitsgruppe Pfennig und der Arbeitsgruppe Bart überprüft und optimiert werden. Der Vergleich der mit den Simulationsprogrammen ReDrop und LLECMOD berechneten fluiddynamischen Größen (Tropfengrößenverteilung, Hold-up, ...) und der berechneten Konzentrationsprofile mit den experimentellen Ergebnissen macht deutlich, dass die Modellierung unterschiedlicher Extraktionskolonnen erheblich verbessert werden konnte. Die Simulationsergebnisse für gerührte Extraktionskolonnen der Bauart RDC und Kühni sowie für pulsierte Siebboden- und Packungskolonnen zeigen, dass auf Basis der entwickelten Modellgleichungen aus Einzeltropfenuntersuchungen die Fluidodynamik und der Stoffaustausch in unterschiedlichen Extraktionskolonnen mit guter Genauigkeit beschrieben werden kann.

Die Dimensionierung von Flüssig-Flüssig-Extraktionskolonnen kann durch die entwickelten Simulationsprogramme basierend auf Einzeltropfenexperimenten erfolgen. Die Auslegung einer Extraktionskolonne wird dadurch nicht nur kostengünstiger, sondern es wird dem planenden Ingenieur ein schlagkräftiges Werkzeug zur Auswahl des optimalen Kolonnentyps für eine bestimmte Trennaufgabe und zur Dimensionierung der entsprechenden Extraktionskolonne zur Verfügung gestellt. Die neue Auslegungsmethode, durch die Extraktionskolonnen auf der Basis von Einzeltropfenexperimenten dimensioniert werden können, hilft dabei vor allem klein- und mittelständischen Apparatebau-Unternehmen und Produktionsbetrieben, die über keine geeigneten Technikumsanlage verfügen. Insgesamt ermöglicht das neue Auslegungskonzept eine flexiblere Dimensionierung sowie eine Prozessoptimierung und Kostenabschätzung in einer frühen Planungsphase bei der Entwicklung eines Extraktionsprozesses.

Aktenzeichen der MV

**Gliederung für den Schlussbericht zum Forschungsvorhaben  
im Rahmen des Initiativ-Programmes  
„Zukunftstechnologien für kleine und mittlere Unternehmen“:**

**Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne**

	Seite
1 <u>Forschungsthema</u> .....	1
2 <u>Wissenschaftlich-technische und wirtschaftliche Problemstellung</u> .....	1
3 <u>Forschungsziel / Lösungsweg / Ergebnisse</u> .....	2
3.1 Forschungsziel .....	2
3.1.1 Angestrebte Forschungsergebnisse .....	2
3.1.2 Innovativer Beitrag der angestrebten Forschungsergebnisse .....	3
3.2 Lösungsweg und Ergebnisse der AG Stichlmair .....	4
3.2.1 Lösungsweg .....	4
3.2.2 Ergebnisse – Fluidodynamik .....	8
3.2.3 Ergebnisse – Stoffübergang .....	21
3.3 Lösungsweg und Ergebnisse der AG Pfennig .....	28
3.3.1 Lösungsweg .....	28
3.3.2 Ergebnisse .....	30
3.4 Lösungsweg und Ergebnisse der AG Bart .....	48
3.4.1 Lösungsweg .....	48
3.4.2 Ergebnisse – Tropfenpopulationsbilanzmodell und die LLECMOD-Simulation .....	48
3.4.3 Ergebnisse – Einzeltropfen- und Tropfenschwarmuntersuchungen .....	52
3.4.4 Ergebnisse – Simulationsrechnungen .....	61
3.5 Zusammenwirken der Projekte, Synergismen des Verbundes .....	68

4	<u>Gegenüberstellung der Ergebnisse mit den Zielsetzungen des Antrages</u> .....	70
4.1	AG Stichtmair .....	70
4.2	AG Pfennig .....	72
4.3	AG Bart .....	74
5	<u>Hinweis auf Förderung</u> .....	76
6	<u>Durchführende Forschungsstellen</u> .....	76
7	<u>Verzeichnis der verwendeten Formelzeichen</u> .....	77
8	<u>Literaturverzeichnis</u> .....	82
9	<u>Vorträge und Veröffentlichungen</u> .....	88
9.1	AG Pfennig .....	88
9.2	AG Bart .....	89

## **1      Forschungsthema**

Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne.

## **2      Wissenschaftlich-technische und wirtschaftliche Problemstellung**

Die sichere Auslegung von Flüssig-Flüssig-Extraktionskolonnen erfordert in der Regel experimentelle Untersuchungen mit den Originalflüssigkeiten im Technikumsmaßstab. Diese Methode ist mit einem hohen Arbeitskräfteeinsatz sowie Zeitaufwand verbunden und setzt unumgänglich beträchtliche Mengen an Originalflüssigkeiten voraus, die aber vor oder während der Planungsphase nicht immer oder nur mit hohem Aufwand bereitgestellt werden können. Somit ist eine sichere Auslegung von Extraktionskolonnen insbesondere für kleine und mittlere Unternehmen sowie für Ingenieurbüros teuer und aufwändig. Das wirtschaftliche Potenzial der Extraktion wird nur unzureichend ausgeschöpft.

Um Extraktionskolonnen schneller, effizienter, kostengünstiger und mit geringen Mengen an Originalflüssigkeiten auslegen und fertigen zu können, wird daher in diesem AiF-Verbundprojekt das Konzept verfolgt, nur auf der Basis von Einzeltropfenuntersuchungen in Labormesszellen und mit dazugehörigen Simulationen ein neues Dimensionierungsverfahren zu entwickeln.

Die Forschungsanstrengungen zielen darauf ab, das Verhalten von Einzeltropfen und Tropfenschwärmen in Labormesszellen und an charakteristischen Kolonnenelementen (z.B. Rührzelle, ein bis drei Siebböden, kurze Packungen) im Labor zu ermitteln. Damit sollen die wesentlichen Eigenschaften des Stoffsystems in Bezug auf Sedimentation, Stoffaustausch sowie Tropfenspaltung und -koaleszenz korrekt erfasst werden. Aus diesen Experimenten wird dann mit geeigneten Modellen der großtechnische Extraktor dimensioniert. Dieses Konzept setzt jedoch voraus, dass die maßgeblichen Mechanismen an Einzeltropfen – z.B. die Tropfenbewegung – zuverlässig modelliert und die Modelle wirkungsvoll zu einem Gesamtmodell zur Beschreibung von Extraktionskolonnen zusammengefügt werden können. Zudem erlangt die Realisierung des Konzeptes erst dann wirtschaftliche Relevanz, wenn unterschiedliche Kolonnentypen basierend auf den gleichen Laborexperimenten mit einem einheitlichen Satz von Einzelmodellen beschrieben werden. Dann erst kann auch die Auswahl des geeigneten Kolonnentyps modellgestützt erfolgen.

### 3 Forschungsziel, Lösungsweg, Ergebnisse

#### 3.1 Forschungsziel

Ziel des Forschungsverbundes ist es, das Modellkonzept der auf Einzeltropfenexperimenten basierenden Kolonnenauslegung zu einem praktikablen und schlagkräftigen Werkzeug auszubauen, so dass es dem planenden Ingenieur möglich ist, einen optimierten Kolonnentyp auszuwählen und diesen sicherer zu dimensionieren. Das neue Konzept ist in Abb. 1 dargestellt. Die Auswahl des optimalen Extraktionsapparates erfolgt nicht wie bisher vorwiegend erfahrungsbasiert, sondern wissensbasiert aufbauend auf den Ergebnissen der Laborversuche, mit denen unterschiedliche Apparatetypen rechnerisch ausgelegt und die Trennwirkungen vergleichend beurteilt werden können.

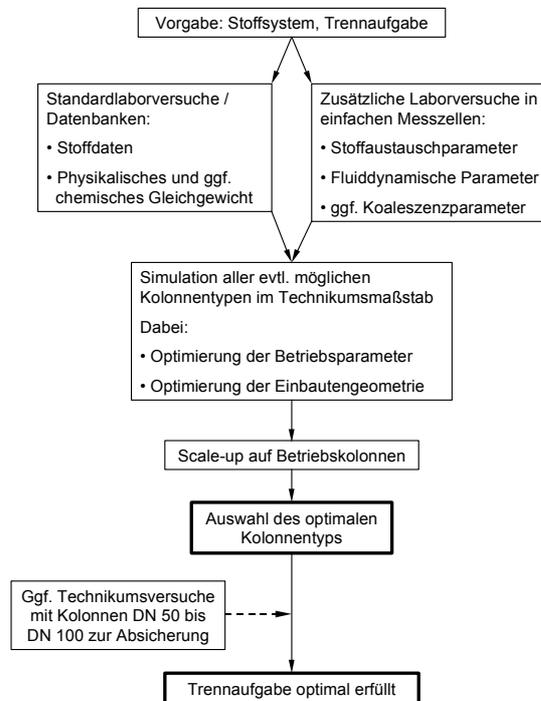


Abb. 1: Schematische Darstellung des neuen Auslegungskonzeptes

#### 3.1.1 Angestrebte Forschungsergebnisse

Um dieses Gesamtziel zu erreichen, werden in unterschiedlichen Arbeitsgruppen projektrelevante Themen bearbeitet, wobei die jeweilige Kompetenz der Gruppen besonders berücksichtigt wird. Die Bezüge zwischen den Projekten sind in Abb. 2 in einem Quadrat schematisch skizziert. Bei der AG Pfennig und der AG Bart sind die Arbeiten auf pulsierte bzw. gerührte Kolonnen konzentriert, für die eine Kolonnenmodellierung entwickelt werden soll. Dabei

sollen die grundlegenden Detailmodelle zu Stofftransport, Fluidodynamik am Tropfen, Spaltung und Koaleszenz sowie die Bedienung der Modellierungsprogramme für die unterschiedlichen Kolonnentypen weitestgehend einheitlich gestaltet sein. Von der AG Stichlmair sollen die Wechselwirkungen zwischen den Tropfen untereinander im Schwarm und mit den Einbauten gezielt untersucht und modelliert werden. Diese Ergebnisse werden in die Simulationsprogramme für die Kolonnen integriert. Von der AG Pfennig und der AG Bart werden parallel Untersuchungen an Einzeltropfen in Labormesszellen durchgeführt, um eine umfassende Charakterisierung der Stoffsysteme Toluol + Wasser + Aceton, n-Butylacetat + Wasser + Aceton sowie Isotridecanol + Wasser + 1-Propanol sicherzustellen.

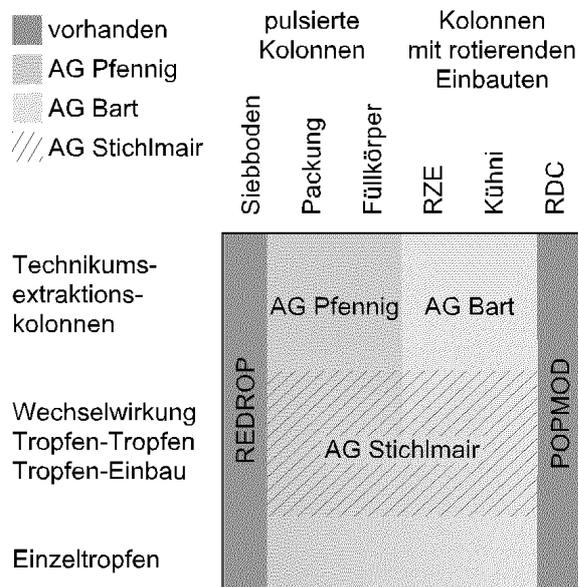


Abb. 2: Schematische Darstellung des Projektverbundes

### 3.1.2 Innovativer Beitrag der angestrebten Forschungsergebnisse

Die neue Auslegungsmethode eröffnet die Möglichkeit zur Dimensionierung von Extraktionskolonnen unterschiedlicher Bauform auf der Basis von Einzeltropfenexperimenten. Damit wird ein neues Konzept zur zuverlässigen Extraktordimensionierung realisiert. Erhebliche Einsparungen an Entwicklungszeit und -kosten stehen dabei im Vordergrund. Ein weiterer Aspekt ist die gegenüber Technikumsversuchen wesentlich reduzierte Menge an benötigten Originalflüssigkeiten. Es sind nur noch Labor- oder Miniplantanlagen erforderlich. Dies trägt im Falle toxischer oder feuergefährlicher Stoffe auch zur Minimierung des Gefährdungspotenzials bei. Diese innovative Methode ermöglicht es auch kleinen und mittleren Unternehmen, solche Auslegungen sicher und kostengünstig durchzuführen.

## 3.2 Lösungsweg und Ergebnisse der AG Stichlmair

### 3.2.1 Lösungsweg

Die Aufgabe der **AG Stichlmair (TU München)** im Verbundprojekt besteht vor allem darin, den **Schwarmeinfluss, d. h. den Übergang vom Einzeltropfen zum Tropfenschwarm, hinsichtlich der Fluidodynamik und des Stoffübergangs in unterschiedlichen Extraktionsapparaten zu bestimmen und entsprechende Berechnungsmodelle zu entwickeln.** Die Bestimmung des Schwarmeinflusses auf die Fluidodynamik, insbesondere auf den Hold-up in Extraktionskolonnen, ist von entscheidender Bedeutung. Die Kenntnis des Hold-up lässt nicht nur Aussagen über den maximalen Durchsatz durch einen Extraktionsapparat zu, sondern ermöglicht auch die Berechnung der Trennleistung der Kolonne.

#### 3.2.1.1 Bestimmung des Schwarmeinflusses auf die Fluidynamik bzw. den Hold-up in unterschiedlichen Extraktionskolonnen

In der Vergangenheit wurde der Einfluss des Schwarms auf die Bewegung einzelner kugelförmiger Feststoffpartikel in Apparaten ohne Einbauten, d. h. in einer unbehinderten Strömung, detailliert untersucht (*Richardson und Zaki 1954, Anderson 1961, etc.*). In Extraktionskolonnen liegt jedoch eine behinderte Strömung vor. Zu Beginn des Projektes wurde deshalb der Schwarmeinfluss auf die Bewegung einzelner starrer Partikel und somit den Hold-up bei behinderter Strömung, d. h. in einer Kolonne mit Einbauten untersucht. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen zeigen, dass der Hold-up in unterschiedlichen Extraktionskolonnen mit Hilfe der Gesetzmäßigkeiten, die für starre Partikelsysteme entwickelt wurden, durch geringe Modifikationen berechnet werden kann.

Das Modell zur Beschreibung des Einflusses des Schwarms auf die Bewegung starrer Partikel wurde bereits im *Zwischenbericht 2001* und *Zwischenbericht 2002* vorgestellt. Die grundlegenden Modellgleichungen zur Beschreibung des Schwarmeinflusses auf die Partikelbewegung bei unbehinderter Strömung lauten:

$$w_{rs} = \frac{w_d}{\varepsilon_d} + \frac{w_c}{1 - \varepsilon_d} \quad \text{bzw.} \quad w_s = w_{rs} \cdot (1 - \varepsilon_d) = w_d \cdot \frac{1 - \varepsilon_d}{\varepsilon_d} + w_c \quad (1)$$

Gl. (1) wird in der Literatur oft als Partikel-Modell bezeichnet, mit dem die relative Schwarmgeschwindigkeit  $w_{rs}$  der Partikel in Abhängigkeit der Leerrohrgeschwindigkeit der dispersen Phase  $w_d$  sowie der kontinuierlichen Phase  $w_c$  und dem Hold-up  $\varepsilon_d$  berechnet werden kann. Die Leerrohrgeschwindigkeit der Partikel im Schwarm  $w_s$  kann durch die Relativgeschwindigkeit  $w_{rs}$  und dem Hold-up  $\varepsilon_d$  ermittelt werden.

Um den Hold-up  $\varepsilon_d$  mit Hilfe des Partikel-Modells bestimmen zu können, muss die Schwarmgeschwindigkeit  $w_s$  bekannt sein. In der Literatur sind eine Reihe von Ansätzen zur Berechnung der Schwarmgeschwindigkeit  $w_s$  zu finden. Eine relativ einfache und praktikable Möglichkeit zur Ermittlung der Schwarmgeschwindigkeit bietet das Modell von *Richardson und Zaki 1954*:

$$w_s = w_o \cdot (1 - \varepsilon_d)^n \tag{2}$$

Die Schwarmgeschwindigkeit  $w_s$  wird demnach mit Hilfe der Geschwindigkeit eines Einzelpartikels  $w_o$ , dem Hold-up und dem Schwarmexponenten  $n$  bestimmt. Das Problem dieser Gleichung ist die Kenntnis des Exponenten  $n$ . Richardson und Zaki geben hierfür aufgrund zahlreicher Untersuchungen mit starren Partikelsystemen unterschiedliche Berechnungsvorschriften zur Bestimmung des Exponenten  $n$  an, siehe Abb. 3. Der Schwarmexponent  $n$  bzw. der Schwarmeinfluss lässt sich in Abhängigkeit der Reynoldszahl  $Re_o$  eines Einzelpartikels berechnen.

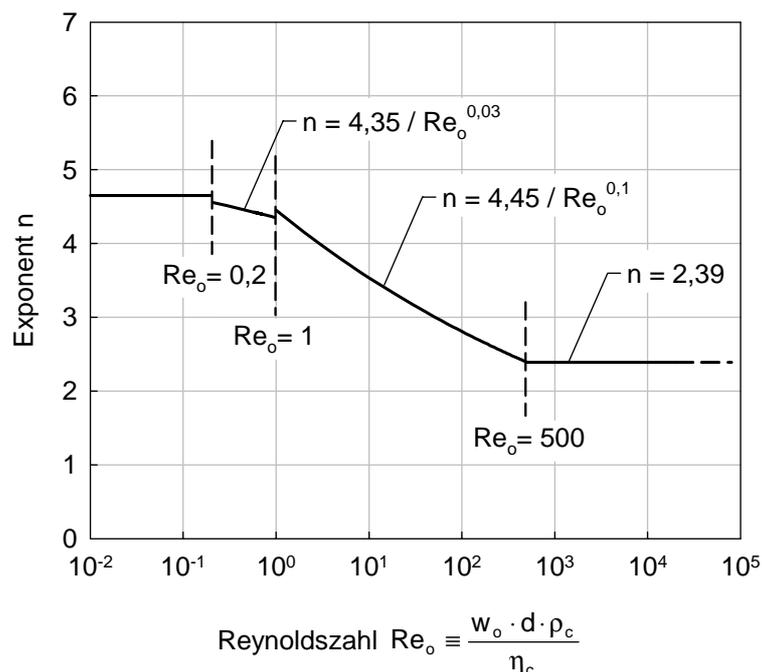


Abb. 3: Schwarmexponent nach Richardson und Zaki

Durch die Bestimmung des Schwarmeinflusses nach Richardson und Zaki kann der Hold-up iterativ berechnet werden. Dabei ist zu beachten, dass das Modell für eine unbehinderte Strömung, also für eine Kolonne ohne Einbauten, hergeleitet wurde. Durch die Einbauten in Extraktionskolonnen liegt aber eine behinderte Strömung vor. Unter Berücksichtigung der folgenden Punkte kann dieses Modell auf eine behinderte Strömung übertragen werden:

- Für die Berechnung der Schwarmgeschwindigkeit  $w_s$  muss die Endaufstiegsgeschwindigkeit  $w'_o$  eines Einzelpartikels bei behinderter Strömung (z. B. in einer Kolonne mit den entsprechenden Einbauten) verwendet werden.
- Der Schwarmexponent  $n$  muss an die jeweiligen Endaufstiegsgeschwindigkeiten angepasst werden und kann mit Hilfe der Berechnungsvorschriften von Richardson und Zaki bestimmt werden.

Die Überprüfung der Übertragbarkeit dieses Modells auf Extraktionskolonnen mit unterschiedlichen Einbauten zeigt, dass der Hold-up von starren Partikelschwärmen mit Hilfe der Endaufstiegsgeschwindigkeiten  $w'_o$  starrer Einzelpartikel in der entsprechenden Kolonne gut berechnet werden kann, siehe *Zwischenbericht 2002* und *Zwischenbericht 2003*.

Der Hold-up in Flüssig/flüssig-Extraktionskolonnen, also von fluiden Partikelschwärmen, kann durch die gleiche Vorgehensweise bestimmt werden. Die Berechnung des Hold-up erfolgt wiederum durch die Endaufstiegsgeschwindigkeiten  $w'_o$  von einzelnen fluiden Partikeln (Tropfen) in der entsprechenden Extraktionskolonne. Die zur Berechnung notwendigen Endaufstiegsgeschwindigkeiten  $w'_o$  von Einzeltropfen in einer Kolonne mit Einbauten sind aus früheren Untersuchungen bekannt und wurden bereits im *Zwischenbericht 2003* für die binären Stoffgemische Wasser/Toluol und Wasser/Butylacetat vorgestellt. Der Schwarmeinfluss auf die Bewegung einzelner Tropfen kann durch ähnliche Gesetzmäßigkeiten wie für starre Partikelsysteme berechnet werden (siehe Abb. 3).

### 3.2.1.2 Bestimmung des Stoffübergangs in Einzeltropfen und Tropfenschwärme

Die Untersuchungen zum Stoffübergang in einzelne Tropfen und Tropfenschwärme dienen vor allem der Bestimmung der Haupteinflussgrößen auf den Stofftransport in unterschiedlichen Extraktionskolonnen. Die Ergebnisse der Messungen mit einzelnen Tropfen erlauben sowohl

qualitative als auch quantitative Aussagen über den Einfluss unterschiedlicher Kolonneneinbauten und Betriebsbedingungen. Die Untersuchungen zum Stoffübergang in Tropfenschwärmen verfolgen hauptsächlich das Ziel, die durch die enge Zusammenarbeit der beteiligten Arbeitsgruppen entwickelten Modellierungsprogramme „ReDrop“ und „LLECMOD“ zur Dimensionierung von Extraktionskolonnen zu überprüfen und gegebenenfalls zu optimieren.

### Stoffübergang in Einzeltropfen

Die Untersuchungen zum Stoffübergang in einzelne Tropfen werden in einer Einzeltropfenapparatur durchgeführt. Eine detaillierte Beschreibung der Apparatur befindet sich im *Zwischenbericht 2003*. Die Auswertung der einzelnen Messungen erfolgt mit einem Zwei-Messstellenverfahren. Bei diesem Verfahren wird die Konzentration der Tropfenphase vor Eintritt und nach Austritt aus der Messstrecke gemessen. In der Messstrecke befinden sich die entsprechenden Einbauten, z. B. geordnete Packungen, Siebböden oder Rührzellen mit unterschiedlichen Rührorganen.

Mit Hilfe dieser Messmethode kann der Stoffdurchgangskoeffizient  $\beta_{od}$ , der sich aufgrund des Stofftransportes von der kontinuierlichen Phase in die einzelnen Tropfen innerhalb der Messstrecke  $L$  ergibt, wie folgt berechnet werden:

$$\beta_{od} = \frac{d_{Tr}}{6 \cdot t} \cdot \ln \left( \frac{y^* - y_1}{y^* - y_2} \right) \quad (3)$$

Der Stoffdurchgangskoeffizient  $\beta_{od}$  wird dabei in Abhängigkeit des Tropfendurchmessers  $d_{Tr}$ , der Verweilzeit  $t$  des Tropfens innerhalb der Messstrecke  $L$ , der Gleichgewichtskonzentration  $y^*(x_\infty)$  der Tropfenphase zur Konzentration der kontinuierlichen Phase  $x_\infty$  und den Konzentrationen der Tropfenphase vor Eintritt ( $y_1$ ) und nach Austritt ( $y_2$ ) aus der Messstrecke berechnet. Dieses Messverfahren hat sich zur Analyse der auftretenden Phänomene beim Stoffübergang in einzelne Tropfen bewährt und wurde unter anderem von *Qi 1992*, *Hoting 1996* und *Wagner 1996* zur Beurteilung der maßgeblichen Einflussparameter auf die Stofftransportprozesse in Einzeltropfen verwendet.

## Stoffübergang in Tropfenschwärmen

Die Durchführung der Untersuchungen zum Stofftransport in Tropfenschwärmen dient zum einen zur Bestimmung der Abhängigkeit der Trennleistung von unterschiedlichen Betriebsbedingungen in verschiedenen Extraktoren und zum anderen zur Überprüfung der in den beteiligten Arbeitsgruppen entwickelten Modellierungsprogrammen. Die Vergleiche der mit Hilfe der Modellierungsprogramme „ReDrop“ und „LLECMOD“ berechneten fluiddynamischen Größen und der berechneten Konzentrationsprofile mit den tatsächlich gemessenen Größen befinden sich in dem Kapitel 3.3 und Kapitel 3.4.

Die im folgenden vorgestellten Ergebnisse zeigen die Abhängigkeit der Trennleistung einer Extraktionskolonne bei unterschiedlichen Betriebsbedingungen. Die Trennleistung einer Extraktionskolonne kann mit Hilfe des Stufenmodells ermittelt werden. Die Anzahl an theoretischen Trennstufen  $n$  lässt sich wie folgt berechnen:

$$n = \frac{1}{\ln \lambda} \cdot \ln \left( \frac{K-1}{\lambda \cdot K-1} \right) \quad \text{mit } \lambda = \frac{m}{\dot{M}_c / \dot{M}_d} \quad \text{und} \quad K = \frac{X_{ein} - X_{aus}}{X_{ein} - X_{aus}^*} \quad (4)$$

Der Extraktionsfaktor  $\lambda$  kann in Abhängigkeit des Gleichgewichtskoeffizienten  $m$  und den Massenströmen  $\dot{M}_c$  und  $\dot{M}_d$  berechnet werden. Der Parameter  $K$  wird durch den Quotienten der Massenbeladungen der eintretenden bzw. austretenden kontinuierlichen Phase sowie der Gleichgewichtsbeladung der kontinuierlichen Phase am Austritt aus der Extraktionskolonne ermittelt. Die Trennleistung der Extraktionskolonne kann durch die Anzahl an Trennstufen bezogen zur aktiven Höhe  $H_{ak}$  bestimmt werden:

$$\text{Anzahl an Trennstufen pro Meter} = \frac{n}{H_{ak}} \quad (5)$$

### 3.2.2 Ergebnisse - Fluidynamik

Die Arbeiten der AG Stichtmair beschäftigen sich mit der Untersuchung der Fluidynamik und des Stoffübergangs sowohl in einer pulsierten Siebboden- und einer geordneten Packungskolonne als auch in einer gerührten RDC- bzw. Kühni-Kolonne. In dem Kapitel 3.2.2 werden zunächst die Ergebnisse zur Fluidynamik vorgestellt, wohingegen das nächste Kapitel 3.2.3 den Stoffübergang beleuchtet. In den folgenden Kapiteln werden exemplarisch die Ergebnisse der Untersuchungen in einer pulsierten geordneten Packungskolonne sowie in einer gerührten RDC-Kolonne beschrieben.

Ein wichtiger Schritt bei der Dimensionierung einer Extraktionskolonne ist die korrekte Modellierung des Schwarmeinflusses auf die Fluidodynamik. Der Schwarm beeinflusst die Bewegung der einzelnen Tropfen und dadurch den Hold-up der Extraktionskolonne. Durch die Tropfengrößenverteilung sowie dem Hold-up in der Kolonne wird die Stoffaustauschfläche bestimmt, die die Trennleistung eines Extraktionsapparates stark beeinflusst. Nur eine exakte Bestimmung der Fluidodynamik und vor allem eine genaue Modellierung des Hold-up ermöglicht eine korrekte Vorhersage sowohl des maximalen Durchsatzes als auch der Trennleistung einer Extraktionskolonne.

Die Bestimmung des Hold-up erfolgt in einer Flüssig/flüssig-Extraktionskolonne mit dem in Kapitel 3.2.1.1 beschriebenen Modellkonzept. Bei dieser Vorgehensweise wird in einem ersten Schritt die freie Endaufstiegsgeschwindigkeit einzelner Tropfen experimentell bestimmt. Den Verlauf der freien Endaufstiegsgeschwindigkeit über dem Durchmesser für unterschiedliche Stoffsysteme zeigt Abb. 4. Im Diagramm ist die dimensionslose Geschwindigkeit  $\pi_{w_o}$  über dem dimensionslosen Partikeldurchmesser  $\pi_d$  aufgetragen.

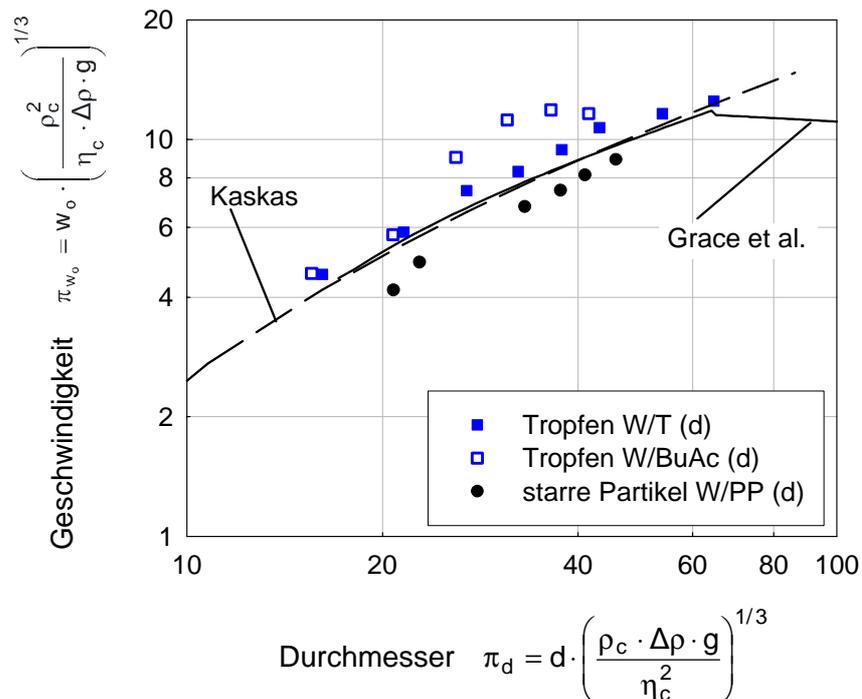


Abb. 4: Freie Endaufstiegsgeschwindigkeiten einzelner Partikel

Die einzelnen Tropfen des Stoffsystems Toluol/Wasser zeigen in dem untersuchten Durchmesserbereich einen konstanten Anstieg der Aufstiegsgeschwindigkeit mit zunehmendem Durchmesser. Die Butylacetat-Tropfen weisen trotz einer etwas geringeren Dichtedifferenz  $\Delta\rho$  höhere Geschwindigkeiten auf als die Toluol-Tropfen. Im Diagramm sind zusätzlich zu den gemessenen Geschwindigkeiten der Einzeltropfen die gemessenen Geschwindigkeiten von starren Polypropylen-Partikel eingetragen. Die Aufstiegsgeschwindigkeiten der Toluol-Tropfen zeigen ein ähnliches Verhalten wie die starren Polypropylen-Partikel, wobei sich die Toluol-Tropfen im gesamten Durchmesserbereich etwas schneller bewegen. Abweichend vom Verhalten starrer Partikel besitzen die Butylacetat-Tropfen eine schnellere Aufstiegsgeschwindigkeit vor allem im Bereich größerer Partikeldurchmesser. Der überproportionale Anstieg der Geschwindigkeiten der Butylacetat-Tropfen im Vergleich zu den starren Polypropylen-Partikel macht die Auswirkungen zirkulierender Strömungen im Tropfen sowie der Beweglichkeit der Tropfenhaut deutlich. Eine detaillierte Beschreibung der freien Endaufstiegsgeschwindigkeiten von Einzeltropfen für die verwendeten Stoffsysteme Wasser/Aceton/Toluol und Wasser/Aceton/Butylacetat befindet sich im *Zwischenbericht 2003*.

In einem zweiten Schritt wird der Einfluss unterschiedlicher Kolonneneinbauten und Betriebsbedingungen auf die Endaufstiegsgeschwindigkeit eines Einzeltropfens ermittelt. Das Verhältnis der Endaufstiegsgeschwindigkeit eines Tropfens in einer Kolonne mit Einbauten bezogen zur freien Endaufstiegsgeschwindigkeit  $w'_o/w_o$  wird durch Messungen in einer Einzeltropfenapparatur bestimmt. Durch die Berechnung des Schwarmexponenten  $n$  und der Schwarmgeschwindigkeit  $w_s$  kann dann mit Hilfe des Zweischichten-Modells der Hold-up in der entsprechenden Kolonne berechnet werden.

### 3.2.2.1 Geordnete Packung

Die Untersuchungen in den pulsierten Packungskolonnen werden mit einer geordnete Packung der Firma Montz GmbH (Montz-Pak Typ B1-350) durchgeführt. Die Packung besitzt eine Lagenhöhe von 100 mm und eine volumenbezogene Oberfläche  $a_{geo}$  von  $350 \text{ m}^2/\text{m}^3$ . Diese Packung wird auch in der AG Pfennig zur Bestimmung der entscheidenden Parameter für die Modellierung einer geordneten Packungskolonne eingesetzt.

## Einzeltropfen

Die Geschwindigkeit eines Tropfens durch eine geordnete Packungskolonne wird vor allem durch den Tropfendurchmesser, die Geometrie der Packung und die Betriebsbedingungen in der Kolonne beeinflusst. Die zu berücksichtigenden Geometriedaten der Packung zur Berechnung der Geschwindigkeit eines Einzeltropfens sind die Lagenhöhe  $H_P$  sowie die volumenbezogene Oberfläche  $a_{geo}$  der Packung. Zusätzlich wirkt sich die Pulsationsintensität  $a \cdot f$  auf die Geschwindigkeit der einzelnen Tropfen aus. Aufgrund der Analyse der eigenen Messergebnisse sowie der Ergebnisse von *Hoting 1996* und *Leu 1995* kann die Endaufstiegsgeschwindigkeit eines Einzeltropfens in einer Packungskolonne bezogen zur freien Endaufstiegsgeschwindigkeit wie folgt berechnet werden:

Für  $1, 0 \leq d_{Tr} [\text{mm}] \leq 4, 5$  gilt

$$\frac{w'_o}{w_o} = C_1 \cdot \left( H_P \cdot \left[ \frac{\rho_c \cdot \Delta\rho \cdot g}{\eta_c^2} \right]^{1/3} \right)^{C_2} \cdot \left( a_{geo} \cdot \left[ \frac{\eta_c^2}{\rho_c \cdot \Delta\rho \cdot g} \right]^{1/3} \right)^{C_3} \cdot \left( d_{Tr} \cdot \left[ \frac{\rho_c \cdot \Delta\rho \cdot g}{\eta_c^2} \right]^{1/3} \right)^{C_4} \cdot \left( \sigma \cdot \left[ \frac{\rho_c^2}{\eta_c^4 \cdot \Delta\rho \cdot g} \right]^{1/3} \right)^{C_5} \cdot \left( 1 + a \cdot f \cdot \left[ \frac{\rho_c^2}{\eta_c \cdot \Delta\rho \cdot g} \right]^{1/3} \right)^{C_6} \quad (6)$$

mit

$$\begin{aligned} C_1 &= 0,077 & C_3 &= -0,566 & C_5 &= 0,184 \\ C_2 &= 0,138 & C_4 &= -0,769 & C_6 &= 0,080 \end{aligned}$$

Der Einfluss des Tropfendurchmessers und der Pulsationsintensität auf die Aufstiegsgeschwindigkeiten konnte durch die große Anzahl an Messungen in der eigenen Einzeltropfenapparatur ermittelt werden. Die Ergebnisse der Untersuchungen zeigen, dass sowohl der Tropfendurchmesser, die volumenbezogene Oberfläche der Packung als auch die Pulsationsintensität den Tropfenaufstieg in der Packungskolonne maßgeblich bestimmen.

Der Vergleich der berechneten Geschwindigkeiten mit den gemessenen Geschwindigkeiten ist in Abb. 5 zu sehen. Mit Hilfe von Gl. (6) kann der Tropfenaufstieg sowohl für das Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol als auch für das Stoffsystem Wasser/Aceton/Butylacetat in einer geordneten Packungskolonne sehr gut beschrieben werden. Insgesamt ergibt sich eine relativ

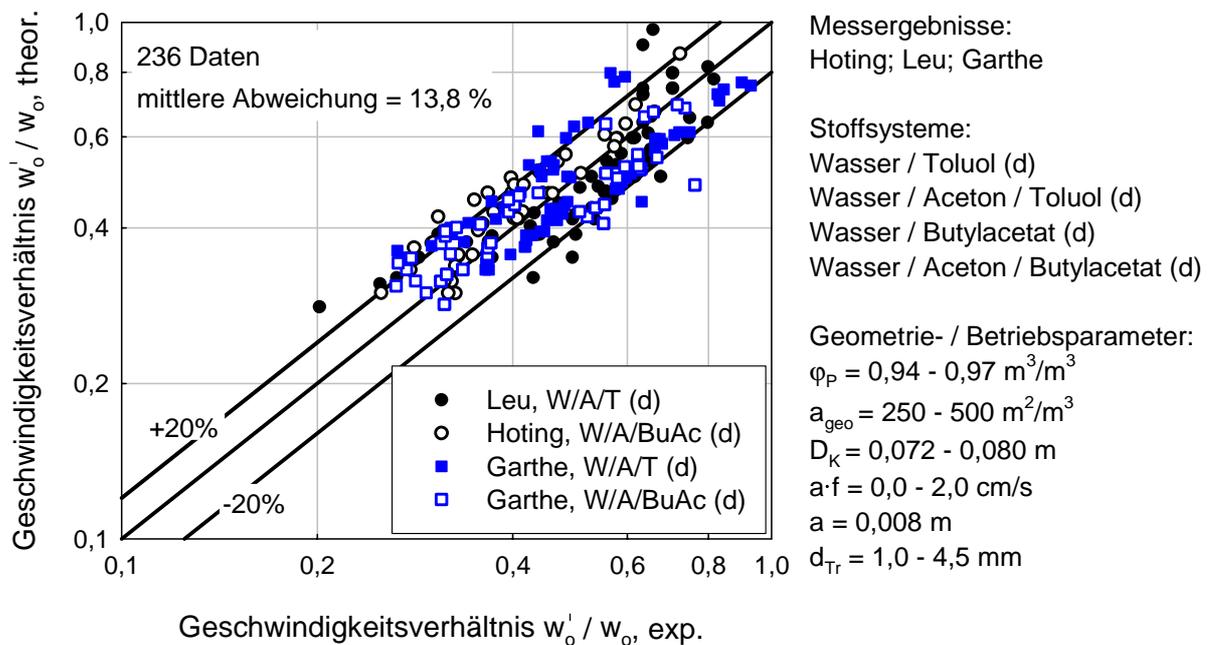


Abb. 5: Endaufstiegsgeschwindigkeiten einzelner Tropfen, geordnete Packungskolonne

geringe Abweichung zwischen den berechneten und den gemessenen Geschwindigkeiten  $w'_o/w_o$ . Die gute Übereinstimmung zeigt sich dabei nicht nur beim Vergleich mit den eigenen Messdaten, sondern auch beim Vergleich mit den Messdaten von Hoting und Leu.

### Hold-up von Tropfenschwärmen

Die Berechnung des Hold-up mit Hilfe des in Kapitel 3.2.1.1 beschriebenen Modellkonzepts hängt wesentlich von der Güte der Berechnung der Einzeltropfengeschwindigkeit  $w'_o$  ab. Eine exakte Bestimmung der entscheidenden Einflussgrößen auf das Aufstiegsverhalten einzelner Tropfen in einer Packungskolonne ist eine grundlegende Voraussetzung, um den Hold-up in derartigen Extraktoren ermitteln zu können. Zusätzlich muss der Einfluss des Schwarms auf die Bewegung der einzelnen Tropfen korrekt erfasst werden. Der Schwarmeinfluss in geordneten Packungskolonnen kann durch den Schwarmexponenten  $n$  wie folgt berechnet werden:

$$n = 16,2 \cdot (Re(w'_o))^{-0,54} \quad \text{für } 1 < Re(w'_o) < 250 \quad (7)$$

Zur Überprüfung des Modellkonzepts zur Bestimmung des Hold-up durch Einzeltropfenexperimente können zum einen die Ergebnisse der Untersuchungen mit Tropfenschwärmen in der eigenen Technikumsanlage sowie veröffentlichte Messergebnisse aus der Literatur herangezogen werden. Den Vergleich des berechneten und experimentell bestimmten Hold-up für unterschiedliche geordnete Packungen, Stoffsysteme und

Betriebsbedingungen zeigt Abb. 6:

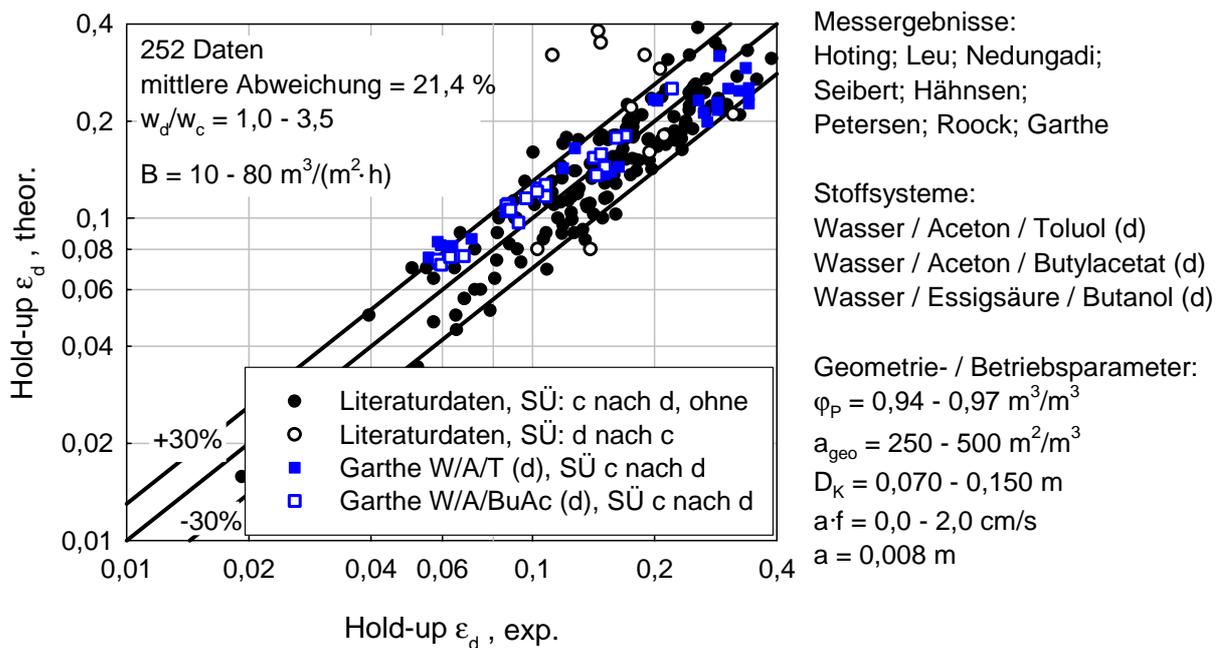


Abb. 6: Hold-up, geordnete Packungskolonne

Es wird deutlich, dass das Modell den Hold-up in unterschiedlichen Packungskolonnen gut beschreibt. Nicht nur die eigenen Messdaten, sondern auch die Daten einer größeren Anzahl unterschiedlicher Autoren (*Hoting 1996, Leu 1995, Nedungadi 1991, Seibert 1986, Petersen 1994, Hähnsen 1989, Roock 1985*) für verschiedene Stoffsysteme, Packungstypen und Betriebsbedingungen werden mit dem vorgestellten Modellkonzept gut wiedergegeben.

Während die Ergebnisse bei einer Stoffübergangsrichtung von der kontinuierlichen zur dispersen Phase bzw. bei den Versuchen mit abgesättigten Flüssigkeiten eine gute Übereinstimmung mit dem Modell erkennen lassen, zeigen die Messergebnisse bei einer Stoffübergangsrichtung von der dispersen zur kontinuierlichen Phase größere Abweichungen. Das ist vor allem auf die starke Koaleszenz, die bei einer Stoffübergangsrichtung von der dispersen zur kontinuierlichen Phase bei vielen Stoffsystemen auftritt, zurückzuführen. Die relativ großen Tropfen weisen ein deutlich unterschiedliches fluiddynamisches Verhalten auf, was sich durch große Streuungen und Abweichungen bei der Berechnung des Hold-up bemerkbar macht.

In industriellen Prozessen wird in der Regel eine Stoffübergangsrichtung von der kontinuierlichen zur dispersen Phase bevorzugt. Für diese Stoffübergangsrichtung zeigt das

Modell in einem großen Bereich der Pulsationsintensität, des Phasenverhältnisses und der Flüssigkeitsbelastung in unterschiedlichen Packungskolonnen eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten.

### 3.2.2.2 Rotating Disc Contactor

Die experimentellen Untersuchungen mit einzelnen Tropfen und Tropfenschwärmen erfolgen in der gerührten RDC-Kolonnen, genauso wie bei der pulsierten Packungskolonnen, mit Hilfe des Stoffsystems Wasser/Aceton/Toluol und des Stoffsystems Wasser/Aceton/Butylacetat. Die Berechnung des Hold-up in einer gerührten RDC-Kolonnen erfolgt dabei wiederum durch die Bestimmung des Einflusses der Kolonneneinbauten und der Betriebsbedingungen auf die Endaufstiegsgeschwindigkeiten einzelner Tropfen.

#### **Einzeltropfen**

Neben den Abmessungen des verwendeten Scheibenrührers spielen in einer RDC-Kolonnen die relative freie Statorfläche, die Rührzellenhöhe und die Rührerdrehzahl eine entscheidende Rolle bei der Berechnung der Endaufstiegsgeschwindigkeit eines Einzeltropfens. Durch die Auswertung der Messdaten von *Modes 1999, Fan et al. 1987* und den in der eigenen Einzeltropfenapparatur, siehe *Zwischenbericht 2003*, gemessenen Aufstiegsgeschwindigkeiten kann die Endaufstiegsgeschwindigkeit eines Einzeltropfens in einer RDC-Kolonnen wie folgt berechnet werden:

Für  $1, 0 \leq d_{Tr} \leq 4, 5$  gilt

$$\frac{w'_o}{w_o} = 1 + C_1 \cdot N_p^{C_2} + C_3 \cdot \left( \frac{d_{Tr}}{D_S - D_R} \right)^{C_4} + C_5 \cdot \left( \frac{H_c}{D_K} \right)^{C_6} \quad (8)$$

mit

$$C_1 = 0, 51 \quad C_3 = -0, 51 \quad C_5 = -0, 34$$

$$C_2 = 0, 36 \quad C_4 = 1, 04 \quad C_6 = -0, 57$$

Die dimensionslose Größe  $N_p$  in Gl. (8) berücksichtigt den Leistungseintrag des Rührers in die Kolonnen und kann mit Hilfe der von *Kumar und Hartland 1995* entwickelten Beziehung berechnet werden:

$$N_P = \frac{A_1}{Re_R} + A_2 \cdot \left( \frac{1000 + 1,2 \cdot Re_R^{A_3}}{1000 + 3,2 \cdot Re_R^{A_3}} \right)^{A_4} \quad (9)$$

mit

$$A_1 = 109,36 \quad A_3 = 0,72$$

$$A_2 = 0,74 \quad A_4 = 3,30$$

Gl. (8) besitzt eine ähnliche Struktur wie das Modell von *Modes 1999* zur Beschreibung der Verzögerung eines Einzeltropfens in einer RDC-Kolonne im Vergleich zur freien Endaufstiegsgeschwindigkeit. Das Modell von Modes hat aber den Nachteil, dass das Verhältnis der Geschwindigkeiten  $w'_o/w_o$  durch dimensionsbehaftete Größen berechnet wird, während Gl. (8) eine dimensionslose Beschreibung ermöglicht.

Mit Hilfe von Gl. (8) kann die Geschwindigkeit eines Tropfens in einer RDC-Kolonne in Abhängigkeit der entscheidenden Geometrie Größen, dem Tropfendurchmesser und dem Energieeintrag berechnet werden. Der Vergleich der berechneten und gemessenen Geschwindigkeiten ist in Abb. 7 zu sehen. Obwohl die Rührerdrehzahl, die Rührzellenhöhe und der Tropfendurchmesser in einem großen Bereich variieren, weichen die berechneten Geschwindigkeiten nur gering von den gemessenen Geschwindigkeiten ab.

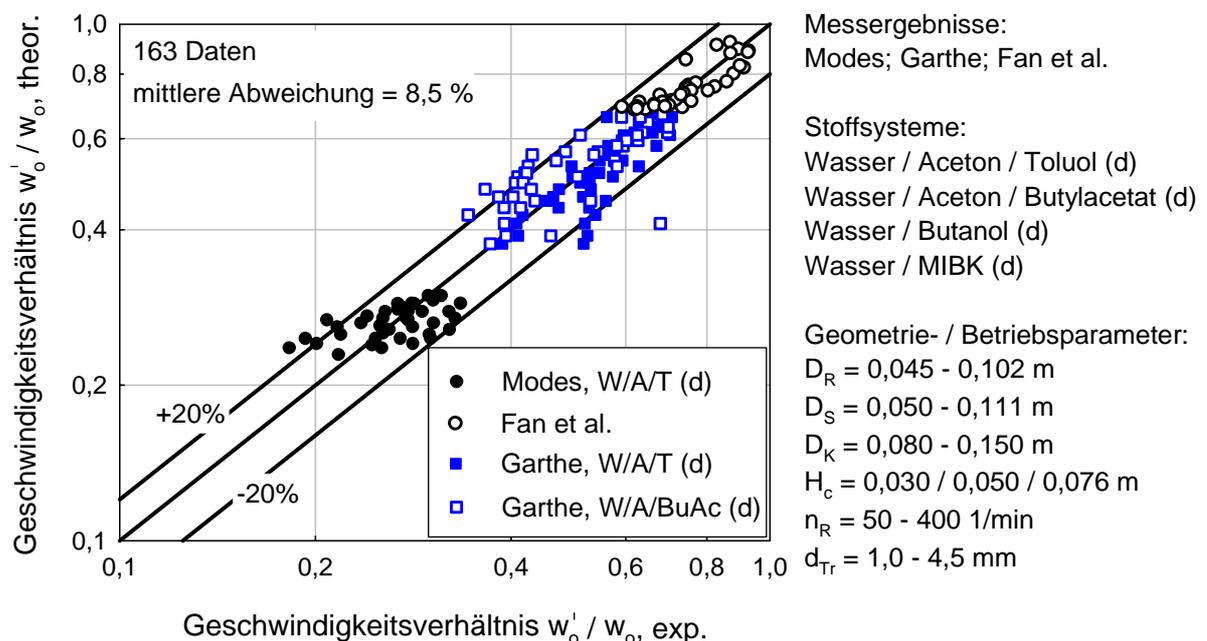


Abb. 7: Endaufstiegsgeschwindigkeiten einzelner Tropfen, RDC-Kolonne

Bei der Verzögerung der einzelnen Tropfen in einer RDC-Kolonnen macht sich vor allem die Rührzellenhöhe bemerkbar. Fan et al. führten ihre Untersuchungen in einer RDC-Kolonnen mit einer Zellenhöhe von 76 mm durch, während die Messungen in der eigenen Einzeltropfenapparatur bei einer Zellenhöhe von 50 mm und die Ergebnisse von Modes in einer RDC-Kolonnen mit einer Zellenhöhe von 30 mm erzielt wurden. In Abb. 7 wird deutlich, dass die Verzögerung eines Einzeltropfens in einer RDC-Kolonnen mit kleiner werdender Zellenhöhe zunimmt. Durch eine Zunahme an Rührzellen in der aktiven Höhe der RDC-Kolonnen werden die Tropfen stärker am Aufstieg behindert.

### Hold-up von Tropfenschwärmen

Der Hold-up in einer gerührten RDC-Kolonnen kann wiederum mit Hilfe der Endaufstiegsgeschwindigkeiten einzelner Tropfen in einer RDC-Kolonnen berechnet werden. Dabei ist zu beachten, dass sich nicht nur die Aufstiegsgeschwindigkeit eines Tropfens im Vergleich zur Packungskolonnen verändert, sondern dass zusätzlich der Schwarmexponent  $n$  aufgrund der veränderten Geschwindigkeit angepasst werden muss. Der Schwarmexponent  $n$  kann in einer gerührten RDC-Kolonnen mit Hilfe der folgenden Beziehung berechnet werden:

$$n = 4,45 \cdot (Re(w'_o))^{-0,1} \text{ für } 1 < Re(w'_o) < 250 \quad (10)$$

Zur Überprüfung des Modellkonzepts können wieder zahlreiche Daten aus der Literatur (*Al Aswad et al. 1985, Cruz-Pinto 1979, Ismail und Korchinsky 1988, Korchinsky und Young 1986, Wolschner 1980, Zhang et al. 1985*) sowie die eigenen Messergebnisse herangezogen werden. Abb. 8 zeigt, dass auch für die RDC-Kolonnen das Modellkonzept vor allem bei einer Stoffübergangsrichtung von der kontinuierlichen zur dispersen Phase bzw. bei den Versuchen mit abgesättigten Flüssigkeiten eine sehr gute Übereinstimmung liefert.

Bei einer Stoffübergangsrichtung von der dispersen zur kontinuierlichen Phase sind wiederum größere Abweichungen zwischen dem berechneten und gemessenen Hold-up zu erkennen. Die starke Koaleszenz, die sich bei den untersuchten Stoffsystemen bei dieser Stoffübergangsrichtung ergibt, verursacht auch in RDC-Kolonnen größere Streuungen der Messergebnisse. In der Kolonnen können in den einzelnen Rührzellen bei dieser Stoffübergangsrichtung nicht nur gleichmäßig verteilte Tropfen, sondern Schlieren beobachtet werden, die vor allem durch das Anstauen und Koaleszieren der Tropfenphase unter den einzelnen Statoren entstehen. Die Berechnung der Fluidodynamik derartiger Zwei-Phasensysteme, die sich vor allem bei einer Stoffübergangsrichtung von der dispersen zur

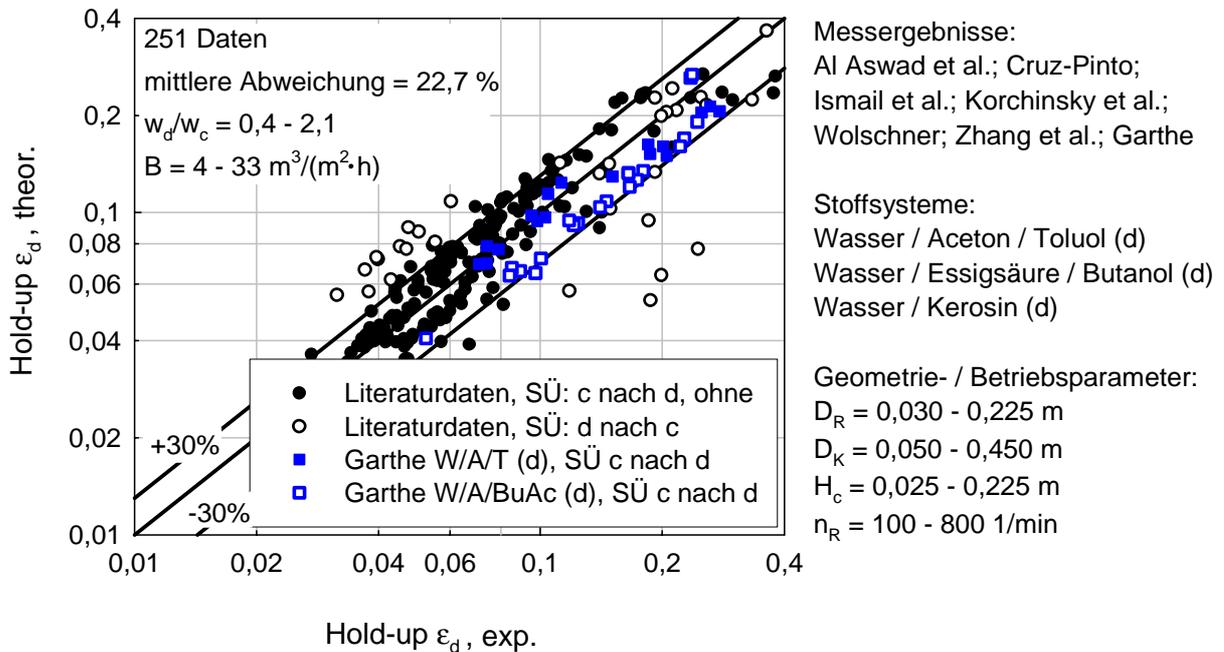


Abb. 8: Hold-up, RDC-Kolonne

kontinuierlichen Phase ergeben, wird durch die Schlierenbildung und die enorm großen Tropfen in der Kolonne erschwert.

Für eine Stoffübergangsrichtung von der kontinuierlichen zur dispersen Phase liefert das Modell jedoch für unterschiedliche Kolonnen- und Rührerdurchmesser, unterschiedliche Rührzellenhöhen und Rührerdrehzahlen sowie für unterschiedliche Phasenverhältnisse in einem sehr großen Belastungsbereich sehr gute Ergebnisse.

### 3.2.2.3 Allgemeine Beschreibung der Fluidodynamik von Partikelschwärmen

Die Bewegung eines Schwarms starrer Partikel bei unbehinderter Strömung wurde in der Vergangenheit ausgiebig erforscht, so dass die maßgeblichen Gesetzmäßigkeiten gut bekannt sind. Nach *Richardson und Zaki 1954* gilt für die Schwarmgeschwindigkeit  $w_s$ :

$$\frac{w_s}{w_o} = (1 - \varepsilon_d)^n \quad \text{mit} \quad n = f(Re_o) \quad (11)$$

Die wesentlichen Einflußgrößen auf das Geschwindigkeitsverhältnis  $w_s/w_o$  sind demnach der Volumenanteil  $\varepsilon_d$  der Partikel und die Reynoldszahl  $Re_o$ . Die funktionelle Abhängigkeit des Schwarmexponenten  $n$  von der Reynoldszahl zeigt Abb. 9.

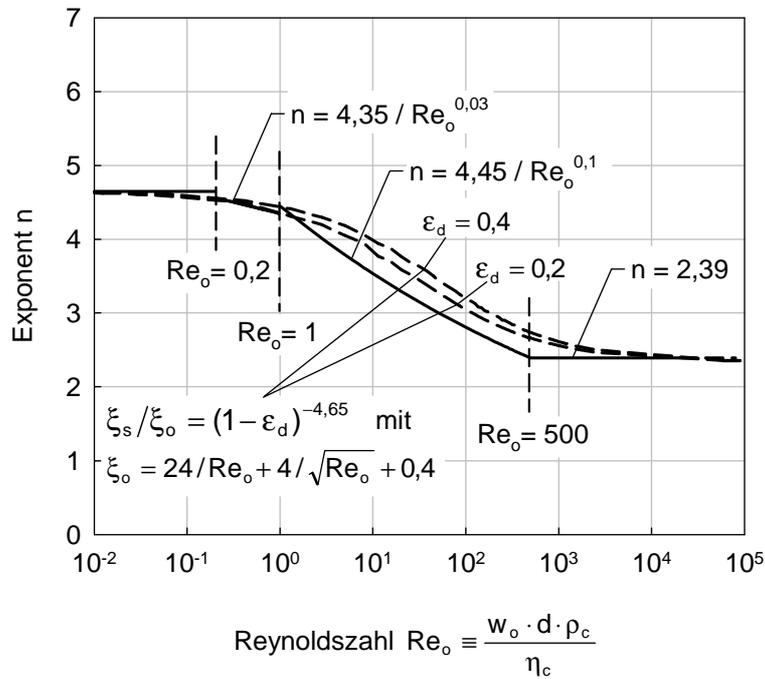


Abb. 9: Schwarmexponent  $n$  starrer Partikelschwärme in Abhängigkeit der Reynoldszahl  $Re_o$ , durchgezogene Linien: Richardson und Zaki, gestrichelte Linien: Gl. (12)

Eine elegantere Formulierung der Schwarmgesetze gelingt dadurch, dass zunächst der Einfluß des Partikelschwarms auf den Widerstandsbeiwert  $\xi$  (und nicht auf die Geschwindigkeit) angegeben wird. Dabei erhält man für den Widerstandsbeiwert  $\xi_s$  eines Partikels im Schwarm:

$$\frac{\xi_s}{\xi_o} = (1 - \varepsilon_d)^{-4,65} \quad \text{mit} \quad \xi_o = f(Re_o) \quad (12)$$

Es liegt wiederum eine Abhängigkeit vom Volumenanteil  $\varepsilon_d$  und von der Reynoldszahl  $Re_o$  vor. Der Einfluß des Volumenanteils  $\varepsilon_d$  ist jedoch unabhängig von der Reynoldszahl. Der Einfluß der Reynoldszahl wird allein durch die bekannte Abhängigkeit des Widerstandsbeiwertes  $\xi_o$  eines Einzelpartikels beschrieben. Für das Geschwindigkeitsverhältnis  $w_s/w_o$  folgt mit Gl. (12):

$$\frac{w_s}{w_o} = \sqrt{\frac{\xi_o(Re_o)}{\xi_s(Re_s)}} = \sqrt{\frac{\xi_o(Re_o)}{\xi_o(Re_s)}} \cdot (1 - \varepsilon_d)^{4,65} \quad (13)$$

Mit den Gesetzmäßigkeiten  $\xi_o \sim 1/Re_o$  für laminare Strömung und  $\xi_o = const.$  für turbulente Strömung erhält man schließlich:

$$\frac{w_s}{w_o} = (1 - \varepsilon_d)^{4,65} \quad \text{bei laminarer Strömung} \quad (14)$$

$$\frac{w_s}{w_o} = (1 - \varepsilon_d)^{4,65/2} \quad \text{bei turbulenter Strömung} \quad (15)$$

Dies stimmt mit den experimentell bestimmten Grenzwerten für den Schwarmexponenten nach Richardson und Zaki gut überein. Mit Gl. (13) kann auch der Schwarmexponent im Übergangsbereich zwischen laminarer und turbulenter Strömung berechnet werden. Das Ergebnis ist in Abb. 9 gestrichelt gezeigt. Dabei ergibt sich zusätzlich eine geringe Abhängigkeit vom Volumenanteil  $\varepsilon_d$  der Partikel. Die Übereinstimmung mit den Angaben von Richardson und Zaki ist auch im Übergangsbereich gut. Der Schwarmexponent  $n$  in Gl. (11) wird somit allein durch die Abhängigkeit des Widerstandsbeiwertes des Einzelpartikels von der Reynoldszahl  $Re_o$  bestimmt.

Obige Betrachtungen können auch zur Bestimmung des Schwarmexponenten  $n$  von Tropfenschwärmen angewendet werden. Insbesondere bei großen Reynoldszahlen hat der Widerstandsbeiwert eines Tropfens einen völlig anderen Verlauf als der einer starren Kugel. Er steigt infolge der Formänderung des Tropfens mit zunehmender Reynoldszahl stark an, siehe Abb. 10. Dadurch errechnet sich aus Gl. (13) ein Abfall des Schwarmexponenten  $n$ , der im Extremfall Werte deutlich kleiner als  $4,65/2$  annehmen kann. Die Schwarmgesetze fluider Partikel können sich somit sehr stark von denen starrer Partikelschwärme unterscheiden, wie in Abb. 11 gezeigt ist.

Die Unterschiede zwischen starren und fluiden Partikeln zeigen sich erst bei großen deformierten Tropfen. Analoge Unterschiede bestehen aber auch bei der Strömung kleiner Tropfen in einer Packung. Diese Tropfen werden bei der Bewegung durch die Packung stark behindert, was zu einer deutlichen Erhöhung des Widerstandsbeiwertes im Vergleich zur unbehinderten Bewegung führt. Die Abb. 10 zeigt beispielhaft den Verlauf des Widerstandsbeiwertes eines Toluoltropfens in Wasser in einer Montz-Packung.

Der stark abweichende Verlauf des Widerstandsbeiwertes bei behinderter Strömung in einer Packung führt zu deutlich geringeren Schwarmexponenten als bei unbehinderter Bewegung. Der Schwarmexponent in einer geordneten Packungskolonne besitzt im untersuchten Bereich der Reynoldszahl Werte zwischen 2,8 und 0,95, siehe Abb. 11.

Zahlreiche Autoren, unter anderen *Godfrey und Slater 1991*, *Mackowiak 1993* und *Wagner 1996*, haben festgestellt, dass der Schwarmexponent von Tropfenschwärmen in Extraktionskolonnen deutlich kleiner ist als von Richardson und Zaki angegeben. Das vorgestellte Modell bestätigt diese Feststellungen. Die Abweichungen von den Gesetzmäßigkeiten, die für starre

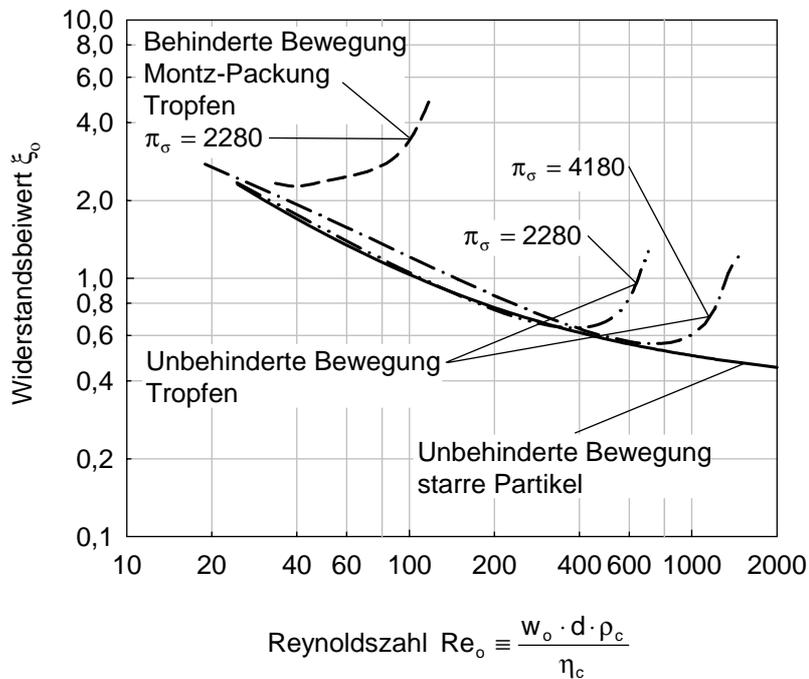


Abb. 10: Widerstandsbeiwert eines einzelnen Partikels bei unbehinderter bzw. behinderter Bewegung

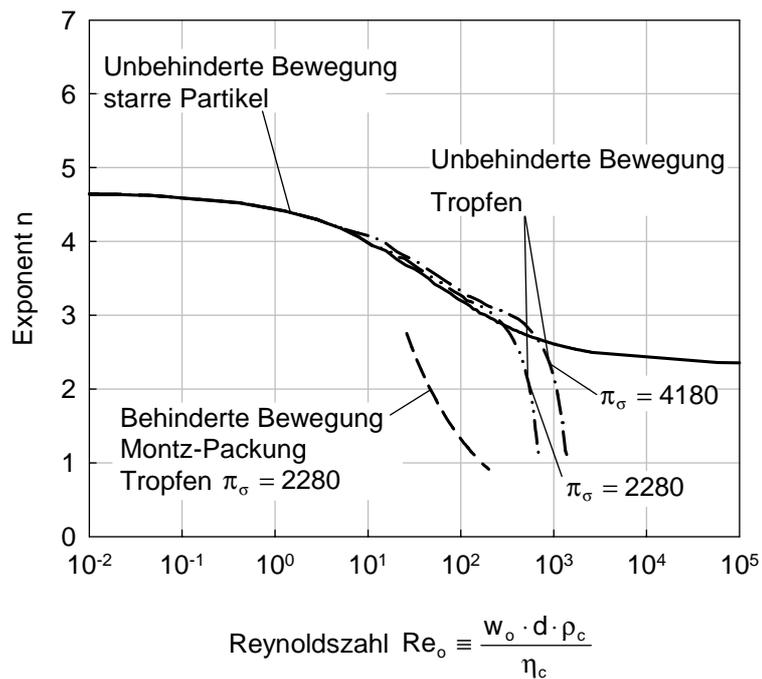


Abb. 11: Schwarmexponent  $n$  in Abhängigkeit der Reynoldszahl  $Re_o$  für starre und fluide Partikelschwärme bei unbehinderter bzw. behinderter Bewegung, Berechnung mit Gl. (12)

Partikelschwärme bei unbehinderter Bewegung entwickelt wurden, werden durch das hier entwickelte Modell erstmals theoretisch begründet.

Zur Berechnung des Durchsatzes und der maximalen Belastung in Extraktionskolonnen bietet das neu entwickelte Modell die Grundlage zur korrekten Beschreibung des Einflusses des Volumenanteils des Partikelschwarms auf die Fluidodynamik. Der entscheidende Vorteil des Modells ist, dass der Schwarmeinfluss lediglich durch Experimente an Einzeltropfen bestimmt werden kann. Allerdings muss dabei die Reynoldszahl  $Re_o$ , also die Tropfengröße, variiert werden.

### **3.2.3 Ergebnisse - Stoffübergang**

Die Untersuchungen zum Stoffübergang in einzelne Tropfen und Tropfenschwärme sollen vor allem die Auswirkungen des Energieeintrags und den Einfluss der Tropfengröße auf den Stofftransport von der kontinuierlichen Phase in die disperse Phase klären. Der Energieeintrag in Siebboden- und Packungskolonnen erfolgt durch einen Pulsator, der die Flüssigkeiten in der Kolonne mit einer bestimmten Frequenz  $f$  und einer bestimmten Amplitude  $a$  periodisch bewegt. In gerührten Kolonnen wird Energie durch einen Rührer in die Kolonne eingetragen. Die Tropfengröße stellt eine entscheidende Größe bei der Berechnung der Stofftransportmechanismen dar. Sie beeinflusst unter anderem die Aufstiegsgeschwindigkeiten der Tropfen und somit die für den Stofftransport zur Verfügung stehende Verweilzeit der Tropfen in der Kolonne.

#### **3.2.3.1 Geordnete Packung**

Der Stoffübergang in Kolonnen mit geordneten Packungen wird vor allem durch das ständige Zusammenstoßen der Tropfen mit den Packungswänden und der dadurch verbundenen guten Vermischung des Tropfeninneren erhöht. Dieser Effekt kann zusätzlich durch eine höhere Pulsation der Flüssigkeiten verstärkt werden. Geordnete Packungskolonnen weisen außerdem sehr gute Dispergiereigenschaften durch die zahlreichen Berührungspunkte und scharfkantigen Übergänge der einzelnen Lamellen auf.

### Stoffübergang in einzelne Tropfen

Der Stofftransport in einzelne Tropfen wird in der AG Stichlmair durch Versuche mit den Stoffsystemen Wasser/Aceton/Toluol und Wasser/Aceton/Butylacetat ermittelt. Dabei werden Tropfen mit einem Durchmesser von 2,0 bis 4,0 mm untersucht. Den Einfluss der Tropfengröße und des Energieeintrags auf den Stofftransport in die einzelnen Tropfen zeigt Abb. 12.

In beiden Diagrammen wird deutlich, dass der Stoffdurchgangskoeffizient  $\beta_{od}$  mit steigendem Tropfendurchmesser  $d_{Tr}$  und mit zunehmendem Energieeintrag sowohl für das Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol (linkes Diagramm) als auch für das Stoffsystem Wasser/Aceton/Butylacetat (rechtes Diagramm) zunimmt. Ein Anstieg des Stofftransports und somit der Stoffdurchgangskoeffizienten zeigt sich vor allem bei einer Pulsationsintensität von 1,5 bzw. 2,0 cm/s.

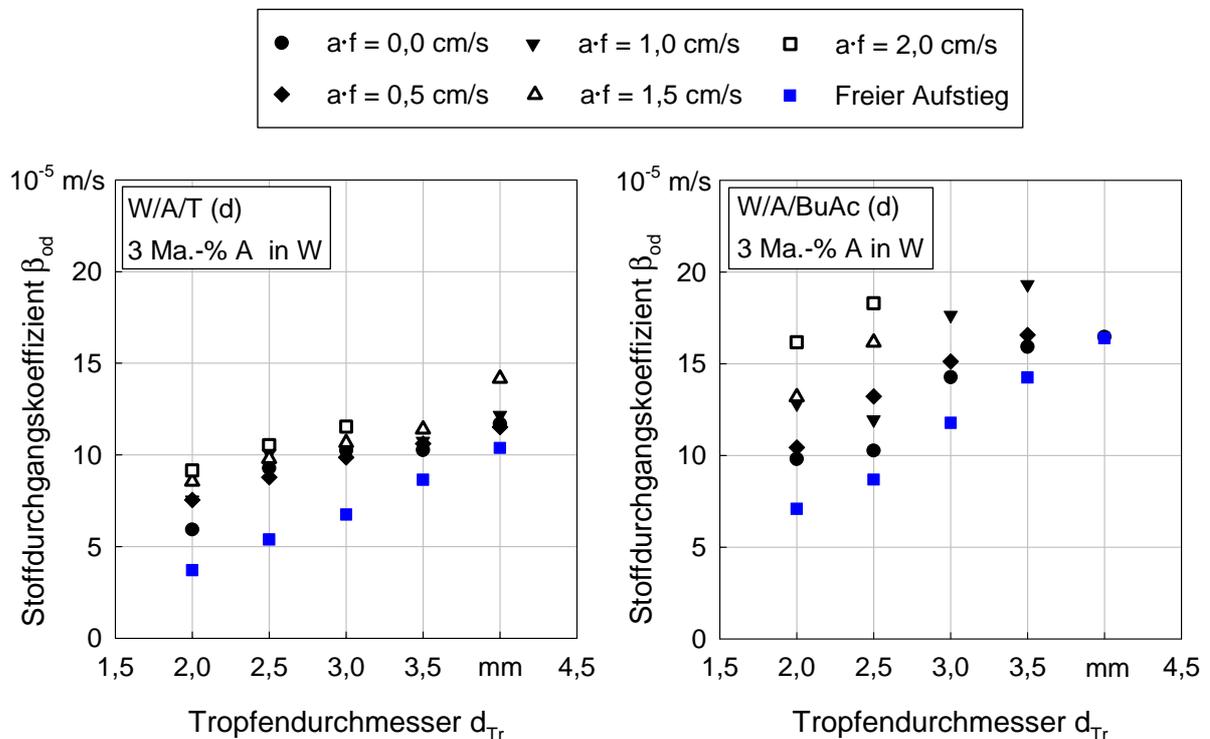


Abb. 12: Einzeltropfen: Stoffdurchgangskoeffizienten  $\beta_{od}$  in einer geordnete Packungskolonne, linkes Bild: Wasser/Aceton/Toluol (d), rechtes Bild: Wasser/Aceton/Butylacetat (d)

Die Stoffdurchgangskoeffizienten des Stoffsystems Wasser/Aceton/Butylacetat nehmen im Vergleich zum Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol größere Werte an. Der Vergleich mit den Arbeiten von Qi 1992 und Hoting 1996 bestätigt dieses Ergebnis. In den beiden Diagrammen in Abb. 12 ist zusätzlich der Verlauf der Stoffdurchgangskoeffizienten für den freien bzw.

unbehinderten Aufstieg zu sehen. Die Einbauten sowie der Energieeintrag in die geordnete Packungskolonne wirken sich demnach positiv auf den Stofftransport zwischen den beteiligten Phasen aus. Die Untersuchungen zum Stoffübergang in einzelne Tropfen zeigen, dass sowohl die Tropfengröße als auch der Energieeintrag einen großen Einfluss auf die auftretenden Phänomene beim Stofftransport besitzen. Mit zunehmenden Tropfendurchmesser und mit steigendem Energieeintrag nimmt dabei der Transport der Übergangskomponente Aceton in die Tropfenphase zu.

### **Stoffübergang in Tropfenschwärmen**

In geordneten Packungskolonnen wird der Stoffübergang durch die definierte Strömungsführung der beteiligten Phasen durch die Packungen gefördert. Geordnete Packungskolonnen zeichnen sich durch die Unterdrückung von Großraumwirbeln und durch eine relativ geringe axiale Rückvermischung im Vergleich zu Sprühkolonnen, Siebbodenkolonnen und auch Kolonnen mit regellosen Füllkörperschüttungen aus (*Leu 1995*). Durch die starken Umlenkungen der Tropfen beim Aufstieg durch die einzelnen Lamellen der Packung und durch die ständigen Zerteilvorgänge der Tropfenphase in der Packung wird der Stofftransport zusätzlich verstärkt. Vor allem der Energieeintrag durch die Pulsation der Flüssigkeiten in der Kolonne führt zu deutlich besseren Trennleistungen in geordneten Packungskolonnen.

Den Einfluss der Pulsationsintensität auf die Trennleistung in einer geordneten Packungskolonne zeigt Abb. 13. In beiden Diagrammen ist ein Anstieg der Trennleistung mit zunehmendem Energieeintrag für die untersuchten Stoffsysteme zu erkennen. Die Packungskolonne besitzt eine deutliche bessere Trennleistung bei einer Pulsationsintensität von 2,0 cm/s als bei einer Pulsationsintensität von 1,0 cm/s, wie vor allem die Untersuchungen mit dem Stoffsystem Wasser/Aceton/Butylacetat zeigen.

Im gesamten untersuchten Belastungsbereich weist die Packungskolonne bei beiden Stoffsystemen eine relativ konstante Trennleistung auf. Die Ergebnisse mit dem Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol lassen jedoch einen Anstieg der Trennleistung erkennen. Erst in der Nähe des Flutpunktes nimmt die Trennleistung der Kolonne wieder ab. Geordnete Packungskolonnen sollten deshalb bei hohen Flüssigkeitsbelastungen und bei hohen Pulsationsintensitäten betrieben werden, um eine optimale Trennleistung zu gewährleisten.

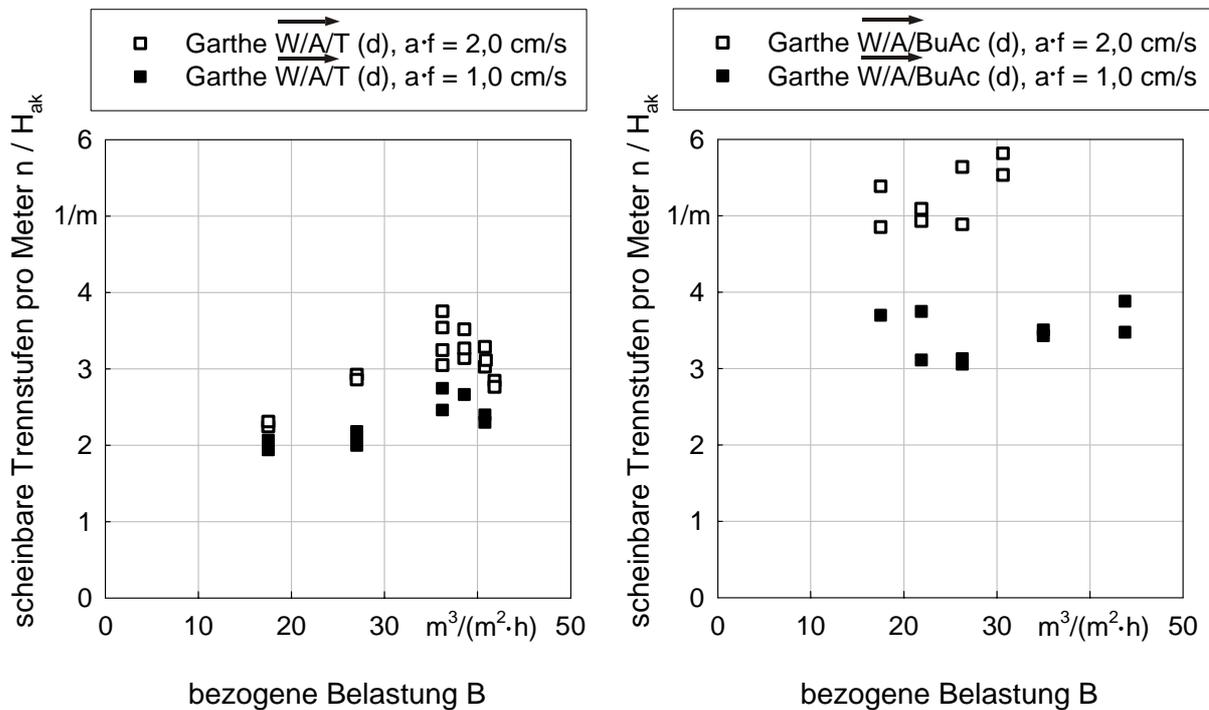


Abb. 13: Tropfenschwarm: Trennleistung einer geordnete Packungskolonie, linkes Bild: Wasser/Aceton/Toluol (d), rechtes Bild: Wasser/Aceton/Butylacetat (d)

Der Vergleich der in der AG Stichlmair gemessenen Konzentrationsprofile mit den in der AG Pfennig berechneten Konzentrationsprofilen befindet sich im Kapitel 3.3. Durch die Integration der in der AG Stichlmair entwickelten Korrelationen für den Tropfenaufstieg in einer Packungskolonie und der Beschreibung des Schwarmeinflusses konnte die Berechnung der Trennleistung mit Hilfe des in der AG Pfennig entwickelten Programms „ReDrop“ verbessert werden.

### 3.2.3.2 Rotating Disc Contactor

Der Stoffübergang in gerührten Kolonnen wird wiederum vor allem durch die Größe der einzelnen Tropfen und dem Energieeintrag bestimmt. Der Energieeintrag in die Kolonne hängt dabei nicht nur von der Rührerdrehzahl, sondern zusätzlich von der Bauform der Rührorgane ab. In gerührten RDC-Kolonnen werden sogenannte Scheibenrührer eingesetzt. Scheibenrührer zeichnen sich vor allem durch einen geringen Energieeintrag im Vergleich zu Turbinenrührer (Flügelrührer) aus. In der Regel werden deshalb RDC-Kolonnen bei deutlich höheren Rührerdrehzahlen betrieben als Kolonnen mit Turbinenrührern.

## Stoffübergang in einzelne Tropfen

Den Einfluss der Tropfengröße und der Rührerdrehzahl auf den Stofftransport in Einzeltropfen in einer RDC-Kolonnen zeigt Abb. 14. Es wird deutlich, dass sich sowohl beim Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol als auch beim Stoffsystem Wasser/Aceton/Butylacetat der Stofftransport mit zunehmendem Tropfendurchmesser und Energieeintrag erhöht. Hohe Rührerdrehzahlen im Bereich von 300 bis 400 1/min führen zu einer deutlichen Steigerung des Stofftransportes in die einzelnen Tropfen.

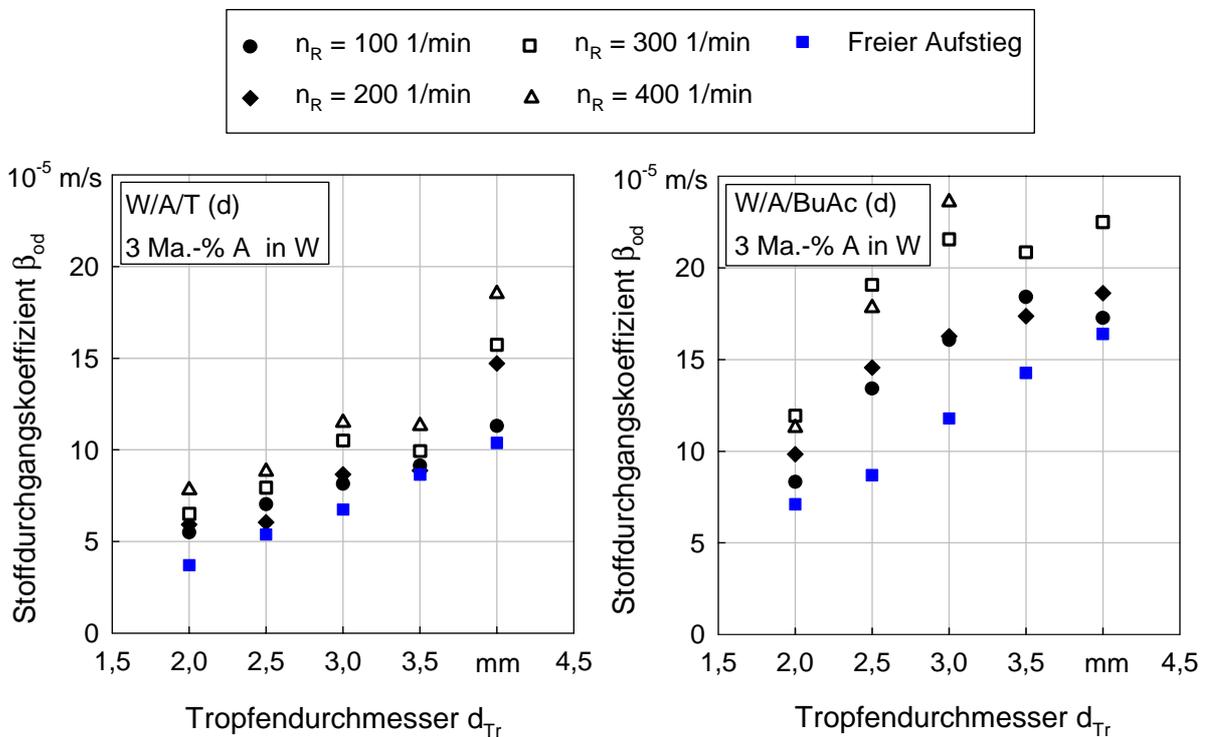


Abb. 14: Einzeltropfen: Stoffdurchgangskoeffizienten  $\beta_{od}$  in einer gerührten RDC-Kolonnen, linkes Bild: Wasser/Aceton/Toluol (d), rechtes Bild: Wasser/Aceton/Butylacetat (d)

Der Vergleich der Stoffdurchgangskoeffizienten in einer Kolonne ohne Einbauten (freier Aufstieg) mit den Stoffdurchgangskoeffizienten in der RDC-Kolonnen zeigt den enormen Anstieg des Stoffübergangs in der gerührten Kolonne. Die Zunahme des Stofftransportes in die Tropfen kann dabei nicht nur auf den Energieeintrag, sondern zusätzlich auf die Verweilzeiterhöhung der Tropfen in der RDC-Kolonnen zurückgeführt werden. Die Erhöhung der Verweilzeit der einzelnen Tropfen in der Kolonne, der Tropfendurchmesser und der Energieeintrag in die Kolonne stellen somit die entscheidenden Einflussgrößen auf den Stoffübergang dar.

## Stoffübergang in Tropfenschwärmen

Der Einfluss des Energieeintrags und der Flüssigkeitsbelastung auf den Stofftransport in einer RDC-Kolonne ist in Abb. 15 zu sehen. Der Einfluss der Flüssigkeitsbelastung auf die Trennleistung ist relativ gering. Die Ergebnisse der Untersuchungen mit den Stoffsystemen Wasser/Aceton/Toluol und Wasser/Aceton/Butylacetat verdeutlichen, dass im Bereich der bezogenen Flüssigkeitsbelastung  $B$  von 17 bis 32  $\text{m}^3/(\text{m}^2\text{s})$  die Trennleistung einen relativ konstanten Verlauf aufweist. Erst bei einer Flüssigkeitsbelastung von ca. 36  $\text{m}^3/(\text{m}^2\text{s})$ , also in der Nähe des Flutpunktes, sinkt die Trennleistung ab. Einen wesentlich stärkeren Einfluss auf die Trennleistung besitzt der Energieeintrag bzw. die Rührerdrehzahl. Für beide Stoffsysteme ist ein Anstieg der Trennleistung mit zunehmender Rührerdrehzahl zu beobachten.

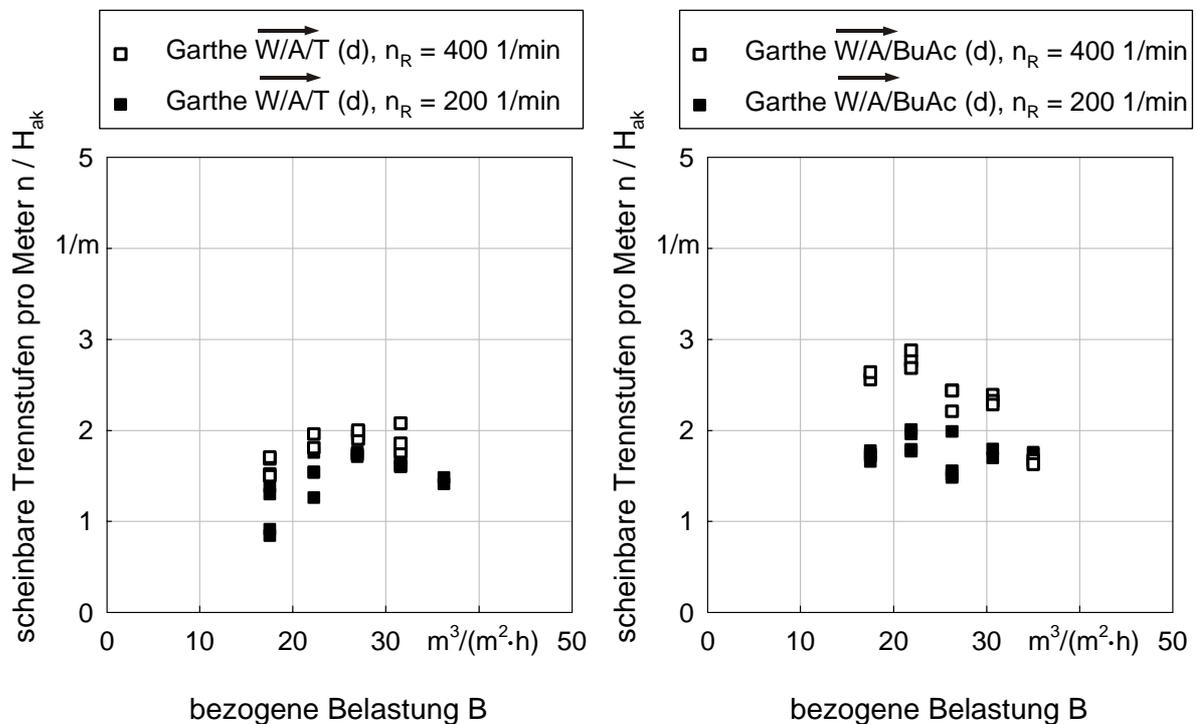


Abb. 15: Tropfenschwarm: Trennleistung einer gerührten RDC-Kolonne, linkes Bild: Wasser/Aceton/Toluol (d), rechtes Bild: Wasser/Aceton/Butylacetat (d)

Die Trennleistung im Stoffsystem Wasser/Aceton/Butylacetat ist größer als im Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol. Vor allem bei einer Rührerdrehzahl von 400 1/min steigt der Stofftransport von der kontinuierlichen wässrigen Phase zur dispersen Butylacetat-Phase stärker an als im Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol. Der größere Energieeintrag bewirkt in dem Stoffsystem Wasser/Aceton/Butylacetat mit einer kleineren Grenzflächenspannung als im Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol eine deutlich stärkere Zerteilung der einzelnen Tropfen. Die

starke Zerteilung der Tropfen führt zu einer Erhöhung der Stoffaustauschfläche und somit zu einer Steigerung des Stofftransports im Tropfenschwarm.

Die Ergebnisse der Untersuchungen mit Tropfenschwärmen zeigen, dass der Energieeintrag die Trennleistung in einer RDC-Kolonne signifikant beeinflusst. Dabei wirkt sich der Energieeintrag im Stoffsystem Wasser/Aceton/Butylacetat mit einer mittleren Grenzflächenspannung stärker aus als im Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol mit einer relativ großen Grenzflächenspannung von  $34 \cdot 10^{-3}$  N/m. Als entscheidende Einflussgrößen auf den Stoffübergang in Tropfenschwärmen in gerührten Kolonnen konnte somit der Energieeintrag und die Grenzflächenspannung des verwendeten Stoffsystems identifiziert werden.

Der Vergleich der gemessenen mit den mit Hilfe des Programms „LLECMOD“ berechneten Konzentrationsprofilen befindet sich im Kapitel 3.4, das die Ergebnisse der AG Bart beinhaltet. Die Ergebnisse der berechneten Konzentrationsprofile zeigen, dass durch die enge Zusammenarbeit der einzelnen Arbeitsgruppen und durch die Entwicklung und Optimierung des Programms „LLECMOD“ nicht nur die Fluidodynamik, sondern auch der Stofftransport in Tropfenschwärmen in gerührten Kolonnen korrekt erfasst wird.

## 3.2 AG Stichlmair

Die Beschreibung der Fluidodynamik und des Stoffübergangs in Tropfenschwärmen durch Einzeltropfenexperimente ermöglicht eine kostengünstige Auslegung von unterschiedlichen Flüssig/flüssig-Extraktionskolonnen. Auf Vorversuche im Technikumsmaßstab mit den entsprechenden Originalflüssigkeiten, die einen enormen zeitlichen und finanziellen Aufwand bei der Dimensionierung von Extraktionskolonnen mit sich bringen, kann dadurch verzichtet werden.

Das Ziel der AG Stichlmair war es deshalb, den Einfluss eines Tropfenschwarms, d. h. den Übergang vom Einzeltropfen zum Tropfenschwarm, auf die Fluidodynamik und somit den Stoffübergang aufgrund von Einzeltropfenexperimenten zu bestimmen. Um dieses Ziel zu erreichen, wurden zahlreiche Untersuchungen zur Fluidodynamik und zur Stoffübertragung in einem Fest/flüssig-System und in zwei Flüssig/flüssig-Systemen durchgeführt. Dabei konnte unter anderem der Einfluss unterschiedlicher Einbauten und Betriebsbedingungen auf die Endaufstiegsgeschwindigkeiten einzelner starrer und fluider Partikel sowie auf den Stoffübergang bestimmt werden. Die starren Einzelpartikel (Polypropylen-Partikel) und Einzeltropfen (Toluol-Tropfen, Butylacetat-Tropfen) wurden dabei in Kolonnen ohne Einbauten und in Kolonnen mit Einbauten untersucht. Als Einbauten wurden Siebböden, geordnete Packungen, Drehscheibenrührer und Turbinenrührer verwendet.

Die Untersuchungen mit Tropfenschwärmen zeigen, dass die Beschreibung des Schwarmeinflusses basierend auf Einzeltropfenexperimenten durch die in Kapitel 3.2.1.1 beschriebene Vorgehensweise sehr gute Ergebnisse liefert. Die in der AG Stichlmair durchgeführten Versuche mit Tropfenschwärmen dienen zusätzlich dazu, die in enger Zusammenarbeit mit der AG Pfennig und der AG Bart entwickelten Simulationsprogramme zur Auslegung von Extraktionskolonnen zu überprüfen und gegebenenfalls zu optimieren.

Eine Übersicht der im Forschungsantrag angestrebten Ziele sowie der erreichten Ergebnisse ist in der Tabelle 3.1 und in der Tabelle 3.2 zu sehen. Alle im Forschungsantrag angestrebten Ziele konnten in der AG Stichlmair erreicht werden.

Tabelle 3.1: *Fluiddynamik: Zielsetzung des Antrages und erzielte Ergebnisse*

Zielsetzung des Antrages				erzielte Ergebnisse
Kolonne	System	Art	m/o Einbauten	m/o Einbauten
Labor	starre Kugel	Einzelpartikel	• / •	☑/☑
Labor	Wasser/Aceton/Toluol	Einzeltropfen	• / •	☑/☑
Labor	Wasser/Aceton/Butylacetat	Einzeltropfen	• / •	☑/☑
Technikum	starre Kugel	Schwarm	• / •	☑/☑
Technikum	Wasser/Aceton/Toluol	Schwarm	• / •	☑/☑
Technikum	Wasser/Aceton/Butylacetat	Schwarm	• / •	☑/☑

Tabelle 3.2: *Stoffübergang: Zielsetzung des Antrages und erzielte Ergebnisse*

Zielsetzung des Antrages				erzielte Ergebnisse
Kolonne	System	Art	m/o Einbauten	m/o Einbauten
Labor	Wasser/Aceton/Toluol	Einzeltropfen	• / •	☑/☑
Labor	Wasser/Aceton/Butylacetat	Einzeltropfen	• / •	☑/☑
Technikum	Wasser/Aceton/Toluol	Schwarm	• / •	☑/☑
Technikum	Wasser/Aceton/Butylacetat	Schwarm	• / •	☑/☑

## **4 Zusammenfassung**

Der Vergleich der mit den Simulationsprogrammen „Redrop“ und „LLECMOD“ berechneten fluiddynamischen Größen (Tropfengrößenverteilung, Hold-up, ...) und der berechneten Konzentrationsprofile mit den experimentellen Ergebnissen der AG Stichlmair zeigt, dass durch die enge Zusammenarbeit der beteiligten Arbeitsgruppen die Modellierung unterschiedlicher Extraktionskolonnen erheblich verbessert werden konnte. Die Dimensionierung von Flüssig/flüssig-Extraktionskolonnen kann durch die entwickelten Simulationsprogramme basierend auf Einzeltropfenexperimenten erfolgen. Die Auslegung einer Extraktionskolonne wird dadurch nicht nur kostengünstiger, sondern es wird dem planenden Ingenieur ein schlagkräftiges Werkzeug zur Auswahl des optimalen Kolonnentypes und zur Dimensionierung der optimalen Extraktionskolonne zur Verfügung gestellt. Die neue Auslegungsmethode gibt vor allem kleineren und mittelständischen Unternehmen ein höheres Maß an Sicherheit und ermöglicht eine Kostenreduzierung durch eine schnellere und flexiblere Auslegung.

## 5 Verwendete Formelzeichen und dimensionslose Kennzahlen

Tabelle 5.1: Formelzeichen und dimensionslose Kennzahlen

<b>Zeichen</b>	<b>Einheit</b>	<b>Bezeichnung</b>
Basiszeichen		
$w_s$	m/s	Schwarmgeschwindigkeit
$w_{rs}$	m/s	relative Schwarmgeschwindigkeit
$w_c$	m/s	Leerrohrgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase
$w_d$	m/s	Leerrohrgeschwindigkeit der dispersen Phase
$w_o$	m/s	freie Endaufstiegsgeschwindigkeit eines Einzelpartikels
$n$	–	Schwarmexponent
$w'_o$	m/s	Endaufstiegsgeschwindigkeit eines Einzeltropfens in einer Kolonne mit Einbauten
$d_{Tr}$	m	Tropfendurchmesser
$d$	m	Partikeldurchmesser
$t$	s	Verweilzeit eines Tropfens in der Messstrecke $L$ , Kapitel 3.2.1.2
$y^*$	kg/kg	Gleichgewichtskonzentration
$y_1$	kg/kg	Konzentration der Tropfenphase am Eintritt in die Messstrecke $L$
$y_2$	kg/kg	Konzentration der Tropfenphase am Austritt aus der Messstrecke $L$
$x_\infty$	kg/kg	Konzentration der Wasserphase
$L$	m	Messstrecke
$n$	–	Anzahl an theoretischen Trennstufen
$\lambda$	–	Extraktionsfaktor
$K$	–	Konzentrationsquotient
$m$	–	Steigung der Gleichgewichtslinie
$\dot{M}_c$	kg/s	Massenstrom der kontinuierlichen Phase
$\dot{M}_d$	kg/s	Massenstrom der dispersen Phase
$X_{ein}$	kg/kg	Massenbeladung der eintretenden kontinuierlichen Phase
$X_{aus}$	kg/kg	Massenbeladung der austretenden kontinuierlichen Phase
$X_{aus}^*$	kg/kg	Gleichgewichtsbeladung der kontinuierlichen Phase

<b>Zeichen</b>	<b>Einheit</b>	<b>Bezeichnung</b>
$H_{ak}$	m	aktive Höhe der Extraktionskolonne
$g$	m/s <sup>2</sup>	Erdbeschleunigung
$a_{geo}$	m <sup>2</sup> /m <sup>3</sup>	volumenbezogene Packungsoberfläche
$H_P$	m	Lagenhöhe einer geordneten Packung
$a$	m	Amplitude der Pulsatorschwingung
$f$	1/s	Frequenz der Pulsatorschwingung
$D_K$	m	Durchmesser der Kolonne
$D_S$	m	Innendurchmesser des Statorringes
$D_R$	m	Rührerdurchmesser
$H_c$	m	Kompartimenthöhe einer Rührzelle
$n_R$	1/min	Rührerdrehzahl
$B$	m <sup>3</sup> /(m <sup>2</sup> · h)	bezogene Summenbelastung

#### Griechische Symbole

$\varepsilon_d$	–	Volumenanteil an disperser Phase
$\beta_{od}$	m/s	Stoffdurchgangskoeffizient
$\rho_c$	kg/m <sup>3</sup>	Dichte der kontinuierlichen Phase
$\rho_d$	kg/m <sup>3</sup>	Dichte der dispersen Phase
$\eta_c$	kg/(m · s)	dynamische Viskosität der kontinuierlichen Phase
$\eta_d$	kg/(m · s)	dynamische Viskosität der dispersen Phase
$\sigma$	N/m	Grenzflächenspannung
$\Delta\rho$	kg/m <sup>3</sup>	Dichtedifferenz
$\varphi_P$	–	Lückengrad einer geordneten Packung

#### Dimensionslose Kennzahlen

$Re(w_o)$	–	Reynolds-Zahl der Tropfengeschwindigkeit
$Re_R$	–	Reynolds-Zahl Rührer
$\pi_{w_o}$	–	dimensionlose Geschwindigkeit
$\pi_d$	–	dimensionloser Durchmesser
$\pi_\sigma$	–	dimensionlose Grenzflächenspannung bzw. Flüssigkeitskennzahl
$N_P$	–	Leistungskennzahl eines RDC-Rührers

## 6 Literaturverzeichnis

Al Aswad et al. 1985

Al Aswad, K. K.; Mumford, C. J.; Jeffreys, G. V. (1985): The Application of Drop Size Distribution and Discrete Drop Mass Transfer Models to Assess the Performance of a Rotating Disc Contactor, *AIChE Journal* 31, 9, S. 1488-1497

Anderson 1961

Anderson, K. E. B. (1961): Pressure drop in ideal fluidisation, *Chem. Eng. Sci.* 15, S. 276-283

Cruz-Pinto 1979

Cruz-Pinto, J. J. C. (1979): Experimental and Theoretical Modelling Studies of the Hydrodynamic and Mass Transfer Processes in Countercurrent Flow Liquid-Liquid Extraction Columns, Dissertation, Victoria University of Manchester

Cruz-Pinto und Korchinsky 1980

Cruz-Pinto, J. J. C.; Korchinsky, W. J. (1980): Experimental Confirmation of the Influence of Drop Size Distribution on Liquid-Liquid Extraction Column Performance, *Chem. Eng. Sci.* 35, S. 2213-2219

Cruz-Pinto und Korchinsky 1981

Cruz-Pinto, J. J. C.; Korchinsky, W. J. (1981): Drop Breakage in Counter Current Flow Liquid-Liquid Extraction Columns, *Chem. Eng. Sci.* 36, S. 687-694

Fan et al. 1987

Fan, Z.; Oloidi, J. O.; Slater, M. J. (1987): Liquid-Liquid Extraction Column Design Data Acquisition from Short Columns, *Chem. Eng. Res. Des.* 65, S. 243-250

Godfrey und Slater 1991

Godfrey, J. C.; Slater, M. J. (1991): Slip Velocity Relationships for Liquid-Liquid Extraction Columns, Trans. IChemE, 69, Part A, S 130-141

Grace et al. 1976

Grace, W.; Wairegi, J.; Nguyen, N. (1976): Shapes and Velocities of single drops and bubbles moving, Trans. Inst. Chem. Eng. 54, S. 167-173

Hähnsen 1989

Hähnsen, A. (1989): Inbetriebnahme von zwei pulsierten Packungsextraktoren, sowie vergleichende Untersuchungen der Fluidodynamik und des Stoffaustausches zur Optimierung der Packungsabmessungen und der Packungsoberflächen, Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal

Hoting 1996

Hoting, B. (1996): Untersuchungen zur Fluidodynamik und Stoffübertragung in Extraktionskolonnen mit strukturierten Packungen, Dissertation, Technische Universität Clausthal

Ismail und Korchinsky 1988

Ismail, A. M.; Korchinsky, W. J. (1988): Mass-Transfer Parameters in Rotating-Disc Contactors: Influence of Column Diameter, J. Chem. Tech. Biotechnol. 43, S. 147-158

Kaskas 1971

Kaskas, I. in: Brauer, H. (1971): Grundlagen der Einphasen- und Mehrphasenströmungen, Verlag Sauerländer, Aarau

Korchinsky und Young 1986

Korchinsky, W. J.; Young, C. H. (1988): High Flux Mass Transfer: Comparison of Liquid-Liquid Extraction Column and Drop (Handlos-Baron) Model Predictions with Rotating Disc Contactor Performance, Chem. Eng. Sci. 41, 12, S. 3053-3061

Kumar und Hartland 1995

Kumar, A.; Hartland, S. (1995): A Unified Correlation for the Prediction of Dispersed-Phase Hold-up in Liquid-Liquid Extraction Columns, Ind. Eng. Chem. Res. 34, S. 3925-3940

Leu 1995

Leu, J. T. (1995): Beitrag zur Fluidodynamik von Extraktionskolonnen mit geordneten Packungen, Dissertation, Technische Universität Clausthal

Mackowiak 1993

Mackowiak, J (1993): Grenzbelastungen von unpulsierten Füllkörperkolonnen bei der Flüssig/Flüssig-Extraktion, Chem.-Ing.-Tech., 65, S. 423-429

Modes 1999

Modes, G. (1999): Grundsätzliche Studie zur Populationsdynamik einer Extraktionskolonne auf Basis von Einzeltropfenuntersuchungen, Dissertation, Technische Universität Kaiserslautern

Nedungadi 1991

Nedungadi, K. (1991): On the Performance of a Liquid-Liquid Extraction Column packed with Sulzer SMV Static Mixers, Dissertation, Swiss Federal Institute Of Technology Zurich

Petersen 1994

Petersen, M. (1994): Einfluß des Stoffübergangs auf die Fluidodynamik und die Trennleistung einer pulsierten Extraktionskolonne mit geordneten Packungen, Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal

Pilhofer 1989

Pilhofer, T. (1989): Industrielle Anwendungen von Flüssig-flüssig Extraktionsprozessen, Dechema-Monographie, 114, S. 303-313

Qi 1992

Qi, M. (1992): Untersuchungen zum Stoffaustausch am Einzeltropfen in flüssigkeitspulsierten Siebboden-Extraktionskolonnen, Dissertation, Technische Universität Clausthal

Richardson und Zaki 1954

Richardson, J. F.; Zaki, W. (1954): Sedimentation and fluidisation: Part I, Trans. Institution of chemical Engineers 32, S. 35-53

Roock 1985

Roock, D. (1985): Vergleichende Messungen in einer Füllkörperkolonne mit geordneten Einbauten, Diplomarbeit, FH Köln

Rydberg et al. 1992

Rydberg, J.; Musikas, C.; Choppin, G. R. (1992): Principles and Practices of Solvent Extraction, Marcel Dekker Inc., New York

Schmidt 1994

Schmidt, R. (1994):ACHEMA Berichte: Anlagen und Apparate für Destillation, Rektifikation, Sorption, Permeation, Extraktion, Chem.-Ing.-Tech. 66, 11, S. 1448-1462

Seibert 1986

Seibert, A. F. (1986): Hydrodynamics and Mass Transfer in Spray and Packed Liquid-Liquid Extraction Columns, Dissertation, University of Texas at Austin

Stichlmair und Steude 1990

Stichlmair, J.; Steude, H. E. (1990): Abtrennen und Rückgewinnung von Stoffen aus Abwasser und Abfallflüssigkeiten, „Stofftrenntechnik in der Umwelttechnik“, Diskussiostagung 4./5.12.1990, VDI-GVC, Düsseldorf

Stichlmair et al. 1989

Stichlmair, J.; Bravo, J. L., Fair, J. R. (1989): General model for prediction of pressure drop and capacity of countercurrent gas/liquid packed columns, Gas Separation & Purification , 3, S. 19-26

Wagner 1996

Wagner, I. (1999): Der Einfluß der Viskosität auf den Stoffübergang in Flüssig-flüssig-Extraktionskolonnen, Dissertation, Technische Universität München

Wolschner 1980

Wolschner, B. (1980): Konzentrationsprofile in Drehscheibenextraktoren, Dissertation, Technische Universität Graz

Zhang et al. 1985

Zhang, S. H.; Yu, S. C.; Zhou, Y. C.; Su Y. F. (1985): A Model for Liquid-Liquid Extraction Column Performance - The Influence of Drop Size Distribution on Extraction Efficiency, Can. J. of Chem. Eng. 63, S 212-226

Zwischenbericht 2001

Zwischenbericht für den Zeitraum: 01.01.01 bis 31.12.01  
(Forschungsstelle 2), AiF-Vorhaben-Nr.: ZN04248/00, 2002

Zwischenbericht 2002

Zwischenbericht für den Zeitraum: 01.01.02 bis 31.12.02  
(Forschungsstelle 2), AiF-Vorhaben-Nr.: ZN04248/00, 2003

Zwischenbericht 2003

Zwischenbericht für den Zeitraum: 01.01.03 bis 31.12.03  
(Forschungsstelle 2), AiF-Vorhaben-Nr.: ZN04248/00, 2004

### 3.3 Lösungsweg und Ergebnisse der AG Pfennig

#### 3.3.1 Lösungsweg

Das oben beschriebene Gesamtziel des Forschungsverbundes (Kapitel 3.1) kann für die **Forschungsstelle RWTH Aachen (AG Pfennig)** zu der Zielsetzung konkretisiert werden, das Konzept einer **Kolonnenauslegung auf der Basis von Einzeltropfenuntersuchungen in Labormesszellen und auf der Basis von Simulationen für pulsierte Siebboden- und Packungsextraktionskolonnen** umzusetzen.

Um das Forschungsziel der AG Pfennig zu erreichen, werden parallel drei wesentliche Forschungsergebnisse angestrebt. Zum einen soll die ReDrop-Extraktionskolonnensimulation, die bisher erfolgreich für pulsierte Siebbodenkolonnen am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik entwickelt wurde, für das vorgesehene Stoffsystem n-Butylacetat + Wasser + Aceton in Siebbodenkolonnen validiert werden. Zum anderen soll das ReDrop-Modell auf die Anwendung für pulsierte Packungskolonnen übertragen werden. Für diese Weiterentwicklung der ReDrop-Simulation sind die Modelle für die Einzelphänomene an Tropfen in Packungskolonnen – die Sedimentation, der Stoffaustausch und die Spaltung – zu erarbeiten und in das Simulationsprogramm zu implementieren. Weiterhin soll als drittes Forschungsergebnis die Charakterisierung der Stoffsysteme gewährleistet und damit auch die Datenbasis für die Entwicklung der Detailmodelle für Tropfensedimentation und Stoffaustausch gewonnen werden, indem experimentelle Untersuchungen in einer Einzeltropfenmesszelle mit geeigneten Packungselementen durchgeführt werden.

Nach Beschluss des projektbegleitenden Ausschusses (Industriebegleitung) sind für die AG Pfennig die Untersuchungen des Stoffsystems Isotridecanol + Wasser + 1-Propanol durch die **Untersuchung eines technischen Stoffsystems** ersetzt worden.

Der methodische Ansatz zur Erreichung des Ziels der AG Pfennig – eine Modellierung von pulsierten Siebboden- und Packungskolonnen basierend auf Einzeltropfenexperimenten zu entwickeln – ist in Abb. 16 dargestellt. Der Grundvorgang „Koaleszenz“ ist in Abb. 16 nicht mit aufgeführt, da ebenso wie bei der prinzipiell bereits erfolgreichen Simulation von Siebbodenkolonnen auch bei Packungskolonnen davon auszugehen ist, dass die Koaleszenz nur eine untergeordnete Rolle spielt – zumindest bei der technisch immer angestrebten Stoffaustauschrichtung aus der kontinuierlichen Phase in die Tropfen hinein (*Rohlfing, 1992*). Ist ein Ansatz zur Beschreibung der Koaleszenz bekannt, so kann dieser in die Modellierung integriert werden, da die entsprechenden Module von vorneherein berücksichtigt worden sind.

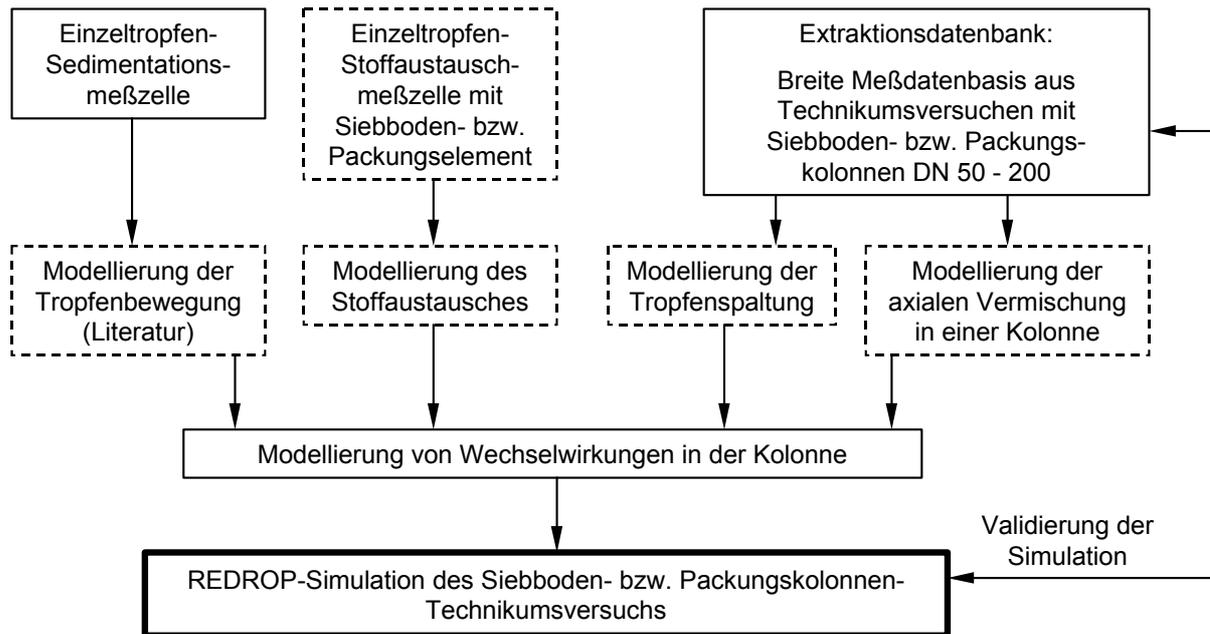


Abb. 16: Vorgehensweise bei der Entwicklung einer tragfähigen Simulation für Kolonnen mit Siebböden oder geordneten Packungen im Technikumsmaßstab (gestrichelt = in diesem Projekt bearbeitet, durchgezogen = weitgehend vorhanden, ggf. Modifikation)

In der AG Pfennig wurde das Verhalten von Einzeltropfen in Labormesszellen mit charakteristischen Kolonnenelementen (kleiner Siebboden, kleine geordnete Packungen) ermittelt. Diese Experimente mit den Originalflüssigkeiten in kleinen, zu standardisierenden Laborapparaten liefern die Daten für die Modellentwicklung. Die maßgeblichen Grundvorgänge an Einzeltropfen – die Sedimentation, der Stoffaustausch, die Spaltung und die axiale Vermischung – wurden physikalisch fundiert in Teilmodellen beschrieben und zu einem einheitlichen Gesamtmodell zusammengeführt. Mit den an die Laborexperimente angepassten und nur in den Grundmodellen vorhandenen freien stoffsystem- oder einbauspezifischen Parametern kann so das Verhalten von pulsierten Siebboden- und Packungsextraktionskolonnen durch die Umsetzung der Modellstruktur in einer Simulation beschrieben werden. Das ReDrop-Modell, das bisher erfolgreich für pulsierte Siebbodenkolonnen für das Stoffsystem Toluol + Wasser + Aceton entwickelt wurde, ist für das Stoffsystem n-Butylacetat + Wasser + Aceton für pulsierte Siebbodenkolonnen validiert und für die vorgesehenen Stoffsysteme auf pulsierte Kolonnen mit geordneten Packungen übertragen worden.

Eine zentrale Rolle sowohl bei der Verifikation bzw. Modifikation von literaturbekannten Modellen für die einzelnen Grundvorgänge als auch bei deren Zusammenführung zur Kolonnensimulation spielen zum einen die zusammen mit der Industrie und anderen Hochschulen

aufgebaute Extraktionsdatenbank (*Schlieper, Pfennig, 1998*) als auch die in der AG Stichelmaier (TU München) durchgeführten Einzeltropfen- und Technikumsversuche.

Aus der geplanten und umgesetzten Vorgehensweise ergaben sich die im Folgenden dargestellten Arbeitsschritte. Diese werden zusammen mit den aus den jeweiligen Arbeitsschritten resultierenden Ergebnissen präsentiert.

### **3.3.2 Ergebnisse**

#### **Konstruktion, Bau und Inbetriebnahme einer Einzeltropfen-Stoffaustauschmesszelle mit Packungselementen**

An der RWTH Aachen (AG Pfennig) ist eine neue Einzeltropfen-Stoffaustauschmesszelle DN40 mit kleinem Packungselement im Labormaßstab konzipiert, konstruiert und gefertigt worden. Die Messapparatur wurde so entworfen, dass der Stoffübergang an einzelnen Tropfen gemessen werden kann, die im Gegenstrom in der Schwebelage gehalten werden und auf ihrem Weg auch ein kleines Einbautenelement durchströmen können. Ziel der Auswertung der Ergebnisse ist es, ein physikalisch korrektes Modell für den Stoffübergang zu erhalten, das es in einem weiteren Schritt ermöglicht, auch den Stoffübergang in Kolonnen unter Berücksichtigung veränderter fluiddynamischer und stofflicher Randbedingungen vorherzusagen. Die neue Messzelle ist somit so konstruiert worden, dass sich in ihr zum einen die Datenbasis für die Modellentwicklung erheben lässt. Zum anderen lassen sich auch die freien Parameter in dem entwickelten Modell für den Stoffübergang in Abhängigkeit vom Originalflüssigkeitsgemisch und in Abhängigkeit von der geordneten Packung ermitteln.

Weiterhin wurde als Anforderung an die Neukonstruktion definiert, dass - in Analogie zu der am Lehrstuhl schon vorhandenen Einzeltropfenmesszelle DN15 mit einem Siebbodenelement - auch die neue Stoffübergangsmesszelle mit einem kleinen Packungselement erlaubt, Temperatur, Tropfengröße, Tropfenverweilzeit, anfängliche Konzentration der Übergangskomponente in beiden Phasen sowie die Dispersionsrichtung als beeinflussende Parameter variieren zu können. Die neue Messzelle, die in Abb. 17 schematisch und in Abb. 18 als Photo dargestellt ist, bietet die Möglichkeit, Tropfen mit Durchmessern von 1 bis 8 mm reproduzierbar zu erzeugen. Um das Volumen der neuen Messzelle möglichst klein zu halten, wurde der Durchmesser der zu untersuchenden kleinen Packungselemente auf 40 mm festgelegt, sodass sich mindestens fünf Lamellen der Packung Montz-Pak B1-350 realisieren lassen, was eine

charakteristische Aussage über den Einfluss des Einbaus auf den Stoffaustausch gewährleistet. Da die bisher eingesetzte Messzelle nur einen maximalen Durchmesser von 19 mm aufweist, wurde weitestgehend unter Wahrung der geometrischen Ähnlichkeit das Design der neuen Messzelle als eine Vergrößerung der vorhandenen festgelegt. Zur Aufnahme eines bis zu 100 mm hohen Packungselementes wurde in den konischen Bereich ein zylindrischer Abschnitt eingefügt. Als Packungen wurden in Abstimmung mit der Industrie die Typen Montz-Pak B1-350 und Montz-Pak B1-500 gewählt.

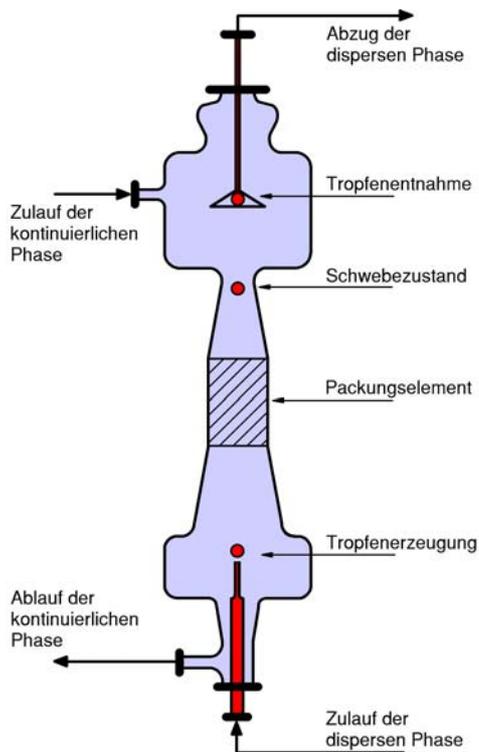


Abb. 17: Schema der Einzeltropfen-Stoffübergangsmesszelle DN40 mit kleinem Packungselement



Abb. 18: Einzeltropfenmesszelle DN40 mit kleinem Packungselement

Des Weiteren wurde der Versuchsstand für die neue Messzelle aufgebaut, der in Abb. 19 als Photo gezeigt ist. Bei der Planung der neuen Versuchsanlage wurde berücksichtigt, dass die Tropfenerzeugung, die Steuerung des Gegenstromes durch Ventil und Pumpe sowie die Tropfenentnahme automatisch mittels PC und Steuerungssoftware realisiert werden sollen, so dass kurze Verweilzeiten und schnelle Messsequenzen leicht umgesetzt und gut reproduziert werden können. Auch wurde darauf geachtet, dass die Versuchsanlage transportabel ist. Hierdurch ist gewährleistet, dass bei einer möglichen zukünftigen industriellen Nutzung die Anlage bei Bedarf vor Ort beim Kunden betrieben werden kann.



*Abb. 19: Versuchsstand der Messzelle*

Um den Stoffaustausch unter Packungseinfluss quantifizieren zu können, musste die neue Einzeltropfen-Stoffaustauschmesszelle in Betrieb genommen werden. Als entscheidend im Rahmen der Inbetriebnahme hat sich dabei eine sehr gewissenhafte und damit auch zeitaufwändige Reinigung der Anlage herausgestellt, da die Packungsoberfläche sonst leicht mit disperser Phase benetzt. Insbesondere die Packungselemente mussten durch vielfache Spülvorgänge sorgfältig von Verunreinigungen befreit werden. Durch diese Behandlung gelang es, den reproduzierbaren Durchtritt von Einzeltropfen durch das Packungselement als Grundvoraussetzung für die Versuche zu gewährleisten. Einzeltropfenexperimente mit Packungselement konnten so durchgeführt werden.

### **Stoffaustauschmessungen zum Packungseinfluss**

Um die Vergleichbarkeit der Messergebnisse in den zwei Messzellen (Siebboden / Packung) zu zeigen, sind in Abb. 20 Messergebnisse der leeren Messzellen ohne Einbauten gegenübergestellt. Die Konzentrationsänderung in Tropfen ist für verschiedene Verweilzeiten bestimmt worden und als dimensionslose mittlere treibende Konzentrationsdifferenz  $y^+$  logarithmisch aufgetragen. Die Untersuchungen sind für das Standardtestsystem Toluol (d) + Wasser (c) + Aceton (von c nach d) bei Umgebungsbedingungen durchgeführt worden. Die Einzeltropfen-

messzelle DN40 für Versuche mit Packungselement (ausgefüllte Kreise) und die Einzeltropfenmesszelle DN15 für Versuche mit Siebbodenelement (offene Kreise) weisen ohne Einbauten im Rahmen der Messgenauigkeit identische Ergebnisse auf. Dabei ist es für Stoffaustauschuntersuchungen an Einzeltropfen nicht entscheidend, ob die kleine Messzelle mit einem kurzen Sedimentationsweg (150 mm) und entsprechend langer Dauer der Tropfen-Schwebeposition in einem schmalen Konus (12 mm) oder die größere, geometrisch ähnliche Messzelle mit einem längeren Sedimentationsweg (395 mm) und entsprechend kürzerer Dauer der Tropfen-Schwebeposition in einem breiteren Konus (32 mm) eingesetzt wird. Nur die in beiden Messzellen gleich eingestellte Gesamtverweilzeit ist bestimmend für den Stoffaustausch. Die Messwerte zeigen in der logarithmischen Darstellung zudem, dass der Stoffaustausch ab ca. 6 s beschleunigt wird, bevor er ab ca. 13 s wieder langsamer wird. Die Stoffaustauschgeschwindigkeit ist also in den ersten Sekunden auf hohem Niveau trotz größter treibender Konzentrationsdifferenz nicht maximal.

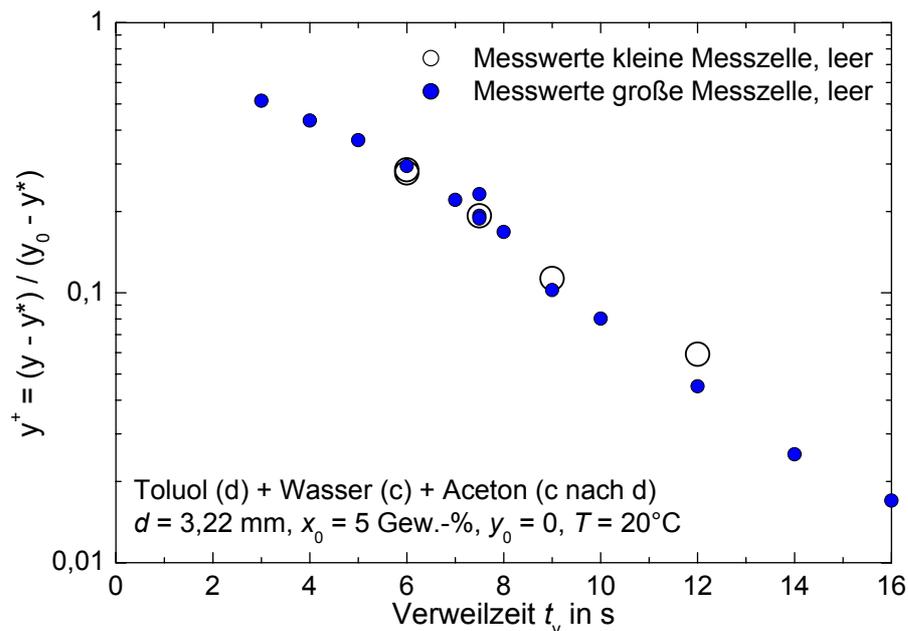


Abb. 20: Vergleich der Ergebnisse aus den Messzellen ohne Einbauten

Nach Vorstellung der AG Pfennig wird in den ersten Sekunden ein schneller Stoffaustausch aufgrund von starken ungeordneten Phasengrenzflächeninstabilitäten hervorgerufen, die gleichzeitig auch ein starres Verhalten der Grenzfläche bedingen. Nach 6 s nimmt die Intensität der Instabilitäten ab. Sie verbessern weiterhin den Stoffaustausch signifikant, schränken die Beweglichkeit der Grenzfläche jedoch nicht mehr ein. Somit wird davon ausgegangen, dass das Einsetzen einer inneren Zirkulation ab 6 s die Stoffaustauschgeschwindigkeit stärker

erhöht als sie durch den gegenläufigen Einfluss der Intensitätsabnahme der Instabilitäten abnimmt. Ab ca. 13 s klingen die Instabilitäten aufgrund des Abbaus der Konzentrationsdifferenz aus, und der Stoffaustausch verlangsamt sich. Der Verlauf der Stoffaustauschgeschwindigkeit wird auch durch am Lehrstuhl durchgeführte Sedimentationsmessungen (*Henschke, 2003*) gestützt, in denen unter gleichen Stoffaustauschbedingungen eine Reduktion der Sedimentationsgeschwindigkeit in den ersten 6 s als Indiz für ein starres Tropfenregime festgestellt wurde.

Die Messungen zum Packungseinfluss auf das Stoffaustauschverhalten erfolgte mit dem EFCE-Standardtestsystemen (*Misek et al., 1985*) Toluol + Wasser + Aceton. Durch die Beobachtung einer Vielzahl von Tropfen konnte festgestellt werden, dass diese trotz zentrischer Position der Tropfenerzeugungsdüse unterhalb der Packung keinen eindeutig bevorzugten Weg durch die Packung wählen. Sie treten in die Packung an verschiedenen Kanälen ein und verlassen sie nahezu über den gesamten Querschnitt. Der Tropfenweg innerhalb der Packung kann so als charakteristisch für denjenigen durch Packungskolonnen angesehen werden. Eine wichtige Voraussetzung für die Übertragbarkeit des Einzeltropfenverhaltens mit Hilfe der ReDrop-Simulation auf Extraktionskolonnen ist somit erfüllt.

Im Anschluss an die Etablierung der experimentellen Methode für Stoffaustauschmessungen in der Messzelle DN40 sind Messreihen zur quantitativen Charakterisierung des Stoffaustauschs für Einzeltropfen durchgeführt worden. In Experimenten mit der Stoffaustauschmesszelle wurde die Konzentrationsänderung in Tropfen für verschiedene Kontaktzeiten und Tropfendurchmesser gemessen. Messungen ohne Einbautenelemente dienten dabei der stoffsystemspezifischen Charakterisierung des Stoffübergangs für frei sedimentierende Einzeltropfen wie in Abbildung 20 dargestellt. In Messreihen mit Packungselement wurde dessen Einfluss auf den Stoffaustausch ermittelt, indem der Faktor bestimmt wurde, um den der Stoffübergang durch den Packungseinfluss verbessert wird. Bei den Messungen wurden die Tropfengrößen, die Tropfengeschwindigkeiten relativ zur Packung und die Verweilzeiten der Tropfen im Packungselement variiert. Abb. 21 zeigt dazu exemplarisch experimentelle Ergebnisse. Die dimensionslose mittlere treibende Konzentrationsdifferenz  $y^+$  ist gegenüber der Gesamtverweilzeit der Tropfen in der Messzelle aufgetragen. Die Messwerte sind für das Stoffsystem Toluol (d) + Wasser (c) + Aceton (von c nach d) bei Umgebungsbedingungen bestimmt worden.

In Versuchen mit Einbauten wurde ein verbesserter Stoffaustausch festgestellt, wie es in Abb. 21 dargestellt ist. Den Messwerten der leeren Einzeltropfenmesszelle ohne Packungselement (ausgefüllte Kreise) wurden Ergebnisse aus Messungen mit Packungselement gegenübergestellt. Zum Einsatz kamen Packungselemente des Typs MontzPak B1-350 mit einem Durchmesser von 40 mm und Höhen von 49 mm, 51 mm und 100 mm. Die Daten der Messungen mit Packungselement liegen leicht niedriger als die Daten der leeren Messzelle, was die Verbesserung des Stoffaustausches charakterisiert. Es kann aber kein Einfluss der Packungshöhe, der Elementanzahl oder des Niveaus des Gegenstroms im Packungselement diskriminiert werden. Diese Aussage wurde auch durch zusätzliche Messungen für die Packung des Typs MontzPak B1-500 bestätigt.

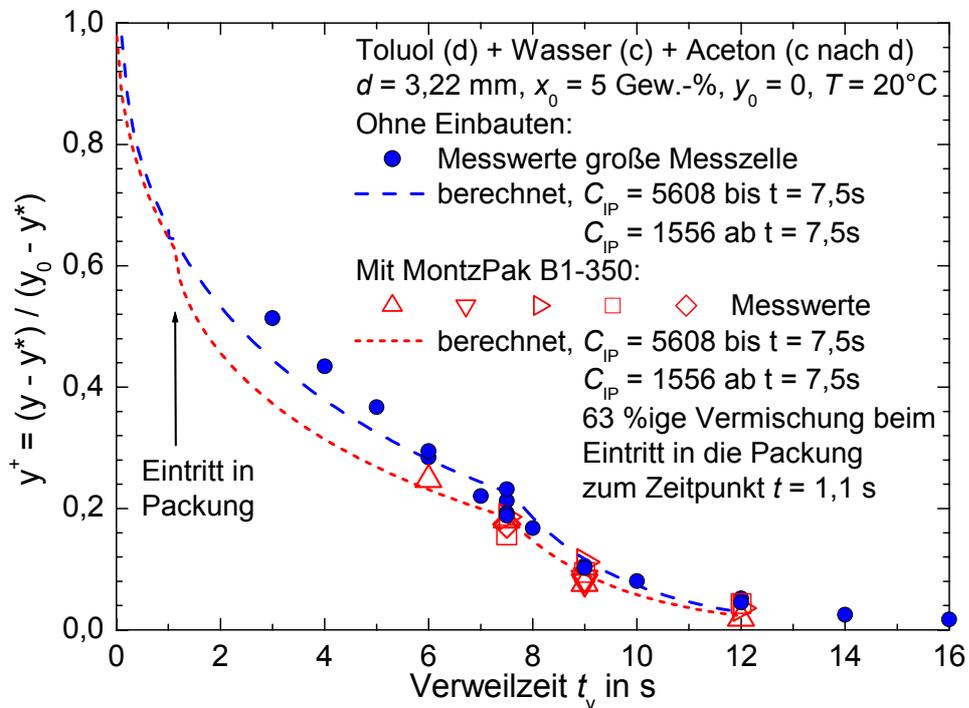


Abb. 21: Packungseinfluss auf den Stoffaustausch

Die Messwerte für Versuche mit Packungselement verdeutlichen, dass das geringe Ausmaß der Stoffaustauschverbesserung auf einen einmaligen Effekt beim Eintritt des Tropfens in das Packungselement zurückgeführt werden muss.

## Erweiterung des ReDrop-Modells für Kolonnen mit geordneten Packungen

Das ReDrop-Modell wurde so erweitert, dass das Verhalten von Packungskolonnen korrekt wiedergegeben werden kann. Hier waren die folgenden untergeordneten Teilschritte zu bearbeiten:

- Sedimentation in geordneten Packungen:

Die Untersuchung der Sedimentation in geordneten Packungen wurde von der AG Stichlmair vorgenommen. Die entwickelte Modellierung der AG Stichlmair wurde von der AG Pfennig in den ReDrop-Algorithmus übernommen.

- Stoffaustausch in geordneten Packungen:

Die Berechnung des instationären Stoffaustauschs innerhalb von kugelförmigen Partikeln ohne innere Zirkulation erfolgt nach *Newman (1931)* in der Form

$$\frac{y(r,t) - y_1}{y_0 - y_1} = -\frac{2R}{\pi r} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n} \sin\left(\frac{n\pi r}{R}\right) \exp(-(n\pi)^2 Fo_d) \quad (16).$$

Durch Integration über den Radius kann aus Gl. 16 die zeitabhängige mittlere Konzentration  $y(t)$  im Tropfen gemäß

$$\frac{y(t) - y_1}{y_0 - y_1} = \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp(-(n\pi)^2 Fo_d) \quad (17)$$

berechnet werden.

Statt der Reihenentwicklung können für kurze oder lange Zeiten auch die folgenden Näherungslösungen

$$\frac{y(t) - y_1}{y_0 - y_1} = \begin{cases} 1 - \frac{6}{\sqrt{\pi}} \sqrt{Fo_d} + 2,996 Fo_d & \text{für } Fo_d < 0,1584 \\ \frac{6}{\pi^2} \exp(-\pi^2 Fo_d) & \text{für } Fo_d \geq 0,1584 \end{cases} \quad (18)$$

verwendet werden, die die Reihenentwicklung mit einer Abweichung von weniger als 0,1 % wiedergeben (*Mersmann, 1986*). Die analytische Erweiterung der Newmanschen Gleichung (Gl. 16) auf Tropfen und Blasen mit innerer Zirkulation wurde von *Kronig und Brink (1950)* vorgenommen. Als Ergebnis erhalten Kronig und Brink, dass Gl. 16 weiterhin verwendet werden kann, wenn die Fourierzahl mit einem effektiven Diffusionskoeffizienten in der Form

$$D_{d,eff} = BD_d \quad (19)$$

gebildet wird. In der Mehrzahl der verfügbaren Veröffentlichungen wird von deutlich höheren Stoffaustauschraten berichtet, als mit dem von Kronig und Brink angegebenen Grenzwert für den Verstärkungsfaktor  $B = 2,7$  zu erwarten wäre. Um den erhöhten Stoffaustausch zu modellieren, nehmen *Handlos und Baron (1957)* im Tropfeninnern Turbulenz an. Die erweiterte Lösung von Handlos und Baron nach *Olander (1966)* ergibt letztendlich einen effektiven Diffusionskoeffizienten

$$D_{eff} = \frac{w_o d_{Tr}}{2048(1 + \eta_d / \eta_c)} \quad (20),$$

der zur Ermittlung des Stoffaustauschs eingesetzt werden kann.

Um die Effekte der turbulenzartigen Vermischung und den Grenzfall der reinen Diffusion berücksichtigen zu können, lautet nach *Henschke und Pfennig (1999)* eine Verallgemeinerung

$$D_{eff} = D_d + \frac{w_o d_{Tr}}{C_{IP}(1 + \eta_d / \eta_c)} \quad (21).$$

Der berechnete Stoffaustausch am Einzeltropfen ohne Einbauten ist in Abb. 21 nach dem Ansatz von *Henschke und Pfennig (1999)* für frei sedimentierende Einzeltropfen mit den Gln. 21 und 18 bestimmt worden. Hauptmerkmal dieses Ansatzes ist die Ergänzung des Diffusionsterms um einen Instabilitätsparameter  $C_{IP}$ , welcher berücksichtigt, dass der Stoffaustausch durch bestimmte Effekte, wie ungeordnete Grenzflächeninstabilitäten, verbessert wird. Dieser stoffsystemabhängige Parameter  $C_{IP}$  ist dabei an die Messwerte ohne Einbauten angepasst worden. Das zeitliche Verhalten der aggregierten Einflüsse von Beweglichkeit und Phasengrenzflächeninstabilität wird durch eine Änderung des  $C_{IP}$ -Wertes zum Zeitpunkt 7,5 s berücksichtigt, wie es Abb. 21 zeigt.

Die Messwerte für Versuche mit Packungselement verdeutlichen, dass der Wert des Parameters  $C_{IP}$  als Stoffsystemparameter (im Stoffaustauschmodell) unabhängig vom Vorhandensein eines Packungselementes ist. Ein einmaliger Effekt beim Eintritt des Tropfens in das Packungselement begründet das geringe Ausmaß der Stoffaustauschverbesserung. Der Tropfen wird durch die Änderung der Scherkräfte der äußeren Umströmung im Eintritt auf kurzer Distanz verzögert und dabei im Strömungsfeld durchmischt. Diese Durchmischung beim Packungseintritt wird als einziger zusätzlicher Einfluss der Packung auf das Stoffaustauschmodell erfasst, wie es in Abb. 21 zum Zeitpunkt 1,1 s erkennbar ist.

Die Abbildung der Durchmischung im Modell erfolgt numerisch, indem die Konzentration im Tropfen örtlich und zeitlich bestimmt wird. Hiermit wird der Tatsache Rechnung getragen,

dass über den Radius in Abhängigkeit von der Zeit unterschiedliche Konzentrationsprofile auftreten. Die Berechnung orientiert sich weitgehend an der Arbeit von *Henschke und Pfennig (2002)* und liefert nach Übertragung auf Packungskolonnen unter Verwendung der mittleren Konzentration  $\bar{y}$  den Zusammenhang

$$y_n \Big|_{\text{nach Packungseintritt}} = \Omega \bar{y} + (1 - \Omega) y_n \Big|_{\text{vor Packungseintritt}} \quad (22)$$

Innerhalb des Packungselementes steigt der Tropfen mit verzögerter Sedimentationsgeschwindigkeit von Strömungskanal zu Strömungskanal auf. Wie die Messwerte zeigen, kann kein Einfluss dieser verzögerten Strömung innerhalb der Packung auf den Stoffübergang festgestellt werden. Weiterhin ist keine Vermischung beim Übergang von einem Packungselement in das nächste erkennbar. Neben dem einmaligen Effekt auf den Stoffaustausch beim Packungseintritt beeinflusst die Packung signifikant nur die Fluidynamik. Somit wird der Stoffaustausch im Wesentlichen wieder nur durch die Gesamtverweilzeit bestimmt.

Das für den Packungseinfluss weiterentwickelte Stoffaustauschmodell ist in den ReDrop-Algorithmus unter Beachtung veränderter fluiddynamischer und stofflicher Randbedingungen eingearbeitet worden, so dass der Stoffübergang in Technikumsextraktionskolonnen mit geordneten Packungen vorhergesagt werden kann.

- Tropfenspaltung in Packungen:

Zur Beschreibung der Spaltung von Tropfen an geordneten Packungen wurden die Einflussfaktoren untersucht. Neben den Kenndaten für das eingesetzte Stoffsystem, der Pulsationsintensität und dem jeweiligen Tropfendurchmesser sind dies die geometrischen Kenngrößen von Packungen. Anschließend wurden in den nächsten Schritten die unterschiedlichen Einflussfaktoren auf die Tropfenspaltung in einzelne Modelle gefasst, die Modellgleichungen im Programmcode implementiert und in Simulationen sowohl angepasst als auch verifiziert.

Die Modellierung der Tropfenspaltung in Extraktionskolonnen mit geordneten Packungen wurde unter Verwendung der sehr umfangreichen experimentellen Ergebnisse von *Leu (1995)* mit ähnlichen Modellen, wie sie für Siebbodenkolonnen entwickelt wurden, umgesetzt, so dass eine Berechnung der für die Extraktion wesentlichen Spaltungsvorgänge an geordneten Packungen durchgeführt werden kann. Die zur Anpassung und Verifizierung verwendeten Literaturdaten (*Leu*) wurden für das Stoffsystem Toluol + Wasser ohne Berücksichtigung von Stoffaustauschvorgängen durch Einzeltropfenexperimente ermittelt. Im Modellierungskonzept waren allerdings Modifikationen notwendig, da anders als bei Siebböden der Dispergierort

nicht genau bestimmbar ist, sondern sich statistisch über der Höhe eines Packungselementes verteilt. Zuerst wurde ein Modell entwickelt, mit dem in einer rigorosen Optimierungsroutine die Abhängigkeit des stabilen Tropfendurchmessers  $d_{\text{stab}}$ , der gerade nicht mehr in einer geordneten Packung gespalten wird, von der Pulsationsintensität ermittelt werden kann. Hierzu wurde eine Energiebilanz verwendet, wie es auch bei der Modellierung des stabilen Tropfendurchmessers in Füllkörper- und Siebbodenkolonnen üblich ist. Die sich ergebende Bestimmungsgleichung für den Muttertropfendurchmesser  $d_{\text{MT}}$ , der gerade noch gespalten wird und somit  $d_{\text{stab}}$  entspricht, ist

$$d_{\text{stab}}^2 + d_{\text{stab}} \frac{(\pi a f + w_0 (d_{\text{stab}}))^2 (\rho_d + 0,6 \rho_c)}{2(\rho_c - \rho_d)g} - \frac{6\sigma(\sqrt[3]{n_{\text{TT}}} - 1)}{(\rho_c - \rho_d)g} = 0 \quad (23)$$

Gleichung 23 lässt sich iterativ lösen. Dabei bezeichnet  $af$  die Pulsationsintensität,  $w_0$  die Einzeltropfensedimentationsgeschwindigkeit als maximale Tropfengeschwindigkeit  $w_{\text{sed,max}}$ ,  $\rho_d$  und  $\rho_c$  die Dichten der dispersen (d) und der kontinuierlichen (c) Phase,  $g$  die Erdbeschleunigung und  $\sigma$  die Grenzflächenspannung. Die Anpassung des einzig freien Modellparameters  $n_{\text{TT}}$ , der ein Maß für die erzeugte Oberfläche und die Dissipation ist, kann die Abhängigkeit des stabilen Tropfendurchmessers von der Pulsationsintensität in ausreichender Genauigkeit wiedergeben. Es hat sich gezeigt, dass der Modellparameter selbst als lineare Funktion des Durchmessers angesetzt werden muss, um optimale Ergebnisse zu erhalten. Dies bedeutet, dass der Parametersatz selbst zwei Werte enthält, mit denen aber allgemeingültig über alle Pulsationsintensitäten der stabile Tropfendurchmesser  $d_{\text{stab}}$  hinreichend genau vorausberechnet werden kann (vgl. Abb. 22). Schon aus den experimentellen Werten, die aus der Literatur entnommen wurden, konnte hergeleitet werden, dass der stabile Tropfendurchmesser unabhängig vom eingesetzten Packungstyp ist. Daher kann nach den Ergebnissen dieses Teilschritts festgehalten werden, dass der hier ermittelte Parametersatz allgemeingültig für die Extraktion in Kolonnen mit geordneten Packungen angesetzt werden kann.

In einem weiteren Schritt wurden anschließend die lokalen Zerfallswahrscheinlichkeiten für Muttertropfen modelliert, die einen größeren Durchmesser als den stabilen Tropfendurchmesser aufweisen. Der anschauliche Vorgang, dass für einen Tropfen die Wahrscheinlichkeit unterschiedlich ist, wenn er sich in einem Kolonnenteil ohne Einbauten, innerhalb einer Packung oder gerade am Eintritt in ein Packungselement befindet, wurde durch die Formulierung unterschiedlicher funktionaler mathematischer Zusammenhänge für die lokalen Zerfallswahr-

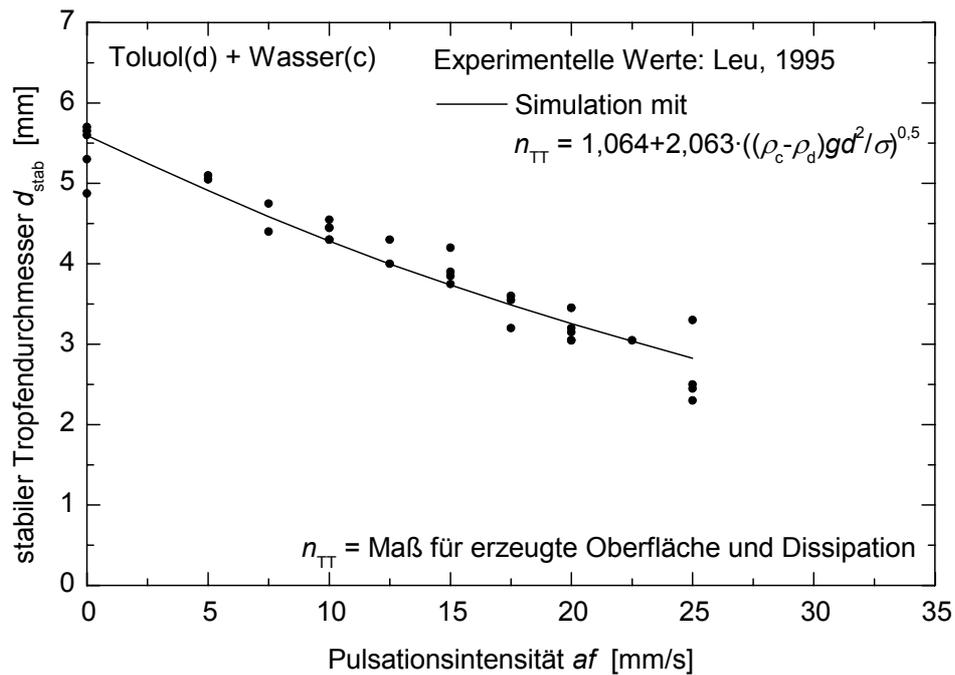


Abb. 22: Vergleich von gemessenen Daten zum stabilen Tropfendurchmesser  $d_{stab}$  mit berechneten Werten f\ur  $d_{stab}$  bei Wahl von  $n_{TT} = 1,064 + 2,063 \cdot ((\rho_c - \rho_d) g d^2 / \sigma)^{0,5}$  in der Simulation

scheinlichkeiten der Tropfen gefasst, von denen hier exemplarisch der Ansatz

$$p_{S,LUK} = k_S N_{LUK} (2af + w_{T,abs}) d_{MT} \left( \frac{d_{MT} - d_{stab}}{d_{MT}} \right)^{a_1} \quad (24)$$

f\ur die lokale Zerfallswahrscheinlichkeit  $p_{S,LUK}$  beim Eintritt in ein Packungselement gegeben ist. Die Einflussparameter auf die Zerfallswahrscheinlichkeit sind dabei zum einen die geometrischen Kennzahlen der Packung, die die Anzahl der m\oglichen Dispergierstellen  $N_{LUK}$  an der Lamellenunterkante bestimmen. Zum Zweiten ist die relative Geschwindigkeit  $2af + w_{T,abs}$  des Tropfens gegen\uber den Einbauten zu ber\ucksichtigen. Au\erdem gehen der aktuelle Tropfendurchmesser  $d_{MT}$  im Bezug zum stabilen Tropfendurchmesser  $d_{stab}$  und die Stoffdaten (\uber  $w_{T,abs}$ ) ein. Die einzig freien Parameter  $k_S$  und  $a_1$ , die in den Modellgleichungen der lokalen Zerfallswahrscheinlichkeiten auftreten, wurden durch die Implementierung einzelner Programmschritte in das ReDrop-Programm mit anschlie\endem Vergleich der Simulationsergebnisse zu Literaturdaten bestimmt. Als Vergleichsgr\o\e diente die globale Zerfallswahrscheinlichkeit von Einzeltropfen. Es konnte ein Parametersatz ermittelt werden, der die Literaturdaten hinreichend genau abbildet (vgl. Abb. 23).

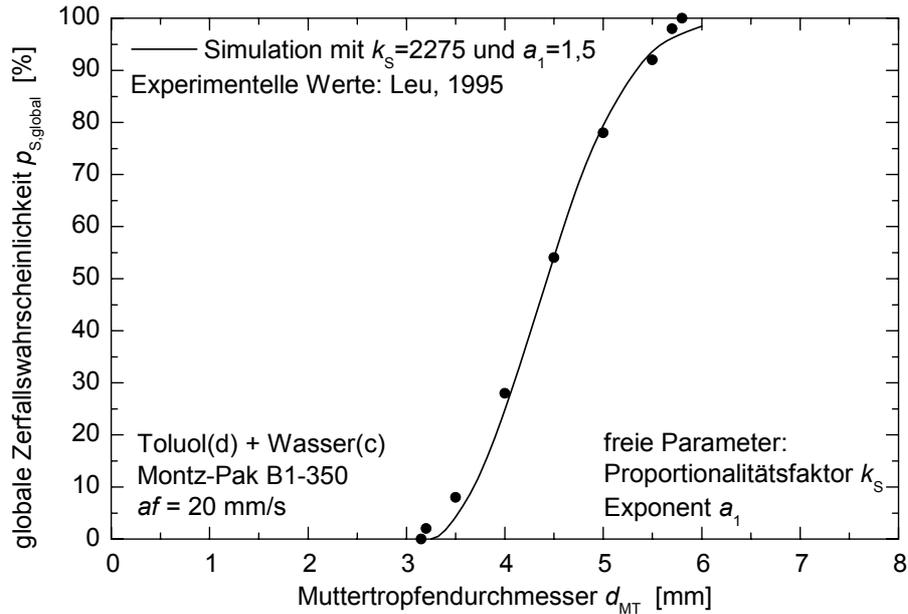


Abb. 23: Globale Zerfallswahrscheinlichkeit  $p_{S,global}$  in Abhängigkeit vom Muttertropfendurchmesser

Des Weiteren wurden die im Vorfeld ermittelten Parameter und damit auch die neu erstellten, allgemeingültigen Modelle für die Tropfenspaltung an geordneten Packungen anhand einer Simulation der Tochtertropfengrößenverteilung überprüft. Hierfür waren neben der Entwicklung wesentlicher Modelle sowohl zum stabilen Tropfendurchmesser als auch zur Zerfallswahrscheinlichkeit zusätzlich Annahmen zur Tochtertropfenanzahl und zur Tochtertropfengröße zu treffen. Für die Tochtertropfenanzahl wurde festgelegt, dass immer genau zwei Tochtertropfen bei einer Spaltung entstehen. Für die Tochtertropfengröße bei der Spaltung eines Einzeltropfens wurde ein monomodaler Zusammenhang angenommen. Mit dieser Voraussetzung konnten mit der Simulation die experimentell ermittelten Tochtertropfengrößenverteilungen für die drei untersuchten, unterschiedlichen Muttertropfendurchmesser abgebildet werden (vgl. exemplarisch Abb. 24).

Grundsätzlich können durch das festgestellte Maß an Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den simulierten Verläufen der Tochtertropfengrößenverteilung (vgl. Abb. 24) die ermittelten Parametersätze und damit auch die Modellierung an sich, die entwickelt und umgesetzt wurde, bestätigt werden, sodass nun eine Abbildung einer Tropfenspaltung an geordneten Packungen mit der ReDrop-Extraktionskolonnensimulation unter Verwendung der erstellten Erweiterungen möglich ist. Mit dieser Kenntnis von Tropfengröße und -anzahl kann nun auch die für den Stoffaustausch relevante Grenzfläche zwischen den Phasen in der Kolonne ermittelt werden.

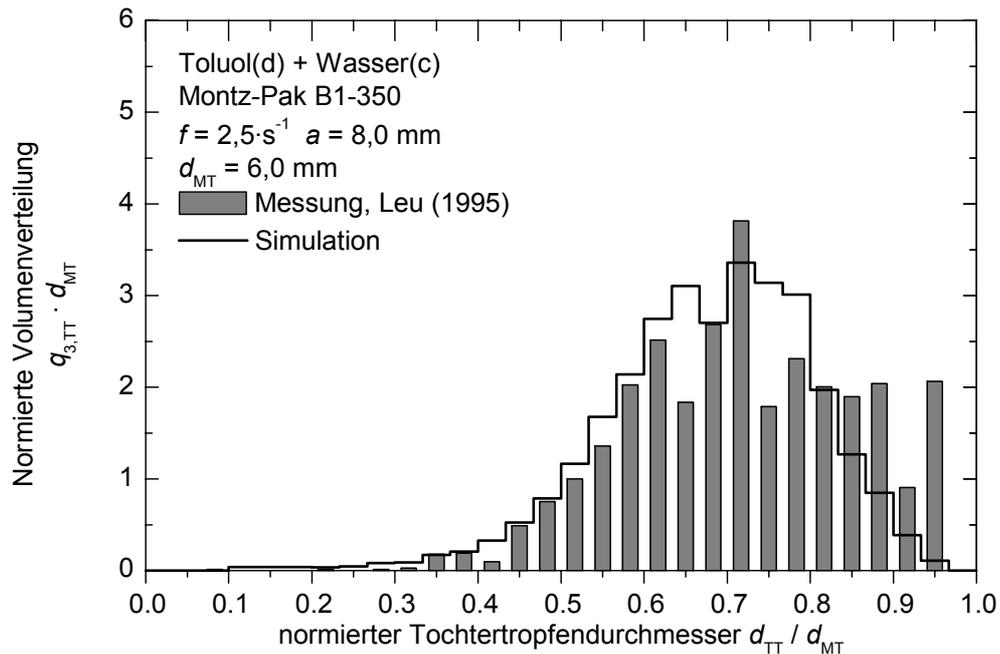


Abb. 24: Vergleich der berechneten normierten mit der experimentellen normierten Tochtertropfengrößenverteilung  $q_{3,TT} d_{MT}$  für einen Tropfendurchmesser am Verteiler von  $d_{MT} = 6,0 \text{ mm}$

### Untersuchung weiterer Stoffsysteme in Einzeltropfenmesszellen

Um eine breitere Datenbasis zu schaffen und den weiteren Abgleich mit den Daten der „Datenbank Extraktion“ sowohl für Siebboden- als auch für Packungskolonnen zu ermöglichen, sind weitere Untersuchungen für das Stoffsystem n-Butylacetat + Wasser + Aceton und ein von den Industriepartnern zur Verfügung gestelltes technisches Stoffsystem in der Sedimentations- und der Stoffübergangsmesszelle durchgeführt worden. Das zweite System ist ein Mehrstoffsystem, mit dem die Modellrechnungen und auch die Durchführbarkeit der Messzellenversuche auf ihre technische Übertragbarkeit getestet wurden.

Abbildung 25 zeigt die Ergebnisse zum Stoffsystem n-Butylacetat + Wasser + Aceton, die in der Einzeltropfenmesszelle DN 15 mit Siebbodenelement bei Umgebungsbedingungen gewonnen wurden. Die dimensionslose mittlere treibende Konzentrationsdifferenz  $y^+$  ist gegenüber der Verweilzeit unterhalb des Siebbodens  $t_{un}$  bei konstanter Gesamtverweilzeit (6 s) der Tropfen in der Messzelle aufgetragen. Die Daten zeigen, dass der Einfluss des Siebbodens bei dem Stoffsystem n-Butylacetat + Wasser + Aceton auf den Stoffaustausch nicht so deutlich ist wie beim System Toluol + Wasser + Aceton.

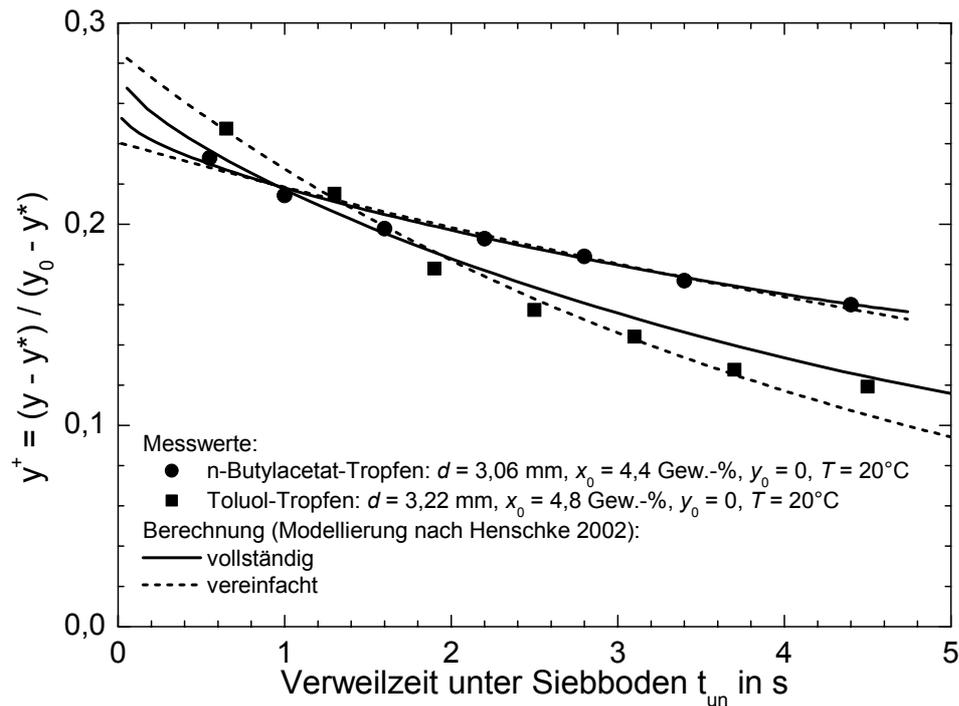


Abb. 25: Siebbodeneinfluss auf den Stoffaustausch

Abbildung 26 zeigt die Ergebnisse zur Messung der Einzeltropfensedimentationsgeschwindigkeit im Leerrohr für das technische Stoffsystem unter Stoffaustauschbedingungen. Die Sedimentationsgeschwindigkeit ist über dem Tropfendurchmesser aufgetragen. Der Vergleich mit den Grenzfällen eines ideal beweglichen ( $d_{um} \rightarrow 0$ ) und eines starren Tropfens ( $d_{um} \rightarrow \infty$ ), deren Verlauf ebenfalls dargestellt ist, zeigt, dass das Stoffsystem sich annähernd so verhält wie ein starrer Tropfen. Der mit einer durchgezogenen Linie dargestellte Verlauf der Sedimentationsgeschwindigkeit ist durch Anpassung der Modellparameter vorausberechnet worden und bildet die Messwerte hinreichend genau ab.

Das technische Stoffsystem zeigte in Bezug auf den Stoffaustausch ein sehr viel trägeres Verhalten als das Stoffsystem Toluol + Wasser + Aceton. In Abbildung 27 wird die dimensionslose mittlere treibende Konzentrationsdifferenz  $y^+$  gegenüber der Gesamtverweilzeit in der Messzelle ohne Einbauten aufgetragen. Während die treibende Konzentrationsdifferenz bei Toluol schon nach wenigen Sekunden abgebaut wurde, wird dieser Zustand beim technischen System erst nach mehr als 5 Minuten erreicht. Grundsätzlich könnte mit der Modellierung des Stoffaustauschs, die dem ReDrop-Modell zugrunde liegt (Gln. 16ff), der Verlauf abgebildet werden. Allerdings liegen die experimentellen Daten zu Beginn des Versuchs eher über den Werten der Modellrechnung, während sie bei größeren Verweilzeiten Abweichungen nach unten zeigen.

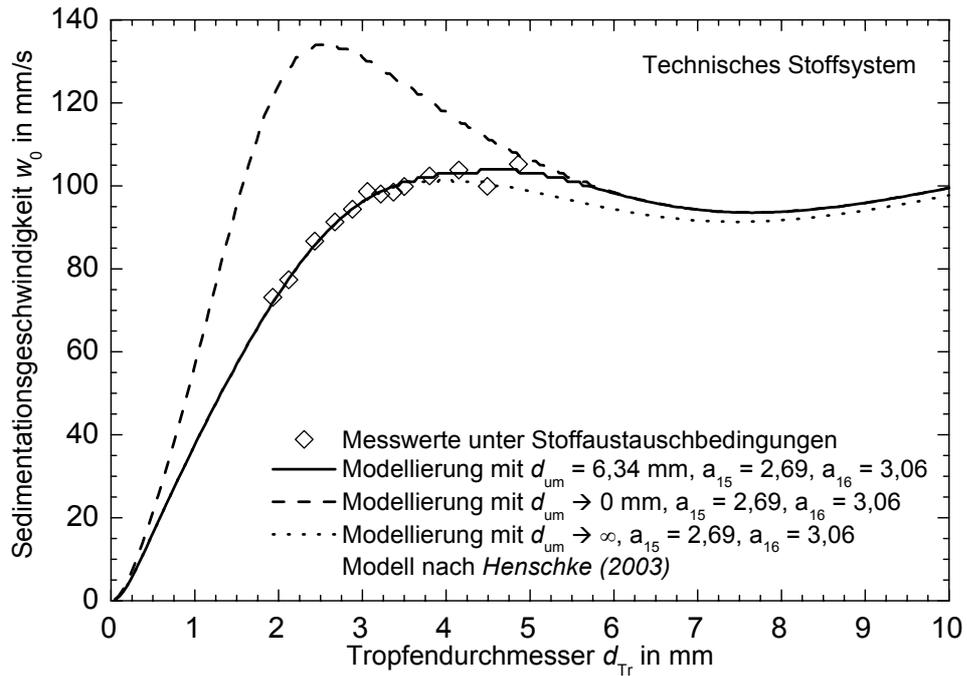


Abb. 26: Gemessene und berechnete Einzeltropfensedimentationsgeschwindigkeit  $w_0$  für das technische Stoffsystem

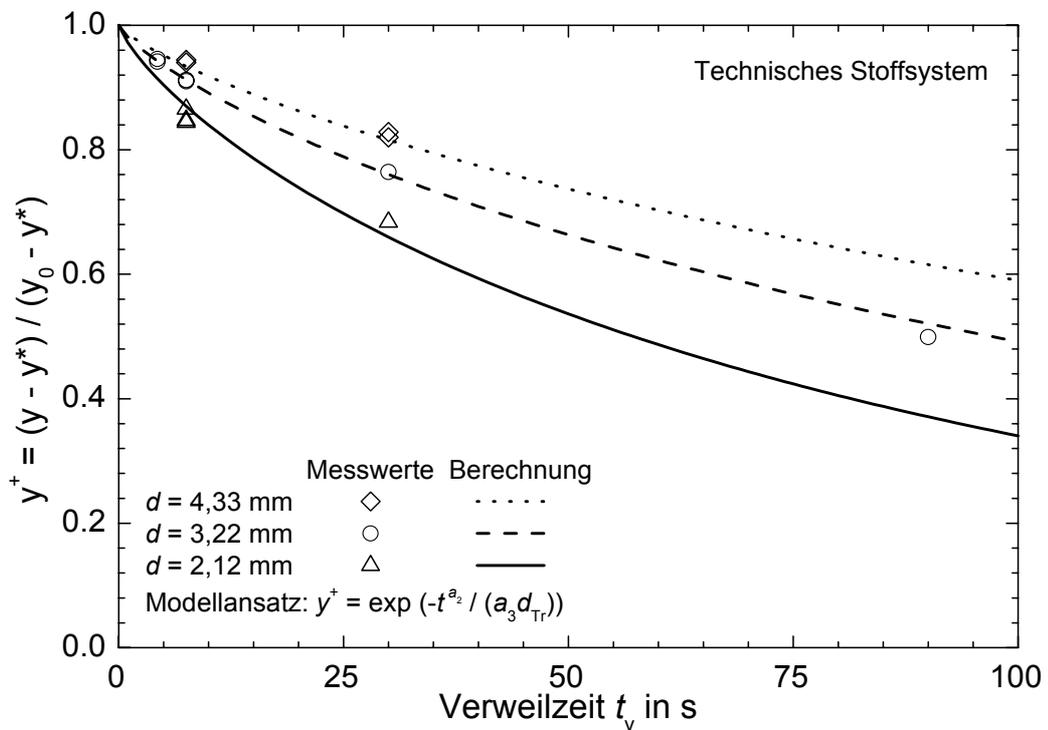


Abb. 27: Abnahme der dimensionslosen mittleren treibenden Konzentrationsdifferenz  $y^+$  in Abhängigkeit von der Tropfenverweilzeit und vom Tropfendurchmesser in der Messzelle ohne Einbauten

Für dieses Verhalten gibt es zwei Erklärungsansätze. Zum einen gibt es Hinweise dafür, dass der Stoffaustausch nicht rein physikalisch bestimmt ist, sondern auch reaktionskinetische Vorgänge eine Rolle spielen können. Das für eine physikalische Extraktion abgeleitete Stoffaustauschmodell kann insofern ohne Modifikation die gemessenen Werte nicht optimal wiedergeben. Unter Verwendung einer Exponentialfunktion der Form

$$\frac{y(t) - y^*}{y_0 - y^*} = \exp\left(\frac{-t_v a_2}{a_3 d_{Tr}}\right) \quad (25),$$

wie sie bei Ansätzen zur Beschreibung von kinetisch bestimmten Stofftransportvorgängen eingesetzt wird, ist es möglich, die gemessenen Daten durch Anpassung der freien Parameter  $a_2$  und  $a_3$  genau abzubilden (Fit ergibt  $a_2 = 0,7906$  und  $a_3 = 16688,5 \text{ s}^{0,7906} \text{ m}^{-1}$ ). Die berechneten Verläufe nach Gl. 25 sind in Abbildung 27 eingetragen. Zum anderen legt der Verlauf der Messwerte nahe, dass bei diesem Stoffsystem eine zeitliche Zweiteilung der bestimmenden Stofftransportvorgänge angesetzt werden muss. Anhand von Messungen konnte ermittelt werden, dass die Hauptübergangskomponente, die hier dargestellt ist, dann verstärkt extrahiert werden kann, wenn das Extraktionsmittel mit einer weiteren Übergangskomponente aus dem Mehrstoffsystem beladen ist.

Für das technische Mehrstoffsystem ist exemplarisch für alle Stoffsysteme, die untersucht wurden, auch der Einfluss des Tropfendurchmessers auf den Stoffaustausch in Abbildung 27 dargestellt. Wie erwartet und durch die Modellierung erfasst, ist der Stoffaustausch bei kleineren Tropfendurchmessern besser als bei großen.

### **Programmerweiterungen**

Im Rahmen der Programmerweiterungen wurden die beiden folgenden Inhalte bearbeitet. Zum ersten wurden geeignete Maßnahmen eingeführt, durch die vor allem die benötigte Rechenzeit reduziert wird. Insbesondere werden nun rechenzeitintensive Funktionen nicht individuell ausgewertet, sondern lediglich beim Programmstart z.B. für den Bereich der unabhängigen Variablen Wertfelder ermittelt. In diesen Wertefeldern kann anschließend zwischen den so erzeugten Stützstellen geeignet interpoliert werden. Zum zweiten ist der ReDrop-Algorithmus der Extraktionskolonnensimulation so erweitert worden, dass die Berechnungsabläufe die Gegebenheiten in einer Packungskolonnen erfassen. Die Schnittstellen zwischen den einzelnen Berechnungen für die Grundmechanismen wurden an die Gegebenheiten in einer Packungskolonnen angepasst. Das Programm verweist nun immer auf zu hinterlegende

Packungsdetailmodelle und berücksichtigt, dass Packungen im Vergleich zu Siebböden eine in der Simulation relevante Ausdehnung in der Höhe haben. Diese prinzipielle Funktionalität ist losgelöst von konkreten Detailmodellen. Zur Zeit sind die im Abschnitt „Erweiterung des ReDrop-Modells für Kolonnen mit geordneten Packungen“ aufgeführten Modelle implementiert.

### Simulation von Technikumsextraktionskolonnen

Die in den vorhergehenden Arbeitsschritten entwickelten Modelle wurden in die Extraktionskolonnensimulation ReDrop eingebunden. Die Simulationsrechnungen ergaben eine gute Übereinstimmung mit den experimentell im Technikumsmaßstab an pulsierten Siebbodenkolonnen gewonnenen Daten für das Stoffsystem n-Butylacetat + Wasser + Aceton. Exemplarisch wird in Abbildung 28 die vorausberechnete theoretische Stufenzahl der experimentell bestimmten gegenübergestellt. Die theoretische Stufenzahl  $N_{th}$  ist über der Gesamtbelastung für unterschiedliche Siebböden und Pulsationsintensitäten aufgetragen. Das Rechenergebnis der Simulation ist in der Lage, die unterschiedlichen Betriebsweisen jeweils in der Größenordnung und im Verlauf richtig abzubilden. Damit ist der ReDrop-Algorithmus, der dieser Extraktionskolonnensimulation zugrunde liegt, ein geeignetes Werkzeug, um die Trennleistung der Kolonne in einem weiten Bereich vorherzusagen.

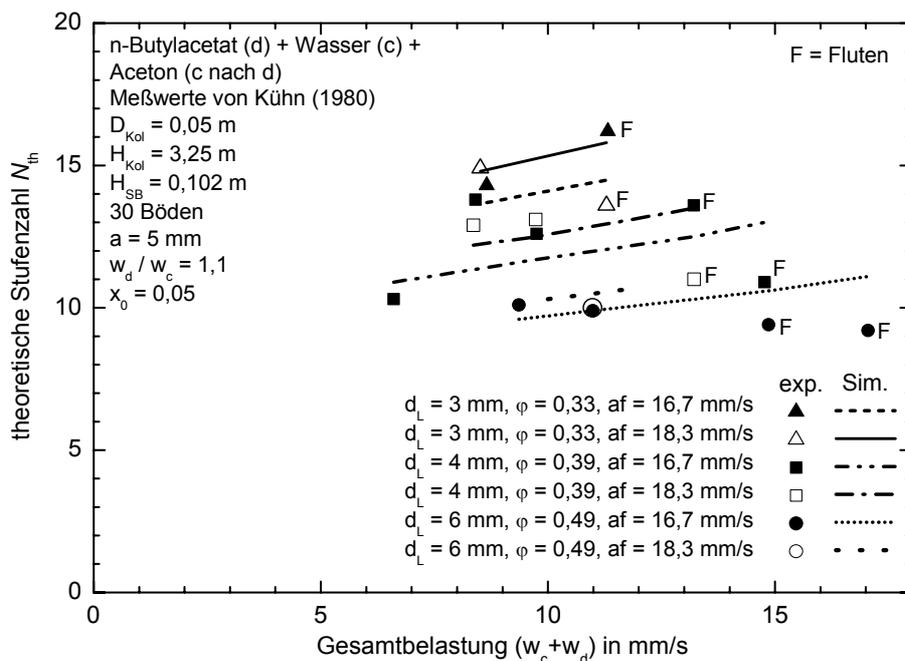


Abb. 28: Vergleich von Simulationsergebnissen für Technikumskolonnen der AG Pfennig mit Messwerten von Kühn (1980)

Die Ergebnisse für Simulationsrechnungen mit geordneten Packungen werden auf dem 589. DECHEMA-Kolloquium „Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne – Anforderungen und neue Entwicklungen“ am 10. März 2005 in Frankfurt (s. Kapitel 9) präsentiert.

## 3.4 Lösungsweg und Ergebnisse der AG Bart

### 3.4.1 Lösungsweg

Die Aufgabe der AG Bart (Forschungsstelle TU Kaiserslautern) im Verbundprojekt besteht vor allem darin, **gerührte Extraktionskolonnen auf Basis von Einzeltropfen- und Tropfenschwarmexperimenten zu modellieren und zu simulieren**. Dabei sollen die grundlegenden Detailmodelle zu Stofftransport, Hydrodynamik am Tropfen, Tropfenzerfall und Koaleszenz sowie die Bedienung des Simulationsprogramms für unterschiedliche Kolonnen-typen weitestgehend einheitlich gestaltet sein. Weiterhin soll in das vorhandene Simulationsprogramm POPMOD, welches auf die Tropfenpopulationsbilanz basiert, der Stoffübergang an den Tropfen integriert werden. Zudem soll das Simulationsprogramm POPMOD für die Anwendung auf weitere Typen gerührter Kolonnen erweitert werden.

Das Ziel, die Hydrodynamik und den Stoffaustausch einer gerührten Extraktionskolonne mit geeigneten Modellen vorherzusagen, wird bereits seit Jahren verfolgt. Modelle wie das Pfropfenströmungs- oder das Zellenmodell beschreiben allerdings die realen Vorgänge nur unzureichend, da Tropfeninteraktionen wie Tropfenzerfall und -koaleszenz mit diesen Modellen nicht beschrieben werden können. Ein viel versprechender Ansatz ist daher die Simulation dieser Apparate mit dem bivarianten Tropfenpopulationsbilanzmodell (BTPBM), dessen Ansatz die zeitliche und stationäre Entwicklung der Tropfengrößen- und Wertstoffmassenverteilung in der Kolonne unter Berücksichtigung von Tropfenaufstieg, axialer Dispersion, Koaleszenz und Zerfall unter Stoffaustauschbedingungen beschreibt. Die in die Tropfenpopulationsbilanzgleichung eingehenden Modellparameter basieren auf der experimentelle Studie von Einzeltropfen und Tropfenschwärmen, welche in kleinen Labormesszellen und an charakteristischen Kolonneneinbauten durchgeführt werden.

### 3.4.2 Ergebnisse – Tropfenpopulationsbilanzmodell und die LLECMOD-Simulation

Das verwendete Tropfenpopulationsbilanzmodell zur Charakterisierung gerührter Extraktionskolonnen basiert auf Anzahl- und Massenbilanzen und stellt im Wesentlichen eine Erweiterung des Dispersionsmodells auf ein polydisperses System dar (*Kronberger et al., 1995*). Darüber hinaus berücksichtigt das Modell die Tropfenschwarmspezifischen Tropfen-Tropfen Interaktionen (Zerfall und Koaleszenz) sowie den Tropfentransport (Aufstieg und axiale Dis-

persion). Das Modell beschreibt die örtliche Tropfengrößen- und Wertstoffmassenverteilung in einer Extraktionskolonne zum Zeitpunkt  $t$  unter stationären oder instationären (z. B. An-/Abfahren, Lastwechsel oder Fluten der Kolonnen) Konditionen. Zur Herleitung der Bilanzgleichung der dispersen Phase wird die Anzahlverteilung des örtlichen Volumenanteils einer Tropfenklasse, zum Zeitpunkt  $t$  an der Kolonnenhöhe  $z$  zugrunde gelegt. Die allgemeine, durch Hydrodynamik und Stoffaustausch in einem räumlichen Definitionsbereich gekoppelte, Populationsbilanzgleichung lautet (Attarakih et al. 2003, Attarakih et al. 2004):

$$\frac{\partial n_{d,c_d}(\psi)}{\partial t} = -\frac{\partial[w_d n_{d,c_d}(\psi)]}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left[ D_{ax,d} \frac{\partial n_{d,c_d}(\psi)}{\partial z} \right] - \sum_{i=1}^2 \frac{\partial[\zeta_i n_{d,c_d}(\psi)]}{\partial \zeta_i} + \frac{Q_d^{in}}{A_c} n_d^{in}(d, c_d; t) \delta(z - z_d) + \mathcal{Y}\{\psi\} \quad (26)$$

Jede Tropfenklasse wird durch die bivariate Anzahlverteilungsdichte  $n_{d,c_d}(\Psi)$  in Abhängigkeit des Komponentenvektors  $\Psi$  über die Tropfengröße und Lösungsmittelkonzentration charakterisiert. Der in Gl. (26) angeführte Vektor  $\Psi = [d \ c_d \ z \ t]$  beinhaltet die Komponenten, Tropfendurchmesser  $d$  und Lösungsmittelkonzentration  $c_d$  als interne Koordinaten im Definitionsbereich  $[d, d+\partial d]$  und  $[c_d, c_d+\partial c_d]$ , sowie die Höhendiskretisierung  $z$  zum Zeitpunkt  $t$  als externe Koordinaten. Die zeitliche Ableitung des Vektors  $\zeta = [d, c_d]$  beschreibt die Tropfengeschwindigkeit und Stoffaustauschrate einer Tropfenklasse  $d_i$ . Der erste und zweite Term in der rechten Seite von Gl. (26) beschreibt den Tropfentransport mit der Tropfenaufstiegs geschwindigkeit  $w_d$  und der axialen Dispersion über den Dispersionskoeffizienten  $D_{ax,d}$ . Der vorletzte Term stellt den Quellterm für den Zulauf der dispersen Phase dar.

Der Quellterm  $\mathcal{Y}\{\psi\}$  in Gl. (26) umfasst die Quellterme für den Zerfall und die Tropfen-Tropfen Koaleszenz:

$$\mathcal{Y}(\psi) = S_{Break}(d, c_d; t, z) + S_{Coal}(d, c_d; t, z) \quad (27)$$

Der Zerfallsterm  $S_{Break}$  beschreibt den Gewinn und Verlust an Tropfen für jede Tropfengrößenklasse  $d \pm \Delta d/2$ . Der Gewinn an Tropfen durch den Tropfenzerfall der Muttertropfen mit der Größe  $d'$  ist durch die Tochtertropfenverteilung  $\beta(d, d')$  charakterisiert und die Zerfallsfrequenz wird durch die Funktion  $\Gamma(d, \varepsilon_d)$  berechnet. Der Verlust an Tropfen wird durch den zweiten Term in Gl. (28) berücksichtigt.

$$S_{Break}(d, c_d; t, z) = \int_d^{d_{max}} \int_0^{c_{d,max}} \Gamma(d', \varepsilon_d) \beta_n(d | d') n_{d,c_d}(d', c'_d; t, z) \delta(c'_d - c_d) \partial d' \partial c'_d - \Gamma(d, \varepsilon_d) n_{d,c_d}(d, c_d; t, z) \quad (28)$$

Der Quellterm  $S_{Coal}$  für Gewinn und Verlust von Tropfen durch Koaleszenz folgt aus der direkten Betrachtung der möglichen Koaleszenzereignisse. Die Integration über alle möglichen Ereignisse, die zur Bildung oder zum Verlust von Tropfen des Durchmessers  $d \pm \Delta d/2$  führen, ergeben den Quellterm für die Koaleszenz.

$$S_{Coal}(d, c_d; t, z) = \frac{1}{2} \int_0^d \int_{c'_{d,min}}^{c'_{d,max}} \omega(d', \eta, \varepsilon_d) \left( \frac{d}{\eta} \right)^5 n_{d,c_d}(d', c'_d; t, z) n_{d,c_d}(\eta, c''_d; t, z) \partial d' \partial c'_d - n_{d,c_d}(d, c_d; t, z) \int_0^{(d_{max}^3 - d^3)^{1/3}} \int_0^{c_{d,max}} \omega(d, d', \varepsilon_d) n_{d,c_d}(d', c'_d; t, z) \partial d' \partial c'_d \quad (29)$$

mit

$$\eta = (d^3 - d'^3)^{1/3},$$

$$c''_d = \frac{c_d v(d) - c'_d v(d')}{v(d) - v(d')}$$

$$c'_{d,min} = \max(0, c_{d,max} (1 - v(d) / v(d') (1 - c_d / c_{d,max})))$$

$$c'_{d,max} = \min(c_{d,max}, (v(d) / v(d')) c_d)$$

Der erste Term der Gl. (29) beschreibt den Gewinn an Tropfen des Durchmessers  $d \pm \Delta d/2$  aus der Koaleszenz kleinerer Tropfen und der zweite Term den Verlust an Tropfen dieses Durchmessers. Hierbei entspricht  $\omega(d, d', \varepsilon_d)$  der Koaleszenzrate an Tropfen des Durchmessers  $d$  und  $d'$ .

Die Konzentration der Übergangskomponente in der kontinuierlichen Phase  $c_c$  wird über eine Bilanzierung der Übergangskomponenten erhalten. Die daraus folgende Transportgleichung der kontinuierlichen Phase beschreibt den Stoffaustausch entlang beider Phasen für eine Wertstoffkonzentration  $c_c$  und ist direkt über eine Massenbilanz aus Konvektiv- und Quelltermen mit der Bilanzgleichung der dispersen Phase gekoppelt (*Attarakih, et al. 2003*).

$$\frac{\partial(\varepsilon_c c_c)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( w_c \varepsilon_c c_c + D_{ax,c} \frac{\partial(\varepsilon_c c_c)}{\partial z} \right) + \frac{Q_c^{in} c_c^{in}}{A_c} \delta(z - z_c) - \int_0^\infty \int_0^{c_{d,max}} \dot{c}_d v(d) n_{v,c_d}(\psi) \partial d \partial c_d \quad (30)$$

Die Erhaltungsgleichungen werden unter Berücksichtigung der sich unter Stoffaustausch zeitlich ändernden physiko-chemischen Stoffsystemeigenschaften gelöst. Die Variablenstruktur

von Gl. (30) auf der linken und der rechten Seite ist analog zur Gl. (26), nur dass sich die Terme auf die kontinuierliche Phase beziehen. Der erste Summand der rechten Seite beschreibt die Kontinuität, während der zweite Term der rechten Seite den Eintrittssprung  $Q_x^{in}$  der kontinuierlichen Phase darstellt. Der letzte Term in Gl. (30) umfasst die Stofftransportrate über die Phasengrenze hinweg. Zur Berechnung des Stoffaustausches nach der Zwei-Film Theorie werden die aus Einzeltropfenexperimenten entwickelten Modelle zur Berechnung der Stoffaustauschkoeffizienten verwendet. Die Änderung der Stoffeigenschaften beim Übergang der Transferkomponente entlang der Kolonnenhöhe wird über Stoffsystemkorrelationen nach *Misek et al. (1985)* berücksichtigt.

Eine detaillierte Beschreibung der Numerik zur Lösung der bivarianten Populationsbilanz, sowie der angewandten Techniken, ist ausführlich in *Attarakih (2004)* und *Attarakih et al. (2004)* gegeben. Neben der bivarianten populationsdynamischen Beschreibung von Extraktionskolonnen unter Berücksichtigung des Stoffaustausches und der Hydrodynamik konnte bei der numerischen Lösung des zugrunde liegenden Integrodifferenzialgleichungssystems über eine örtliche Diskretisierung mit Hilfe der Pivottechnik die notwendige Simulationszeiten bedeutend reduziert werden, so dass populationsdynamische Simulationen und Parameterstudien in Minutenschnelle durchgeführt werden können. Entscheidend für die Anwendung der bivariante Populationsbilanz ist, dass die eingehenden Modellparameter das populationsdynamische Verhalten des Einzeltropfen und Tropfenschwarms genau wiedergeben. Hier gilt es die Tropfenbewegung, die Tropfeninteraktionen (Zerfall und Koaleszenz) und den Stoffaustausch zu charakterisieren. Die notwendigen Modellparameter basieren auf der experimentellen Studien von Einzeltropfen und Tropfenschwärmen, die in kleinen Labormesszellen und an charakteristischen Kolonneneinbauten durchgeführt werden. Dadurch wird neben der Anzahl aufwendiger Technikumsversuche auch der Produktbedarf an Originalflüssigkeiten reduziert.

### **Simulationsprogramm LLECMOD**

Für die Simulation von Flüssig-Flüssig-Extraktionskolonnen auf Basis der bivarianten Populationsbilanz unter Stoffaustauschbedingungen wurde das Windows basierte Simulationsprogramm LLECMOD (**L**iquid-**L**iquid **E**xtraction **C**olumn **M**odel) programmiert (*Attarakih et al. 2004*). Neben der Leistungsfähigkeit der verwendeten Algorithmen, Modelle und Korrelationen ist die Einfachheit in der Anwendung eine wichtige Voraussetzung für die Anwendung des Simulationsprogramms. Die verwendete Programmiersprache Fortran 90 bietet die

Möglichkeit die Eingabe der Modellparameter mit Hilfe so genannter Dialogboxen zu erleichtern. Abb. 29 zeigt die für LECCMOD erzeugte benutzerfreundliche Oberfläche (Version 1.0) zur Simulation der Hydrodynamik. In der Benutzeroberfläche werden letztendlich die für eine Simulation notwendige Eingabeparameter eingegeben, wie z. B. Betriebsströme, Kolonnentyp, Einbautengeometrie usw. Die zur Simulation notwendigen Modellgleichungen für den Tropfenantrieb, den Stoffaustausch, den Tropfenzerfall und die Koaleszenz sind je nach Einbautenart in bereitgestellte Module, in FORTRAN 90 Schreibweise, implementiert. Durch die modulare Struktur des Programms können auch weitere Module für unterschiedliche Geometrien leicht ergänzt werden.

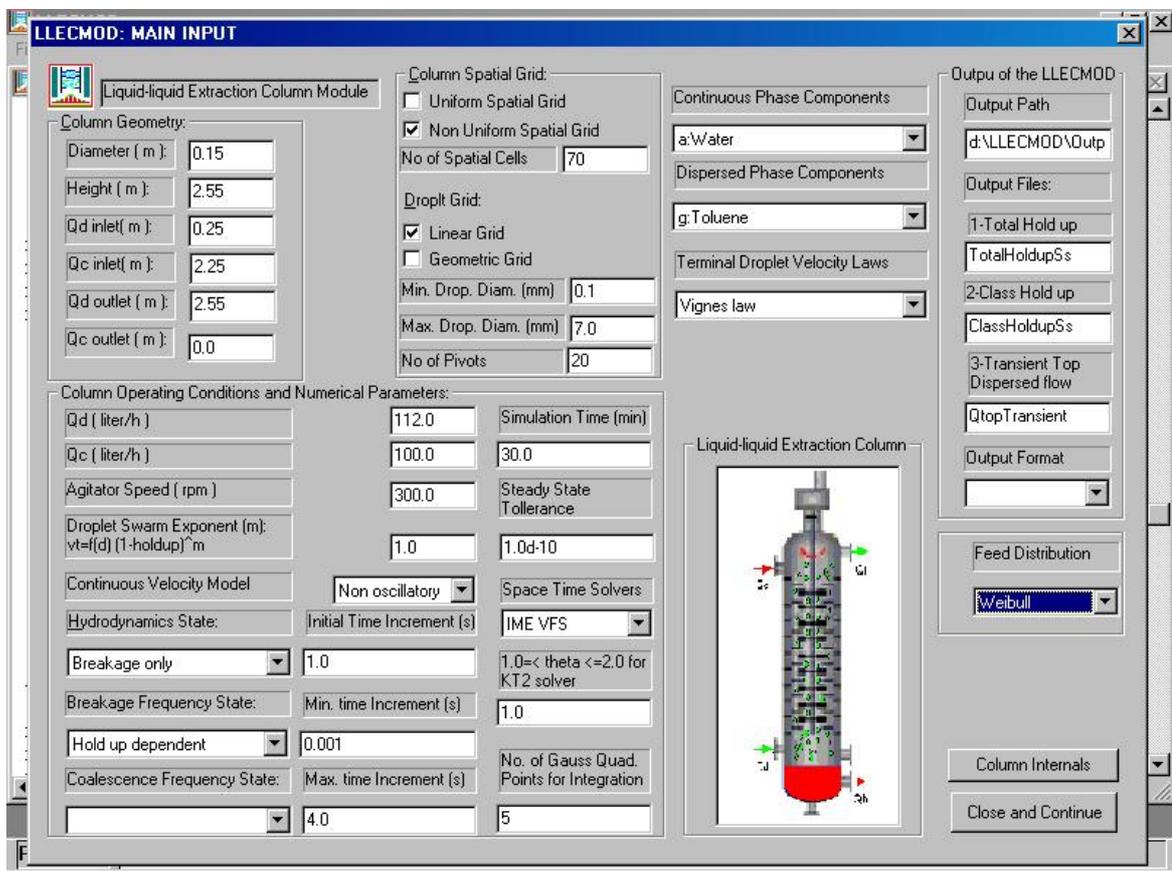


Abb. 29: Haupteingabemaske des Simulationsprogramms LLECCMOD

### 3.4.3 Ergebnisse – Einzeltropfen- und Tropfenschwarmuntersuchungen

Zur Bestimmung der in das BTMPM eingehende Modellparameter wurden im Rahmen dieses Projekts Einzeltropfen und Tropfenschwarmuntersuchungen durchgeführt. Für die Untersuchungen wurden die nach *Misek et al. (1985)* empfohlenen binären Stoffsysteme Toluol-

Wasser und n-Butylacetat-Wasser, sowie das ternäre Stoffsysteme Toluol-Aceton-Wasser verwendet. Weiterhin wurde auch das hochviskose Stoffsystem Wasser/Isotridecanol untersucht.

Für die Untersuchungen des Geometrieinflusses auf die Tropfenbewegung, den Tropfenzerfall und die Koaleszenz wurden Labormesszellen aufgebaut. Dabei wurde als Einbauten die Rührer der Bauart RDC und KÜHNI untersucht. Zur Validierung von Simulationsergebnissen wurden neben den Kleinapparaturen zwei Technikumsanlagen bereitgestellt. Eine genaue Beschreibung der Anlagen ist in den *Zwischenberichten (2002)* und *(2003)* dokumentiert. In den folgenden Abschnitten sind die Hauptergebnisse der Einzeltropfenexperimente und Tropfenschwarmexperimente dargestellt, sowie die entwickelten und verwendeten Modelle zur Simulation von Extraktionskolonnen der Bauart RDC und KÜHNI. Darauf folgend werden Simulationsergebnisse mit dem Tropfenpopulationsbilanzmodell präsentiert und mit eigenen Technikumsversuchen, sowie Technikumsversuchen aus der AG Stichtmair und Literaturdaten verglichen.

#### 3.4.3.1 Hydrodynamik / Stoffaustausch

Kennzeichnend für Flüssig-Flüssig-Extraktionskolonnen ist die vertikale Gegenströmung von Extrakt- und Raffinatphase. Extraktionskolonnen werden häufig durch vereinfachte Modelle wie das Propfenströmungsmodell oder das Dispersionsmodell angenähert. Diese Modelle betrachten die hydrodynamischen Vorgänge idealisiert und sind nicht in der Lage das reale Verhalten der dispergierten Phase bzw. des Tropfenschwarms darzustellen. Populationsdynamische Phänomene wie der tropfengrößenspezifische Auftrieb sowie der Zerfall und die Koaleszenz von Tropfen werden nicht erfasst. Entscheidend für die Berechnung der Stoffaustauschrate in Extraktionskolonnen sind u.a. die genaue Kenntnis des lokalen Hold-ups und der Tropfengrößenverteilung. Die Modellierung der Hydrodynamik, insbesondere der Schwarmeinfluss, d. h. den Übergang vom Einzeltropfen zum Tropfenschwarm, wurde u.a. durch die AG Stichtmair erfolgreich bearbeitet. Für die Beschreibung des Tropfenstransports mit Hilfe der Tropfenpopulationsbilanz wurden die von der AG Stichtmair entwickelten Modelle herangezogen. Weiterhin sind auch zur Beschreibung des freien Tropfenaufstieges die Modelle nach *Gourdon et al. (1994)* und das Modell nach *Henschke und Pfennig (1999)* im Programm implementiert. Die axiale Dispersion der kontinuierlichen Phase wurde für die RDC nach *Sommeregger (1980)* und für die Kühni nach *Breyse (1983)* beschrieben. In das Simulations-

programm sind zur Berechnung des Stoffaustausches nach dem zwei Film Modell unterschiedliche Stoffaustauschkorrelation aus Einzeltropfen- und Schwarmuntersuchungen implementiert.

### 3.4.3.2 Einzeltropfenzerfall

Der Zerfall von Tropfen in einer gerührten Extraktionskolonne wird vorwiegend durch das turbulente Strömungsfeld im Bereich der Rotorscheiben induziert. Die durch das Rührorgan erzeugten turbulenten Wirbel kollidieren mit der Tropfenoberfläche und übertragen dort einen Teil ihrer kinetischen Energie in Form von Scherkräften. Werden die angreifenden Scherkräfte größer als die erhaltenden Kräfte im Tropfen, so kommt es zum Tropfenzerfall in zwei oder mehrere Tropfen. Für die Bestimmung der im Tropfenpopulationsbilanzmodell erforderlichen systemspezifischen Zerfallparameter, Zerfallfrequenz  $\Gamma(d, \varepsilon_d)$  und Tochtertropfenverteilung  $\beta(d, d')$  wurde der Einzeltropfenzerfall für die RDC und KÜHNI Geometrie eingehend untersucht.

Die Zerfallsfrequenz im BTPB Modell errechnet sich nach dem Ansatz nach *Gourdon et al. (1994)* aus der Zerfallswahrscheinlichkeit  $p$  und der mittleren Verweilzeit der Tropfen im Kompartiment:

$$\Gamma(d, \varepsilon_d) = p(d) \frac{w_d(d, \varepsilon_d)}{H_c} = \frac{p(d)}{\tau_m} \quad (31)$$

Die Zerfallswahrscheinlichkeit für den Einzeltropfenzerfall wird experimentell in der Labor-messzelle mit nur einer Rührzelle über das Verhältnis aus dem Gesamtvolumen an zerfallene Tochtertropfen zu dem Gesamtvolumen an Muttertropfen bestimmt. Parameter bei den Einzeltropfenuntersuchungen sind der Energieeintrag (Rührerdrehzahl), der Muttertropfendurchmesser, die Rührergeometrie und das Stoffsystem. Für die Modellierung der Zerfallswahrscheinlichkeit wurde zunächst der Ansatz nach *Cauwenberg et al. (1997)* herangezogen. Ausgehend von der Theorie der isotropen Turbulenz hat *Cauwenberg* eine Korrelation für die Zerfallswahrscheinlichkeit  $p$  in Abhängigkeit einer modifizierten Weberzahl, bei der eine kritische Weberzahl berücksichtigt wird, vorgeschlagen. Die kritische Weberzahl ist die Weberzahl bei der die Tropfen gerade noch stabil sind und nicht zerfallen. Es konnte festgestellt werden, dass für das hochviskose Isotridecanol die Korrelationen nicht geeignet ist. Hierzu wurde eine neue Korrelation für hochviskose Stoffsysteme und niedrigviskose Stoffsysteme

entwickelt. Die Wahrscheinlichkeit für ein Zerfallsereignis wird korreliert, indem die zerstörenden Kräfte der Strömung ins Verhältnis zu den erhaltenen Oberflächenkräften und inneren Zähigkeitskräften gleich dem Wahrscheinlichkeitsverhältnis aus Erhaltung und Zerfall gesetzt werden. Der Einzeltropfenzerfall wird in folgender Form korreliert:

$$\frac{p}{1-p} = f_1 \cdot \left[ \frac{We_{\text{mod}}}{1 + f_2 \cdot \eta_d \cdot \frac{1}{\sqrt{\sigma \cdot d \cdot \rho_d}} \cdot We_{\text{mod}}^{0,5}} \right]^{f_3} \quad (32)$$

mit  $We_{\text{mod}} = \frac{\rho_c^{0,8} \eta_c^{0,2} d D_R^{1,6} (2\pi)^{1,8} (N^{1,8} - N_{\text{crit}}^{1,8})}{\sigma}$

Die dimensionslosen Konstanten  $f_1, f_2, f_3$  sind Rührerbauart spezifisch und werden anhand der experimentellen Daten angepasst. Die in der modifizierten Weberzahl enthaltene kritische Rotordrehzahl  $N_{\text{crit}}$  wird für die untersuchten Kolonnen über ausgehend von einer Energiebeurteilung nach *Calabrese et al. (1986)* berechnet (s. Tab. 1).

$$N_{\text{crit}} = f_4 \frac{D_R^{-2/3} \eta_d d^{-4/3}}{(\rho_c \rho_d)^{1/2}} + \left[ \frac{f_4 D_R^{-2/3} \eta_d d^{-4/3}}{2 (\rho_c \rho_d)^{1/2}} \right]^2 + f_5 \frac{\sigma}{\rho_c D_R^{4/3} d^{5/3}} \quad (33)$$

Tab. 1: Parameter zur Zerfallswahrscheinlichkeitsberechnung

	$f_1$	$f_2$	$f_3$	$f_4$	$f_5$
RDC	1.3E-06	0.33	2.78	0.016	0.127
KÜHNI	1.2E-03	0.476	2.58	0.136	0.0285

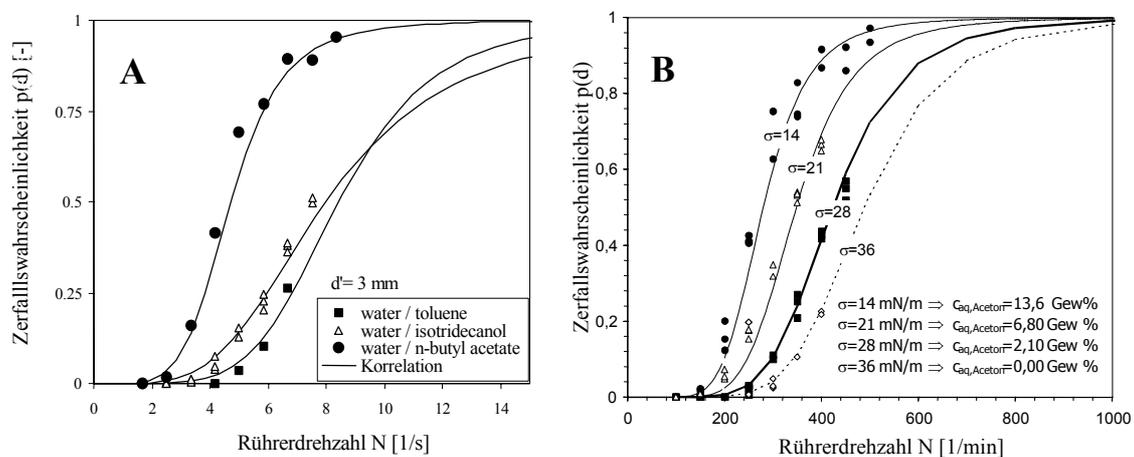


Abb. 30: Zerfallswahrscheinlichkeiten – RDC Geometrie

Zur Aufklärung des Stoffsystemeinflusses wurden der Einfluss der Grenzflächenspannung und der Dispersphasenviskosität auf den Zerfallsmechanismus in Abhängigkeit des Energieeintrages und der Tropfengröße untersucht. Abb. 30a stellt die gemessenen und berechneten Zerfallswahrscheinlichkeiten für die untersuchten niedrigviskosen Systeme Toluol/Wasser ( $\sigma=35$  mN/m) und n-Butylacetat/Wasser ( $\sigma=14$  mN/m) im Vergleich zum hochviskosen System Isotridecanol/Wasser ( $\sigma=15$  mN/m) dar. Abb. 30b zeigt die Zerfallskurven in Abhängigkeit der eingestellten Rührerdrehzahlen für vier Versuchsreihen mit dem Stoffsystem Wasser/Aceton/Toluol im Gleichgewicht bei unterschiedlichen Konzentrationen bzw. Grenzflächenspannungen. Ausgehend von den Einzeltropfenexperimenten konnte festgehalten werden, dass die dominierende Größe beim Zerfallsprozess die Grenzflächenspannung, die Viskosität, der Energieeintrag und der Tropfendurchmesser sind. Analog zur RDC Geometrie ergeben sich für die Kühni Geometrie die selben Abhängigkeiten. Allerdings ist im Gegensatz zur RDC Geometrie zu beobachten, dass aufgrund der höheren Energiedissipation des Kühnirührers, bereits bei geringerem Energieeintrag höhere Zerfallsraten zu beobachten sind.

Neben der phänomenologischen Zerfallsuntersuchungen wurde der Einzeltropfenzerfall unter Berücksichtigung des Stoffaustauschs untersucht und mit vorausberechneten Zerfallswahrscheinlichkeiten verglichen. Dabei wurde jeweils die Stoffaustauschrichtung von wässrig (C) nach dispers (D) und umgekehrt (D nach C) für das Stoffsystem Wasser/Toluol/Aceton betrachtet. Die Experimente konnten zeigen, dass die Zerfallswahrscheinlichkeit von der zeitlichen Tropfenkonzentration abhängig ist und somit entsprechend von der sich zeitlich ändernden bestimmenden Stoffsystemgrößen (Grenzflächenspannung, Zähigkeit etc.). Für die Berechnung der Zerfallswahrscheinlichkeit in einer Extraktionskolonne ist es somit notwendig den Einfluss der zeitlich veränderlichen Stoffsystemeigenschaften zu berücksichtigen.

Neben der Zerfallsfrequenz  $\Gamma(d, \varepsilon_d)$  ist zur Beschreibung des Zerfall-Quellterms in der Populationsbilanzgleichung die Angabe der Tochtertropfenverteilung  $\beta(d, d')$  notwendig. Die Verteilung der zerfallenen Tropfen bzw. Tochtertropfen wurde mit Erfolg durch eine Beta-Verteilung  $\beta(d_0, d)$  (Gl. (8)) beschrieben, wobei  $x_m$  die mittlere Anzahl der Tochtertropfen bedeutet.

$$\beta(d, d') = 3x_m(x_m - 1) \cdot \left[ 1 - \left( \frac{d}{d'} \right)^3 \right]^{(x_m - 2)} \frac{d^5}{d'^6} \quad (34)$$

Die Bestimmung der mittleren Tochtertropfenanzahl erfolgt aus der Anpassung einer diskretisierten, stationären Populationsbilanz an die experimentell ermittelten Austrittsverteilungen

eines Kompartments. Die mittlere Anzahl an Tochtertropfen ändert sich mit der Höhe der eingestellten Drehzahl, dem Tropfendurchmesser und dem Energieeintrag. Für die durchgeführten Untersuchungen und Stoffsysteme kann die mittlere Tropfenanzahl für die RDC Geometrie nach Gl. (35) und für die Kühni Geometrie nach Gl. (36) berechnet werden.

$$x_m = 2 + 1.77 \cdot 10^{-4} \left[ \left( \frac{d}{d_{krit}} \right) - 1 \right]^{3.19} \quad (35)$$

$$x_m = 2 + 0.882 \left[ \left( \frac{d}{d_{krit}} \right) - 1 \right]^{-0.489} \cdot p \quad (36)$$

In den Gl. (35) und (36) bezeichnet der kritische Durchmesser  $d_{krit}$  genau die Tropfengröße, die bei der eingestellten Drehzahl gerade nicht zerfällt. Der kritische Durchmesser wird iterativ für eine bestimmte Drehzahl über Gl. (33) ermittelt. Es konnte festgestellt werden, dass Tropfen in zwei oder mehrere Tropfen in Abhängigkeit des Stoffsystems und des Energieeintrages zerfallen können. Während bei der RDC Geometrie die mittlere Tochtertropfenanzahl zwischen 2 und 4 Tropfen liegt, konnten für die Kühni Geometrie sogar eine mittlere Tochtertropfenanzahl bis zu 10 Tropfen bestimmt werden. Die Bildung mehrere Tropfen, sowie die Tropfendeformation im Strömungsfeld, konnte auch über Hochgeschwindigkeitsaufnahmen (HCC1000, VDS Vosskühler) bestätigt werden. Abb. 31 stellt exemplarisch für ein Zerfallsexperiment an der Kühni Geometrie und für das Stoffsystem Isotridecanol/Wasser die gemessene und berechnete Tochtertropfengrößenverteilung am Kompartimentaustritt.

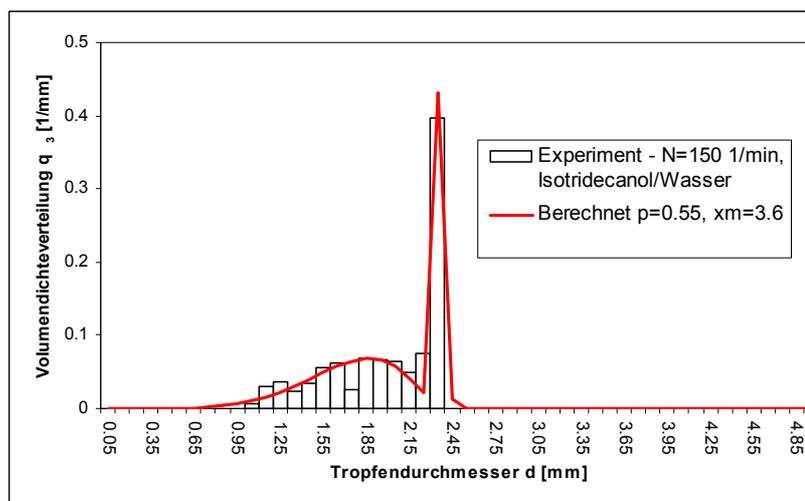


Abb. 31: Tochtertropfengrößenverteilung (Muttertropfen mit 2.35mm)

### 3.4.3.3 Tropfen-Tropfenkoaleszenz

Die Koaleszenz ist neben der Charakterisierung der Tropfenbewegung und des Tropfenzerfalls von entscheidender Bedeutung bei der Simulation gerührter Extraktionskolonnen. Im Falle der gerührten Extraktionskolonnen wird angenommen, dass Koaleszenz vorwiegend im strömungsberuhigten Bereich unterhalb der Statorplatten stattfindet. Zur Bestimmung der für das BTPBM erforderlichen Koaleszenzparameter wurde eine Apparatur im Labormaßstab aufgebaut, mit der die stoff- und apparatespezifischen Koaleszenzparameter in einer entsprechenden technischen Geometrie bestimmt werden können. Hauptunterschied zur Zerfallsapparatur liegt daran, dass anstelle eines einzelnen Kompartments fünf Kompartments verwendet werden. Hierdurch werden einerseits die Ein- und Auslaufeffekte benachbarte Kompartments berücksichtigt und statistische Schwankungen des Schwarmverhaltens minimiert. Weiterhin wird anstelle einer monodispersen Dispergierung ein Verteiler mit engem Tropfengrößenspektrum zur Erzeugung des Tropfenschwarms eingesetzt. Eine detaillierte Beschreibung der Anlage ist im *Zwischenbericht (2004)* dokumentiert.

In Anlehnung an die Versuche in der RDC Technikumskolonne wurden Experimente im Kolonnensegment unter Variation von Energieeintrag (Rührerdrehzahl) und Belastung realisiert. Bei stationärem Verhalten der Anlage wurden die Tropfengrößerverteilungen unter- und oberhalb des Kolonnensegments mit zwei photo-elektrischen Messsonden nach Pilhofer aufgenommen.

In den vorangegangenen Arbeiten konnte gezeigt werden, dass die in das Tropfenpopulationsbilanzmodell eingehenden Modellparameter Tropfenaufstieg, axiale Dispersion und Tropfenzerfall in Einzeltropfenexperimenten zuverlässig bestimmt und mit geeigneten Modellen beschrieben werden können. Allerdings zeigt sich, dass die Bestimmung der Koaleszenzparameter in technischen Geometrien nicht isoliert erfolgen kann. Neben der Koaleszenz sind alle populationsdynamischen Modellparameter gleichzeitig zu berücksichtigen. Hierzu wurde ein Programm geschrieben, mit dem die Koaleszenzparameter über einen Optimierungsalgorithmus bestimmt werden. Unter Lösung einer diskreten fünfstufigen Populationsbilanz werden in Abhängigkeit von Rotordrehzahl und Durchsatz die simulierten Tropfengrößerverteilungen am Austritt des Kompartments an die experimentell bestimmten Verteilungen unter Variation der modellspezifischen Koaleszenzparameter angepasst, bis die Abweichungen zwischen den Verteilungen ein Minimum erreichen. Für die Simulation wurden zur Berechnung des Tropfenaufstiegs und des Tropfenzerfalls die bereits aus Einzeltropfenuntersuchungen

bestimmten Korrelationen verwendet. Aufgrund der Charakteristik eines Differentialreaktors wurde in erster Näherung auf die Berücksichtigung von Dispersionseffekten verzichtet.

Für die Beschreibung der Koaleszenz wurden die Modellansätze nach *Sovova (1981)* und nach *Coulaloglou und Tavlarides (1977)* verwendet. Das Modell nach Sovova basiert auf eine Energiebetrachtung für den Fall, dass die Stoßenergie zweier Tropfen größer als ihre Oberflächenenergie ist. Das Modell nach Coulaloglou und Tavlarides ist der am häufigsten verwendete Ansatz zur Berechnung der Tropfen-Tropfen-Koaleszenz. Das Modell, welches für Rührkessel entwickelt wurde, basiert auf der kinetische Gastheorie und Filmdrainage-Theorie. Die charakteristische Größe in der bivariate Populationsbilanz ist die Koaleszenzfrequenz  $\omega(d, d', \varepsilon_d)$ , welche als Produkt aus der Kollisionsrate  $h(d, d', \varepsilon_d)$  und der Koaleszenzeffizienz  $\lambda(d, d', \varepsilon_d)$  gebildet wird:

$$\omega(d, d', \varepsilon_d) = h(d, d', \varepsilon_d) \cdot \lambda(d, d', \varepsilon_d) \quad (37)$$

Die Kollisionsrate zweier Tropfen berechnet sich analog der Kollision zweier Gasmoleküle nach der kinetischen Gastheorie.

$$h(d, d', \varepsilon_d) = c_1 \frac{\Omega^{1/3}}{1 + \varepsilon_d} (d + d')^2 (d^{2/3} + d'^{2/3})^{1/2} \quad (38)$$

Die Koaleszenzeffizienz  $\lambda(d, d', \varepsilon_d)$  wird im Modell in Abhängigkeit der Stoffsystemeigenschaften, der Tropfengröße und dem Energieeintrag modelliert. Ein Koaleszenzereignis kann nur dann stattfinden, wenn die Kontaktzeit zweier Tropfen die notwendige Drainagezeit zum Ausfließen der kontinuierlichen Phase überschreitet.

$$\lambda(d, d', \varepsilon_d) = \exp\left(-\frac{c_2 \eta_c \rho_c \Omega}{\sigma^2 (1 + \varepsilon_d)^3} \left(\frac{dd'}{d + d'}\right)^4\right) \quad (39)$$

Unter Berücksichtigung der eingangs diskutierten Modellparameter zum Tropfenzerfall wurden mit Hilfe des Optimierungsprogramms die Koaleszenzparameter in der RDC Geometrie für die Stoffsystem Toluol/Wasser und Butylacetat/Wasser ermittelt. In Tab. 2 sind die ermittelten Konstanten der Optimierungs-Simulationsrechnungen für beide Stoffsysteme zusammengefasst. Dabei handelt es sich um gemittelte spezifische Stoffkonstanten, welche zur Simulation der Technikumsanlage verwendet wurden.

Tab. 2: Anpassungskonstanten für die Bestimmung der Koaleszenzrate nach dem Modell von Sovova und Coulaloglou und Tavlarides

<b>Toluol/H2O</b>	<b>Konstante</b>	<b>Mittelwert</b>
Coulalogou & Tavlarides	$c_1 [-]$	$9,86 \times 10^{-2}$
	$c_2 [m^{-2}]$	$1,65 \times 10^{11}$
Sovova	$c_1 [-]$	$1,48 \times 10^{-2}$
	$c_2 [m^{-2}]$	$9,57 \times 10^{-1}$
<b>Butylacetat/H2O</b>	<b>Konstante</b>	<b>Mittelwert</b>
Coulalogou & Tavlarides	$c_1 [-]$	$3,60 \times 10^{-2}$
	$c_2 [m^{-2}]$	$1,15 \times 10^{10}$

Abb. 32 zeigt exemplarisch simulierte Tropfengrößensummenverteilungen am Austritt des Kolonnensegments im Vergleich zu experimentell ermittelten Verteilungen für das Stoffsystem Toluol/Wasser. Dabei betrug das Phasenverhältnis eins bei einer Gesamtbelastung von ca.  $11 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$ . Die Rührerdrehzahl wurde variiert zwischen 200 und 300 1/min.

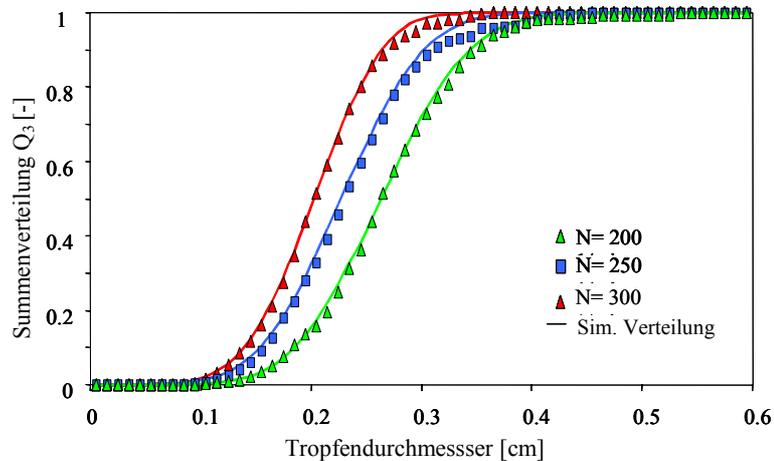


Abb. 32: Experimentelle Austrittsverteilungen an der Koaleszenzapparatur im Vergleich zu simulierten Verteilungen mit dem Optimierungsprogramm.

### 3.4.4 Ergebnisse – Simulationsrechnungen

Am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik der Technischen Universität Kaiserslautern wird das Ziel verfolgt, die Hydrodynamik und den Stoffaustausch in gerührten Extraktionskolonnen mit Hilfe des Tropfenpopulationsbilanzmodells vorherzusagen. Für die Durchführung der Simulationsrechnungen unter Stoffaustauschbedingungen wurde das in Abschnitt 3.4.2 beschriebene Simulationsprogramm LLECMOD verwendet. Weiterhin wurde auch die vorangegangene Version des Programms (POPMOD) zur Simulation ohne Stoffaustausch herangezogen. In den folgenden Kapiteln werden exemplarisch die Ergebnisse der Simulationsergebnisse im Vergleich zu experimentelle Messungen an Technikumskolonnen für die RDC und Kühni Geometrie dargestellt. Bei den Simulationen wurden die aus Einzeltropfen und Tropfenschwarmexperimenten entwickelten Modelle verwendet, welche in Kooperation mit der beteiligten Arbeitsgruppen erhalten wurden.

#### 3.4.4.1 Simulationsergebnisse zur Hydrodynamik

Abbildung 33 zeigt exemplarisch die simulierten und gemessenen Verteilungen für die Stoffsysteme Toluol/Wasser und Butylacetat/Wasser bei zwei unterschiedlichen Kolonnenhöhen ( $h=0.62$ ,  $h=1.76$  m) und unterschiedlichen Betriebsbedingungen einer RDC-Kolonne. Abbildung 33a zeigt im Vergleich die gemessenen und simulierten Tropfengrößenverteilungen für das Stoffsystem Toluol/Wasser bei einer Rührerdrehzahl von 250 1/min, einer Belastung von  $12 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$  (Phasenverhältnis= 1,12). Abbildung 33b zeigt die Ergebnisse für das Stoffsystem Toluol/Wasser bei einer Rührerdrehzahl von 300 1/min, bei einer Belastung von  $9 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$  und einem Phasenverhältnis von 0,56. Abbildung 33c und 33d zeigt die Ergebnisse für das Stoffsystem Butylacetat/Wasser bei einer Rührerdrehzahl von 150 1/min und 300 1/min, bei einer Belastung von  $9 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$  und einem Phasenverhältnis von 0,56. Für die dargestellten Ergebnisse konnte die Tropfengrößenverteilung entlang der Kolonnenhöhe sehr gut vorausberechnet werden. Die ungünstige Wiedergabe des Versuchs mit Butylacetat/Wasser bei einer Drehzahl von 300 1/min kann eventuell auf experimentelle Schwierigkeiten zugeordnet werden. Als mögliche Ursachen sind Koaleszenzeffekte in den Tropfenabsaugkapillaren der angewandten Messtechnik zur Tropfengrößenerfassung und bei diesen leicht koaleszierenden Stoffsystemsystem zu nennen.

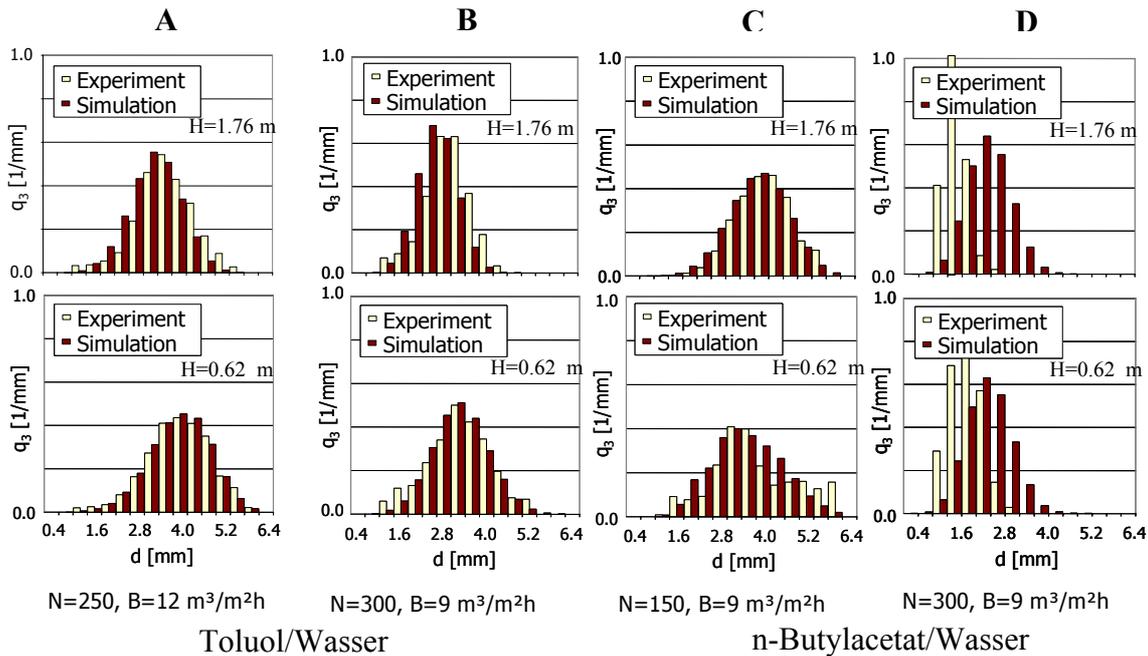


Abb. 33: Vergleich zwischen experimentellen und simulierten Tropfengrößenverteilungen an zwei Kolonnenhöhen für unterschiedliche Stoffsysteme und Betriebsbedingungen.

Neben der RDC Technikumskolonne wurde auch die Hydrodynamik (ohne Stoffaustausch) einer Kühni-Extraktionskolonne mit 6-Blatt Zentrifugalrührer simuliert und mit experimentellen Daten verglichen. Die experimentellen Daten wurden aus der Dissertationsarbeit von *Zamponi (1999)* entnommen. Für die Berechnung des Tropfenzerfalls wurde die aus den Einzeltropfenexperimenten ermittelte Korrelation eingesetzt. Anhand der ersten Simulationsergebnisse konnte festgestellt werden, dass die Koaleszenz, insbesondere bei sehr hohen Dispersphasenanteilen, entscheidend ist. Abb. 34 vergleicht Simulationsrechnungen für die Kühni-Extraktionskolonne mit experimentellen Hold-up-Profilen unter Berücksichtigung der Koaleszenz. Ohne deren Berücksichtigung ergibt die Simulation nämlich erhöhte Werte für den Hold-up. Beispielsweise beträgt die mittlere Abweichung bei einer Gesamtbelastung von  $16 \text{ m}^3/(\text{m}^2\text{h})$  ca. +12%; bei einer Belastung von  $18 \text{ m}^3/(\text{m}^2\text{h})$  kommt es dann zum Fluten der Kolonne.

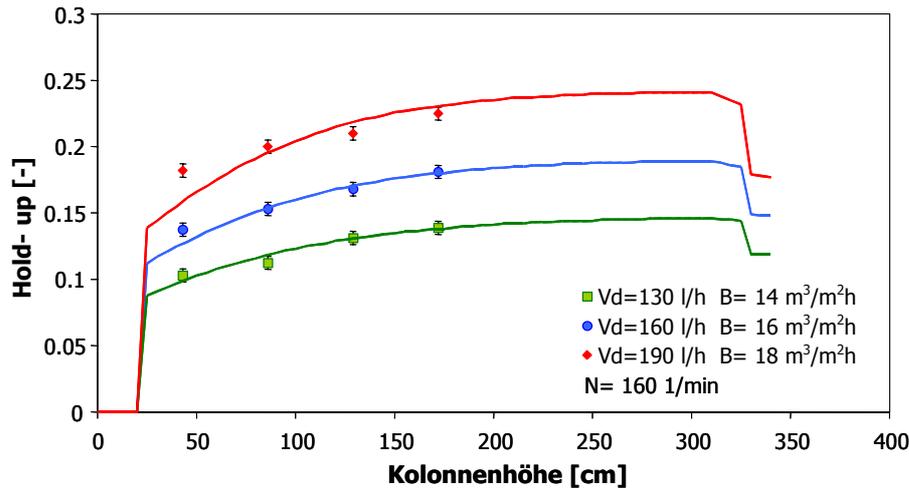


Abb. 34: Hold-up-Entwicklung einer Kühni-Technikumskolonne unter Berücksichtigung von Zerfall und Koaleszenz (Simulation-Hydrodynamik)

#### 3.4.4.2 Simulationsergebnisse zu Hydrodynamik und Stoffaustausch

Im vorherigen Abschnitt konnte gezeigt werden, dass die Hydrodynamik ohne Stoffaustausch mit Hilfe der Tropfenpopulationsbilanz und der aus Einzeltropfenexperimenten gewonnenen Modelle gut wiedergegeben werden kann. Zur Validierung der Hydrodynamiksimulationen unter Stoffaustauschbedingungen wurden die experimentellen Technikumsversuche mit der RDC Geometrie und Kühni Geometrie (6 Blatt Rührer) der AG Stichlmair herangezogen. Weiterhin wurden auch Daten aus der Arbeit von *Wolschner (1980)* herangezogen, welche für eine DN50 und DN100 RDC Extraktionskolonne bestimmt wurden und aus der Arbeit von *Brodkorb (1999)* für eine DN150 RDC Extraktionskolonne.

Abb. 35a zeigt exemplarisch ein simuliertes Sauter Durchmesserprofil im Vergleich zu den experimentellen Daten nach Garthe aus der AG Stichlmair für die RDC Geometrie. Es konnte festgestellt werden, dass im Vergleich zu den Versuchen ohne Stoffaustausch, die Koaleszenz in den Versuchen mit einer Stoffaustauschrichtung von der kontinuierlichen Phase zur dispersen Phasen eine untergeordnete Rolle spielt, aber nicht vernachlässigbar (siehe Abb. 35). Bei hohem Energieeintrag ist die Koaleszenz nicht dominierend, sondern der Zerfallmechanismus ist entscheidend. Für das Koaleszenzmodell nach *Coulaloglou und Tavlarides (1997)* wurden die Parameter C1 und C2 angepasst. Für den Fall mit der Stoffaustauschrichtung von der kontinuierlichen Phase C zur Dispersphase D beträgt der Parameter C1 und C2 für das Stoffsystem Toluol/Wasser/Aceton respektiv  $9.86 \cdot 10^{-2}$  und  $1.0 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-2}$ .

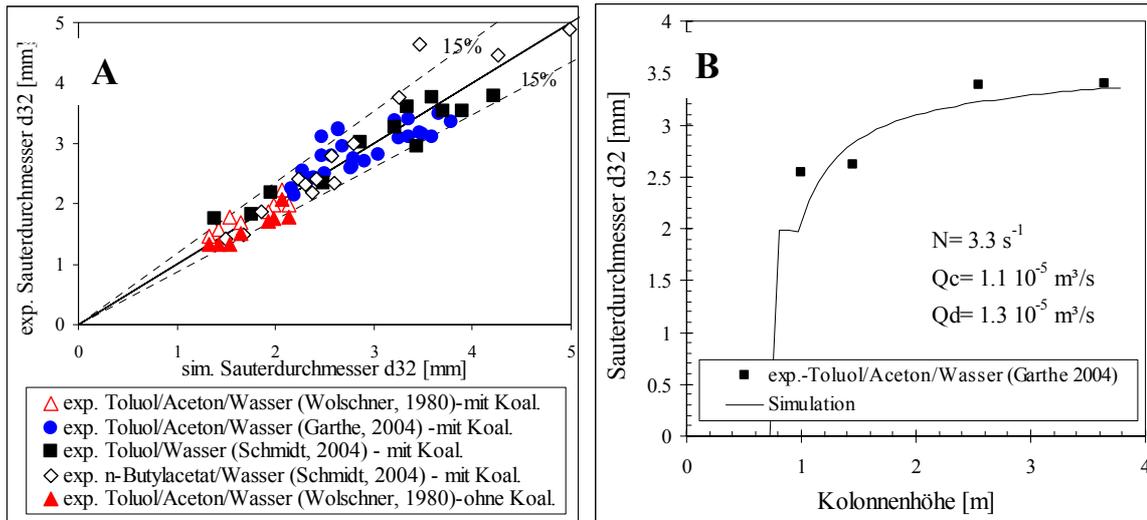


Abb. 35: Vergleich zwischen simulierte und experimentelle Sauterdurchmesser  $d_{32}$

Abbildung 35a zeigt ein Paritätsdiagramm der simulierten und experimentellen Sauterdurchmesser für die untersuchten RDC Geometrien nach *Garthe (2004)*, *Wolschner (1980)* und *Schmidt (2004)*, für den fall ohne Stoffaustausch und mit Stoffaustausch. Hier ist deutlich zu erkennen, dass auch unter Stoffaustauschbedingungen der Sauterdurchmesser gut wiedergegeben wird, wobei der relative Fehler bei ca. 15% liegt. Der geringe Einfluss der Koaleszenz bei der Stoffaustauschrichtung C nach D kann auch an den Daten nach Wolschner beobachtet werden. Hierzu wurden einerseits Simulationen ohne und unter Berücksichtigung der Koaleszenzparameter durchgeführt, wobei diese sich im Ergebnis gering unterscheiden.

Neben dem Sauterdurchmesser bzw. der Tropfengrößenverteilung ist die Vorhersage des Hold-ups für die Berechnung des Stoffaustausches entscheidend. Abb. 36 stellt die simulierten lokalen Hold-up Werte im Vergleich zu den experimentellen Daten nach *Garthe (2004)* für die RDC Geometrie dar. Durch die verwendeten Transportmodelle nach *Garthe* und die im Rahmen dieser Arbeit ermitteltet Tropfeninteraktionsparameter konnte der Hold-up mit einem relativen Fehler von 20% wiedergegeben werden. Die abgebildeten Punkte im oberen Bildteil mit den höchsten Abweichung entsprechen Messwerten nahe dem Flutpunkt.

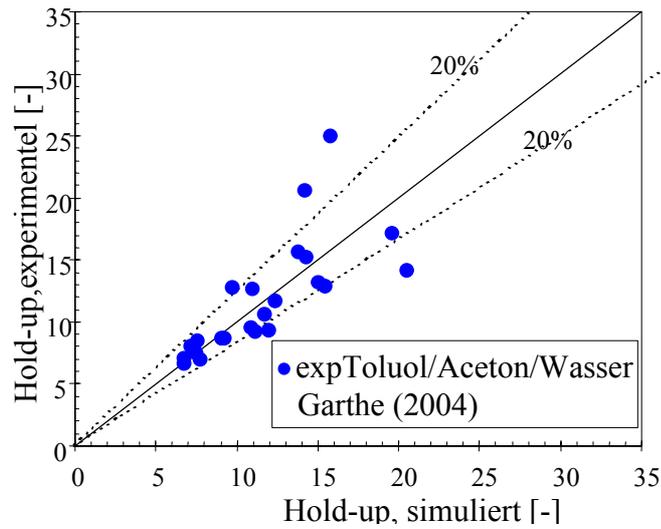


Abb. 36: Vergleich zwischen simulierten und experimentellen Hold-up Werten

In Abb. 37 sind exemplarisch zwei Konzentrationsprofile für die RDC Technikumsanlage nach Garthe bei einer Rührerdrehzahl von 200 1/min und 400 1/min und einer Gesamtbelastung von ca. 17 m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>h dargestellt. Auch hier zeigt sich die gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment. Anzumerken ist, dass für die dargestellten Abbildungen der Stoffaustausch über die Modelle nach *Handlos und Baron (1957)* und *Heertjes et al. (1954)* berechnet wurden.

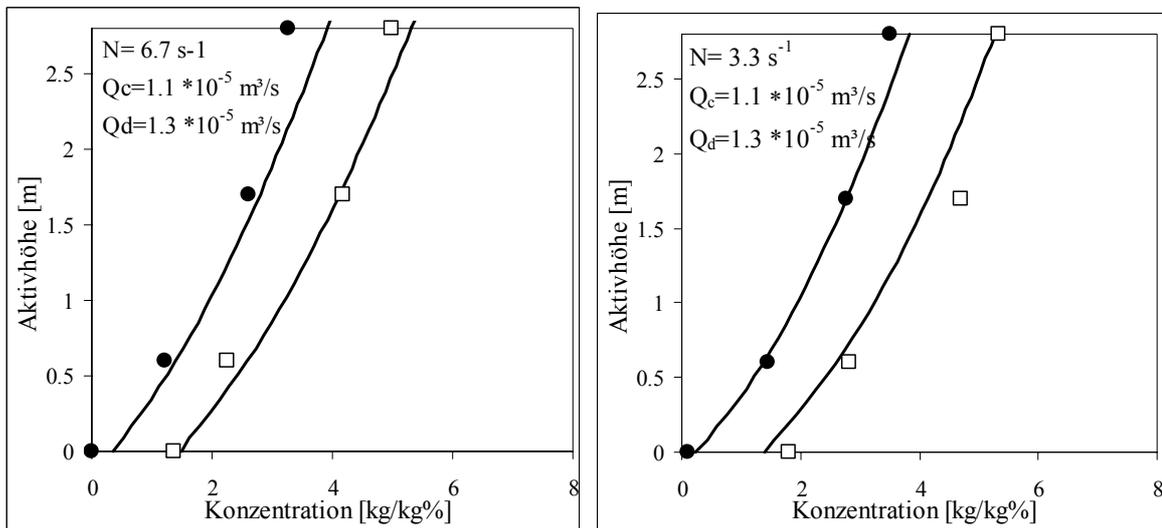


Abb. 37: Simulierte und experimentelle Konzentrationsprofile für Toluol/Wasser/Aceton in der RDC mit 0.08 m Kolonnendurchmesser (Garthe, 2004)

Die folgende Abb. 38 zeigt exemplarisch zwei simulierte Konzentrationsprofile im Vergleich zu experimentellen Daten nach *Wolschner (1980)* für eine RDC Kolonne mit einem Kolon-

nendurchmesser von 100 mm. Dabei wurde das Stoffsystem Toluol/Wasser/Aceton untersucht.

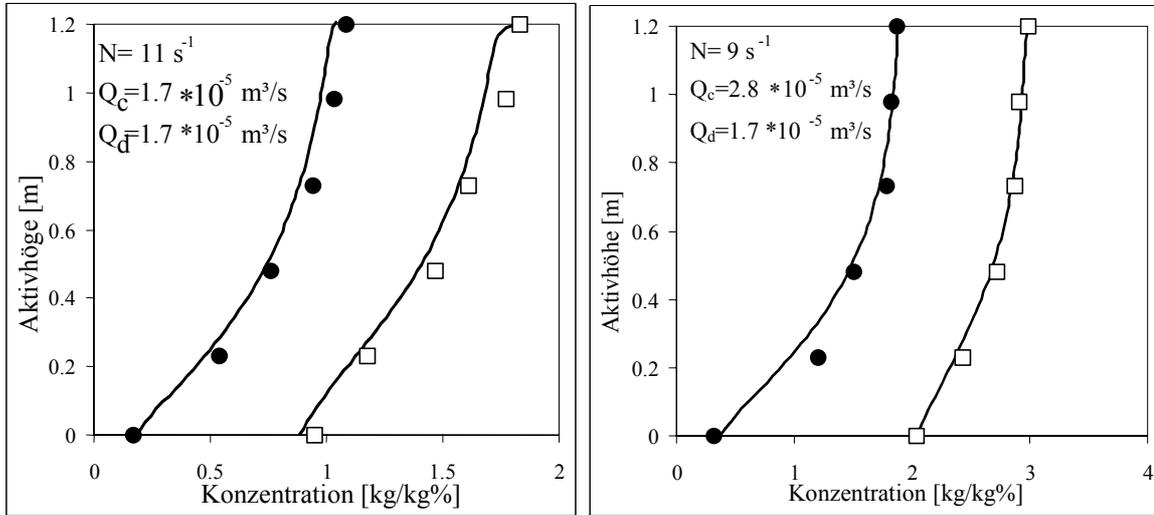


Abb. 38: Simulierte und experimentelle Konzentrationsprofile für Toluol/Wasser/Aceton in der RDC mit 0.1 m Kolonnendurchmesser (Wolschner, 1980)

Abb. 39 zeigt zwei simulierte Konzentrationsprofile im Vergleich zu experimentellen Daten nach Brodkorb (1999) für eine RDC Kolonne mit einem Kolonnendurchmesser von 150 mm. Wiederum wurde das Stoffsystem Toluol/Wasser/Aceton untersucht.

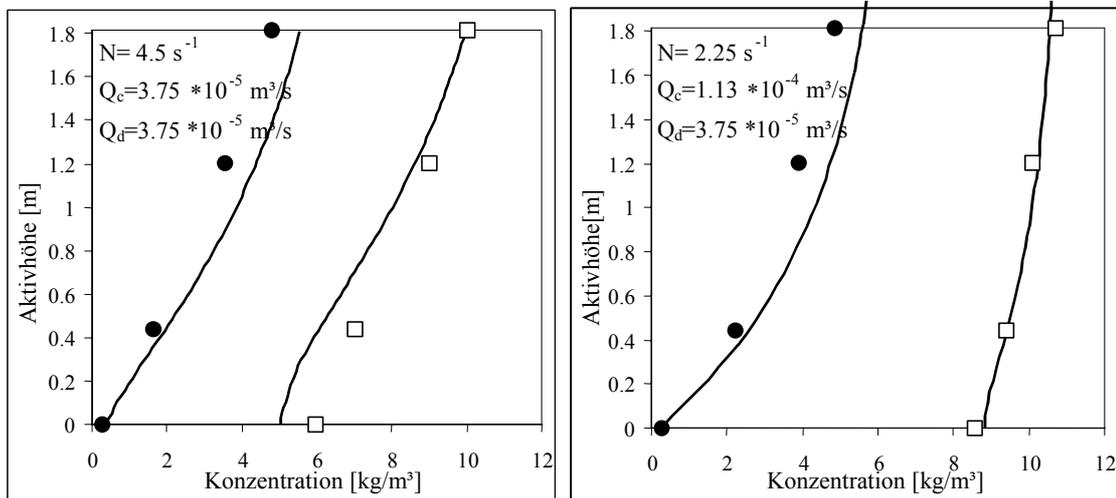


Abb. 39: Simulierte und experimentelle Konzentrationsprofile für Toluol/Wasser/Aceton in der RDC mit 0.15 m Kolonnendurchmesser (Brodkorb, 1999)

Anhand der dargestellten Abbildungen und durchgeführten Simulationen konnte eine gute Übereinstimmung zu den experimentellen Ergebnissen für die unterschiedlichen Geometrien beim Stoffsystem Toluol/Wasser/Aceton gefunden werden. Der relative Fehler bei der Be-

rechnung der Konzentrationsprofile liegt bei ca. 20%. Anzumerken ist, dass für die Simulation der unterschiedlichen Geometrien nur ein Modellparametersatz verwendet wurde. Zur Beschreibung der Stoffsystemeigenschaften wurden die empirischen Korrelationen nach *Misek et al. (1985)* angewendet. Analoge Ergebnisse konnten auch für die Kühni Geometrie erhalten werden.

### **3.5 Zusammenwirken der Projekte, Synergismen des Verbundes**

Das Zusammenwirken der Projektbeteiligten war in jedem Fall notwendig, da die Gesamtheit der Aufgabenstellung von einem Institut alleine nicht in einer vergleichbaren Zeitspanne zu bearbeiten gewesen wäre. Über die selbstverständlichen Abstimmungen zu experimentellen Versuchsbedingungen und den Austausch der gewonnenen Messergebnisse hinaus wurde insbesondere in den folgenden Arbeitspunkten, die in Abbildung 40 schematisch dargestellt sind, zusammengearbeitet und damit Synergien erzielt.

Zwischen den Arbeitsgruppen in Aachen und Kaiserslautern wurde die Struktur der Eingabedateien für die Simulationsprogramme LLECMOD (POPMOD) und ReDrop vereinheitlicht, so dass ein schneller Vergleich der Eingangsdaten für die unterschiedlichen Kolonnentypen (gerührt/pulsiert) und damit auch ein wirklicher Vergleich der Simulationsergebnisse ohne weitere Erläuterung von Versuchsbedingungen möglich ist.

Von der AG Pfennig konnte aus der AG Stichlmair das Modell zur Tropfensedimentation unter Berücksichtigung der Einflüsse von Einbauten übernommen werden. Von der AG Bart wurde darüber hinaus auch das Modell aus München für das Schwarmverhalten getestet. Die Modelle konnten in die Simulationen implementiert werden und zeigten sich im Rahmen der Aussagegenauigkeiten als zutreffend, so dass keine wesentlichen Anpassungen von der AG Stichlmair vorgenommen werden mussten.

Eine umfassende Generalisierung des Einbauteneinflusses konnte aufgrund der jeweils gewonnen experimentellen Ergebnisse nicht gefunden werden. Für Siebbodenkolonnen wurde in der AG Pfennig ermittelt, dass der Siebbodeneinfluss auf den Stofftransport von einem Öffnungsverhältnis ausgehend für andere Öffnungsverhältnisse vorherberechnet werden kann. Weitere Untersuchungen der AG Pfennig haben gezeigt, dass der Einbauteneinfluss von Packungen in der Einzeltropfenmesszelle für pulsierte Kolonnen von geringer Bedeutung in Bezug auf den Stoffaustausch ist und unterschiedliche Packungstypen keine wesentlichen Unterschiede liefern. Demgegenüber ist für gerührte Kolonnen je nach Rührergeometrie eine separate Ermittlung der Parameter gemäß Auslegungskonzept erforderlich, wie die Experimente der AG Bart und der AG Stichlmair gezeigt haben.

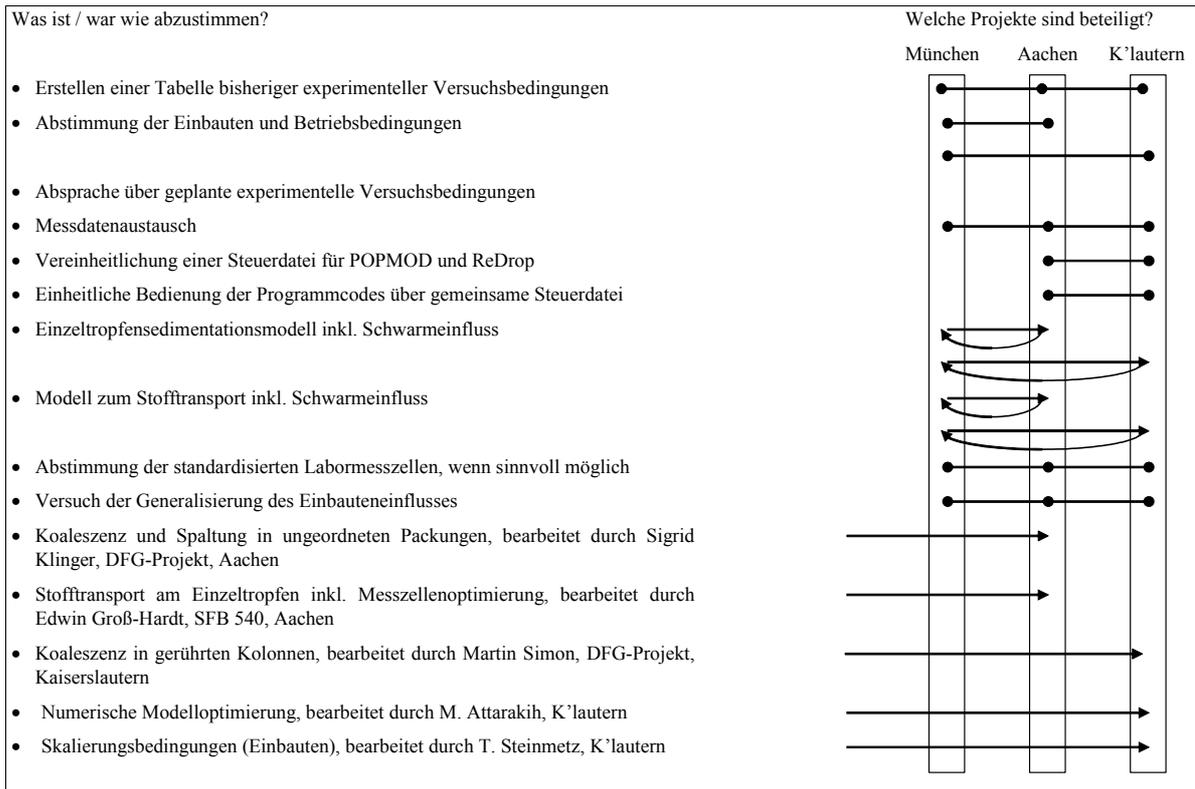


Abb. 40: Inhalte der Zusammenarbeit und Synergien

## **4 Gegenüberstellung der Ergebnisse mit den Zielsetzungen des Antrages**

### **4.1 AG Stichlmair**

Die Beschreibung der Fluidodynamik und des Stoffübergangs in Tropfenschwärmen durch Einzeltropfenexperimente ermöglicht eine kostengünstige Auslegung von unterschiedlichen Flüssig/flüssig-Extraktionskolonnen. Auf Vorversuche im Technikumsmaßstab mit den entsprechenden Originalflüssigkeiten, die einen enormen zeitlichen und finanziellen Aufwand bei der Dimensionierung von Extraktionskolonnen mit sich bringen, kann dadurch verzichtet werden.

Das Ziel der AG Stichlmair war es deshalb, den Einfluss eines Tropfenschwarms, d. h. den Übergang vom Einzeltropfen zum Tropfenschwarm, auf die Fluidodynamik und somit den Stoffübergang aufgrund von Einzeltropfenexperimenten zu bestimmen. Um dieses Ziel zu erreichen, wurden zahlreiche Untersuchungen zur Fluidodynamik und zur Stoffübertragung in einem Fest/flüssig-System und in zwei Flüssig/flüssig-Systemen durchgeführt. Dabei konnte unter anderem der Einfluss unterschiedlicher Einbauten und Betriebsbedingungen auf die Endaufstiegsgeschwindigkeiten einzelner starrer und fluider Partikel sowie auf den Stoffübergang bestimmt werden. Die starren Einzelpartikel (Polypropylen-Partikel) und Einzeltropfen (Toluol-Tropfen, Butylacetat-Tropfen) wurden dabei in Kolonnen ohne Einbauten und in Kolonnen mit Einbauten untersucht. Als Einbauten wurden Siebböden, geordnete Packungen, Drehscheibenrührer und Turbinenrührer verwendet.

Die Untersuchungen mit Tropfenschwärmen zeigen, dass die Beschreibung des Schwarmeinflusses basierend auf Einzeltropfenexperimenten durch die in Kapitel 3.2.1.1 beschriebene Vorgehensweise sehr gute Ergebnisse liefert. Die in der AG Stichlmair durchgeführten Versuche mit Tropfenschwärmen dienen zusätzlich dazu, die in enger Zusammenarbeit mit der AG Pfennig und der AG Bart entwickelten Simulationsprogramme zur Auslegung von Extraktionskolonnen zu überprüfen und gegebenenfalls zu optimieren.

Eine Übersicht der im Forschungsantrag angestrebten Ziele sowie der erreichten Ergebnisse ist in der Tabelle 4.1 und in der Tabelle 4.2 zu sehen. Alle im Forschungsantrag angestrebten Ziele konnten in der AG Stichlmair erreicht werden.

Tab. 4.1: *Fluidodynamik: Zielsetzung des Antrages und erzielte Ergebnisse*

Zielsetzung des Antrages				erzielte Ergebnisse
Kolonne	System	Art	m/o Einbauten	m/o Einbauten
Labor	starre Kugel	Einzelpartikel	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>
Labor	Wasser/Aceton/Toluol	Einzeltropfen	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>
Labor	Wasser/Aceton/Butylacetat	Einzeltropfen	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>
Technikum	starre Kugel	Schwarm	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>
Technikum	Wasser/Aceton/Toluol	Schwarm	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>
Technikum	Wasser/Aceton/Butylacetat	Schwarm	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>

Tab. 4.2: *Stoffübergang: Zielsetzung des Antrages und erzielte Ergebnisse*

Zielsetzung des Antrages				erzielte Ergebnisse
Kolonne	System	Art	m/o Einbauten	m/o Einbauten
Labor	Wasser/Aceton/Toluol	Einzeltropfen	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>
Labor	Wasser/Aceton/Butylacetat	Einzeltropfen	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>
Technikum	Wasser/Aceton/Toluol	Schwarm	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>
Technikum	Wasser/Aceton/Butylacetat	Schwarm	• / •	<input checked="" type="checkbox"/> / <input checked="" type="checkbox"/>

## 4.2 AG Pfennig

Die AG Pfennig hat die vorgesehenen Inhalte des Vorhabens vollständig bearbeitet. In Tabelle 4.3 sind die wesentlichen Inhalte des Arbeitsplans dargestellt.

Forschungsjahr	1				2				3				Inhalt bearbeitet	
	Quartal	I	II	III	IV	I	II	III	IV	I	II	III		IV
Bau und Inbetriebnahme einer Einzeltropfenmesszelle mit Packungselementen		■	■											✓
Stoffaustauschmessungen zum Packungseinfluss, zwei Stoffsysteme				■	■									✓
ReDrop-Modell für Kolonnen mit geordneten Packungen	■					■	■	■						✓
Untersuchung weiterer Stoffsysteme in Einzeltropfenmesszellen (auch Siebboden)							■	■	■	■				✓
Programmerweiterungen									■		■			✓
Haltepunkte und Fachtagungen vorbereiten, Schlussbericht												■		✓

Tab. 4.3: Arbeitsplan der AG Pfennig

Die gewonnenen Messergebnisse für das Stoffsystem n-Butylacetat + Wasser + Aceton konnten für die Parameteranpassung der Einzeltropfenmodelle unter Siebbodeneinfluss genutzt werden. Mit diesem Parametersatz konnte die ReDrop-Extraktionskolonnensimulation für Siebbodenkolonnen, die auf der Basis von Werten mit dem Stoffsystem Toluol + Wasser + Aceton entwickelt wurde, die Ergebnisse von Technikumsversuchen gut vorhersagen. Damit wurde die Anwendbarkeit der ReDrop-Extraktionskolonnensimulation in Siebbodenkolonnen für unterschiedliche Stoffsysteme nachgewiesen. Auch die Übertragung des ReDrop-Modells auf die Anwendung für pulsierte Packungskolonnen konnte erfolgreich umgesetzt werden. Für diese Weiterentwicklung der ReDrop-Simulation sind die Modelle für die Einzelphänomene an Tropfen in Packungskolonnen – die Sedimentation, der Stoffaustausch und die Spaltung – erarbeitet, beschrieben und in das Simulationsprogramm implementiert worden. Für die Beschreibung der Fluidodynamik wurde hier auf die Modellierung der AG Stichlmair aus München zurückgegriffen. Ergänzend und begleitend zu den Modellierungen und Simulationen konnten durch experimentelle Untersuchungen in Einzeltropfenmesszellen mit Packungselementen weitere Stoffsysteme (Toluol + Wasser + Aceton, n-Butylacetat + Wasser + Aceton, technisches Stoffsystem) charakterisiert werden, anhand derer das Modell für den Stoffaus-

tausch weiterentwickelt wurde. Mit der Umsetzung dieser Arbeitsschritte wurden alle angestrebten Forschungsergebnisse und das Forschungsziel, eine Modellierung von pulsierten Siebboden- und Packungskolonnen basierend auf Einzeltropfenexperimenten zu entwickeln, erreicht.

### 4.3 AG Bart

Eine wesentliche Schwierigkeit bei der Auslegung von gerührten Extraktionskolonnen ist die Vorhersage des fluiddynamischen Betriebsverhaltens und der erzielbaren Stofftrennung. In der Praxis werden Gegenstromkolonnen meist durch das Pfropfenströmungsmodell oder das Dispersionsmodell angenähert. Die genannten Modelle stellen allerdings das reale Verhalten der Kolonne nicht ausreichend genau dar, da Tropfeninteraktionen wie Zerfall und Koaleszenz nicht erfasst werden. Ein viel versprechender Ansatz stellt dazu das bivariate Tropfenpopulationsbilanzmodell nach *Attarakih et al. (2004)* dar, das Hydrodynamik und Stoffaustausch unter instationären Bedingungen beschreiben lässt. Das Modell beschreibt die axiale Entwicklung des Hold-ups, der Tropfengrößenverteilung sowie auch der Wertstoffmassenverteilung. Die eingehenden Modellparameter basieren auf der experimentellen Studie von Einzeltropfen und Tropfenschwärmen, die in kleinen Labormesszellen und an charakteristischen Kolonneneinbauten schnell und kostengünstig durchgeführt werden. Durch die Einzeltropfenexperimente können somit die zeit- und kostenintensive Technikumsversuche abgelöst werden.

Hauptziel der AG Bart am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik der Universität Kaiserslautern war es, die Hydrodynamik und den Stoffaustausch in gerührten Extraktionskolonnen mit Hilfe des bivariaten Tropfenpopulationsbilanzmodells auf Basis der Einzeltropfen und Tropfenschwarmexperimente vorherzusagen. Hierzu wurden u.a. die Tropfeninteraktionen Zerfall und Koaleszenz für unterschiedliche Stoffsysteme zwischen den beteiligten AGs evaluierten Standardapparaturen untersucht. Dabei wurden die Einflüsse des Energieeintrags, des Stoffsystems und der Einbautengeometrie charakterisiert. Die gewonnenen Modellparameter wurden letztendlich zur Simulation gerührter Extraktionskolonnen mit Hilfe des bivariaten Tropfenpopulationsbilanzmodells herangezogen. Zur Validierung der Simulationsergebnisse wurde auch an einer Technikumskolonne Versuche durchgeführt, sowie auch die Kolonnenversuche der AG Stichlmair herangezogen. Weiterhin wurde in ständiger Zusammenarbeit mit der AG Stichlmair und AG Pfennig die entwickelten Modelle getestet und in das neu entwickelte Simulationsprogramm LLECMOD implementiert.

Eine Übersicht der im Forschungsantrag angestrebten Ziele sowie der erreichten Ergebnisse ist in der Tabelle 4.4 dargestellt. Alle im Forschungsantrag angestrebten Ziele konnten in der AG Bart erreicht werden.

Forschungsjahr	1				2				3				Abge- schlossen	
	Quartal	I	II	III	IV	I	II	III	IV	I	II	III		IV
Literaturstudium, Adaptation, Inbetriebnahme Laborzellen, Kolonnen														✓
Zerfallsmessungen (3 Stoffsysteme) in Labormesszellen														✓
Koaleszenzmessungen (2 Stoffsysteme) in Labormesszellen														✓
Koaleszenz-/ Zerfallsmessungen (2 Systeme) in Technikumskolonnen														✓
Kolonnensimulation														✓
Programmerweiterung POPMOD														✓
Stoffaustauschmessungen in Labormesszellen und in Kolonnen														✓
Haltepunkt und Fachtagungen vorbereiten, Schlußbericht														✓

Tab. 4.4: Arbeitsplan der AG Bart

## **5 Hinweis auf Förderung**

Das Forschungsvorhaben AiF-Vorhaben-Nr. 40 ZN ist aus Haushaltsmitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi) über die Arbeitsgemeinschaft industrieller Forschungsvereinigungen "Otto von Guericke" e.V. (AiF) gefördert worden.

## **6 Durchführende Forschungsstellen**

### **AG Pfennig, Aachen**

Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik, RWTH Aachen

Wüllnerstraße 5, 52062 Aachen

Tel.: (0241) 80-95 490      Email: [secretary@tvrt.rwth-aachen.de](mailto:secretary@tvrt.rwth-aachen.de)

Fax: (0241) 80-92 332      Internet: [www.tvrt.rwth-aachen.de](http://www.tvrt.rwth-aachen.de)

Leiter der Forschungsstelle: Univ.-Prof. Dr.-Ing. A. Pfennig (Sprecher des Verbundes)

### **AG Stichtmair, München**

Lehrstuhl für Fluidverfahrenstechnik, Technische Universität München

Boltzmannstraße 15, 85747 Garching

Tel.: (089) 289-16 500      Email: [Johann.Stichtmair@fvt.mw.tum.de](mailto:Johann.Stichtmair@fvt.mw.tum.de)

Fax: (089) 289-16 510      Internet: <http://www.fvt.mw.tum.de>

Leiter der Forschungsstelle: Univ.-Prof. Dr.-Ing. J. Stichtmair

### **AG Bart, Kaiserslautern**

Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik, Universität Kaiserslautern

Gottlieb-Daimler-Straße 44, 67663 Kaiserslautern

Tel.: (0631) 205-24 14      Email: [bart@mv.uni-kl.de](mailto:bart@mv.uni-kl.de)

Fax: (0631) 205-21 19      Internet: <http://www.uni-kl.de/LS-Bart/>

Leiter der Forschungsstelle: Univ.-Prof. Dr. techn. H.-J. Bart

## 7 Verzeichnis der verwendeten Formelzeichen

Symbol	Bezeichnung	Einheit
$a$	Hub = 2-fache Amplitude der Pulsatorschwingung	m
$a_{\text{geo}}$	volumenbezogene Packungsoberfläche	$\text{m}^2/\text{m}^3$
$a_k$	anzupassender Parameter, $k = 1, 2, \dots$	-
$af$	Pulsationsintensität = Pulsation	$\text{m s}^{-1}$
$A_C$	Querschnittsfläche der Kolonne	$\text{m}^2$
$B$	bezogene Summenbelastung	$\text{m}^3/(\text{m}^2 \text{ s})$
$B$	Verstärkungsfaktor	-
$c$	Konzentration	$\text{kg m}^{-3}$
$c_1$	Parameter in Gl. (38)	-
$c_2$	Parameter in Gl. (39)	$\text{m}^{-2}$
$C_{\text{IP}}$	Instabilitätsparameter	-
$d_{\text{Tr}} = d$	Tropfendurchmesser / Partikeldurchmesser	m
$d_{\text{MT}}$	Muttertropfendurchmesser	m
$d_{\text{krit}}$	kritischer Tropfendurchmesser	m
$d_{\text{TT}}$	Tochertropfendurchmesser	m
$d_{\text{stab}}$	stabiler Tropfendurchmesser bei Spaltung an geordneten Packungen	m
$d_L$	Lochdurchmesser (geordnete Packung, Siebboden)	m
$D_K$	Kolonnendurchmesser	m
$D_{\text{ax}}$	axialer Dispersionskoeffizient	$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$
$D_d$	(reiner) Diffusionskoeffizient	$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$
$D_{d,\text{eff}}$	effektiver Diffusionskoeffizient	$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$
$D_R$	Rührerdurchmesser	m
$D_S$	Innendurchmesser des Statorringes	m

$f$	Pulsationsfrequenz = Frequenz der Pulsatorschwingung	$s^{-1}$
$f_1 - f_5$	Konstanten [Gl. (32) und (33)]	-
$g$	Erdbeschleunigung	$m\ s^{-2}$
$h$	Kollisionsrate	$m^3\ s^{-1}$
$H_C$	Kompartimenthöhe einer Rührzelle	m
$H_{PK} = H_P$	Elementhöhe einer geordneten Packung, Lagenhöhe	m
$H_{SB}$	Höhe einer Siebbodenzelle = Abstand zwischen zwei Siebböden	m
$H_{ak} = H_{Kol}$	aktive Höhe der Extraktionskolonne	m
$k$	Verteilungskoeffizient ( $k = y/x$ )	-
$k_S$	Spaltungsparameter	$s\ m^{-2}$
$K$	Konzentrationsquotient	-
$L$	Messstrecke	m
$m$	Steigung der Gleichgewichtslinie	-
$\dot{M}_c$	Massenstrom der kontinuierlichen Phase	$kg\ s^{-1}$
$\dot{M}_d$	Massenstrom der dispersen Phase	$kg\ s^{-1}$
$n$	Schwarmexponent	-
$n$	Zählvariable	-
$n = N_{th}$	Anzahl an theoretischen Trennstufen	-
$n_{d,cy} \partial d \partial c_y$	Tropfenanzahl der Klasse $d$ und $c_y \in [d \pm \partial d] \times [c_y \pm \partial c_y]$ pro Volumeneinheit	$m^{-3}$
$n_R$	Rührerdrehzahl	$min^{-1}$
$n_{TT}$	Simulationsparameter (in der $d_{stab}$ -Modellierung)	-
$N$	Drehzahl	$s^{-1}$
$N_{crit}$	kritische Drehzahl	$s^{-1}$
$N_{LUK}$	Anzahl Dispergierstellen an den Lammellenunterkanten	-
$p(d)$	Zerfallswahrscheinlichkeit	-

$p_s$	lokale Zerfallswahrscheinlichkeit ( $0 < p_s < 1$ ), (gilt für einen Tropfen in einem Zeitintervall)	-
$p_{s,global}$	globale Zerfallswahrscheinlichkeit ( $0 < p_{s,global} < 1$ ), (gilt für einen Tropfen für dessen Gesamtweg durch die Kolonne)	-
$q_3(d_{Tr})$	Tropfengrößenvolumenverteilung	$m^{-1}$
$q_{3,TT}(d_{Tr})$	Tropfengrößenvolumenverteilung der Tochtertropfen	$m^{-1}$
$Q$	Volumenstrom	$m^3 s^{-1}$
$r$	Radiuskoordinate	m
$R$	Tropfenradius	m
$t$	Zeit	s
$t$	Verweilzeit eines Tropfens in der Messstrecke $L$ , Kapitel 3.2.1.2	s
$t_v$	Tropfenverweilzeit	s
$t_{un}$	Tropfenverweilzeit unterhalb des Siebbodens	s
$T$	Temperatur	°C
$v$	Tropfenvolumen	$m^3$
$w$	Tropfengeschwindigkeit	$m s^{-1}$
$w_c$	Leerrohrgeschwindigkeit der kontinuierlichen Phase	$m s^{-1}$
$w_d$	Leerrohrgeschwindigkeit der dispersen Phase	$m s^{-1}$
$w_{rs}$	relative Schwarmgeschwindigkeit	$m s^{-1}$
$w_s$	Schwarmgeschwindigkeit	$m s^{-1}$
$w_o$	Einzeltropfensedimentationsgeschw. in einer unendlich ausgedehnten Flüssigkeit gegenüber einem ruhenden Bezugspunkt = freie Endaufstiegsgeschwindigkeit eines Einzelpartikels	$m s^{-1}$
$w'_0$	Endaufstiegsgeschwindigkeit eines Einzeltropfens in einer Kolonne mit Einbauten	$m s^{-1}$
$x_m$	mittlere Tochtertropfenanzahl	-
$x_o = x_\infty$	Massenanteil in der kontinuierlichen Phase	kg/kg

$X_{\text{aus}}$	Massenbeladung der austretenden kontinuierlichen Phase	kg/kg
$X_{\text{aus}}^*$	Gleichgewichtsbeladung der kontinuierlichen Phase	kg/kg
$X_{\text{ein}}$	Massenbeladung der eintretenden kontinuierlichen Phase	kg/kg
$y = y(t_v)$	Massenanteil in der dispersen Phase	kg/kg
$y_0$	Massenanteil in der dispersen Phase für $t = 0$ s (Feed)	kg/kg
$y_1$	Massenanteil der Tropfenphase am Eintritt in die Messstrecke $L$	kg/kg
$y_2$	Massenanteil der Tropfenphase am Austritt aus der Messstrecke $L$	kg/kg
$y_l$	Massenanteil in der dispersen Phase an der Grenzfläche	kg/kg
$y^* = k x_o$	Massenanteil in der dispersen Phase im Gleichgewicht zu $x_o$	kg/kg
$y^+$	dimensionslose mittlere treibende Konzentrationsdifferenz	-
$z$	Ortskoordinate	m

### Griechische Symbole

Symbol	Bezeichnung	Einheit
$\beta$	Tochertropfenverteilungsdichte	$\text{m}^{-1}$
$\beta_{\text{od}}$	Stoffdurchgangskoeffizient	$\text{m s}^{-1}$
$\varepsilon = \varepsilon_d$	Hold-up = Tropfenvolumenanteil	-
$\Gamma$	Zerfallsfrequenz	$\text{s}^{-1}$
$\varphi$	freie Siebbodenfläche	- bzw. %
$\varphi_p$	Lückengrad einer geordneten Packung	-
$\lambda$	Extraktionsfaktor	-
$\lambda$	Koaleszenzeffizienz	$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$
$\eta_c$	Viskosität der kontinuierlichen Phase	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$
$\eta_d$	Viskosität der dispersen Phase	$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$
$\rho_c$	Dichte der kontinuierlichen Phase	$\text{kg m}^{-3}$

$\rho_d$	Dichte der dispersen Phase	$\text{kg m}^{-3}$
$\Delta\rho$	Dichtedifferenz	$\text{kg m}^{-3}$
$\sigma$	Grenzflächenspannung	$\text{kg s}^{-2}$
$\omega$	Koaleszenzrate	$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$
$\Omega$	Mischparameter	-
$\Omega$	Energiedissipation	$\text{m}^2 \text{s}^{-3}$
$\Psi$	Koordinatenvektor ( $[d \ c_y \ z \ t]$ )	-

### Dimensionslose Kennzahlen

Symbol	Bezeichnung	Einheit
$Fo_d$	Fourierzahl ( $= 4 D_d t_v / d_{Tr}^2$ )	-
$Re(w_0)$	Reynoldszahl der Tropfengeschwindigkeit ( $= \rho_c w_0 d_{Tr} \eta_c^{-1}$ )	-
$Re_R$	Reynoldszahl Rührer	-
$N_p$	Leistungskennzahl eines RDC-Rührers	-
$We_m$	modifizierte Weberzahl	-
$\pi_d$	dimensionsloser Durchmesser	-
$\pi_{w_0}$	dimensionslose Geschwindigkeit	-
$\pi_\sigma$	dimensionslose Grenzflächenspannung bzw. Flüssigkeitskennzahl	-

## 8 Literaturverzeichnis

Al Aswad, K. K., Mumford, C. J., Jeffreys, G.V. (1985): The Application of Drop Size Distribution and Discrete Drop Mass Transfer Models to Assess the Performance of a Rotating Disc Contactor, *AIChE J.* **31** (9), 1488-1497.

Anderson, K. E. B. (1961): Pressure drop in ideal fluidisation, *Chem. Eng. Sci.* **15**, 276-283.

Attarakih, M. M., Bart, H.-J., Faqir, N. M. (2003): *Solution of the population balance equation for liquid-liquid extraction columns using a generalized fixed-pivot and central difference schemes*. Ed.: Kraslawski, A. and Turunen, I., European Symposium on Computer Aided Process Engineering –13, Computer-Aided Chemical Engineering **14**, Elsevier, Amsterdam, 557-562.

Attarakih, M. M. (2004a): *Solution Methodologies for the Population Balance Equations Describing the Hydrodynamics of Liquid-Liquid Extraction*. Dissertation, Technische Universität Kaiserslautern.

Attarakih, M. M., Bart, H.-J., Faqir, N. M. (2004b): *Numerical Solution of the bivariate Population Balance Equation for the Interacting Hydrodynamics and Mass Transfer in Liquid-Liquid extraction columns*. Accepted in Chem. Eng. Sci.

Brodkorb, M. (1999): *Multikomponent and Contamination Effects in Liquid-Liquid Extraction*. Dissertation. Dissertation, Bradford University.

Calabrese, R. V., Chang, T.P.K., Dang, P.T. (1986): Drop break-up in turbulent stirred-tank contactors: Part 1. Effect of dispersed-phase viscosity. *AIChE J.* **32**, 657-666.

Cauwenberg, V., Degreve, J., Slater, M. J., (1997): The interaction of solute transfer, contaminants and drop break-up in rotating disc contactors: Part 1. correlation of drop breakage probabilities. *Can. J. Chem. Engng.* **75**, 1046-1055.

Coulaloglou, C. A., Tavlarides, L. L. (1977): Description of interaction processes in agitated liquid-liquid dispersions. *Chem. Eng. Sci.* **32**, 1289-1297.

Cruz-Pinto, J. J. C. (1979): *Experimental and Theoretical Modelling Studies of the Hydrodynamic and Mass Transfer Processes in Countercurrent Flow Liquid-Liquid Extraction Columns*. Dissertation, Victoria University of Manchester.

- Cruz-Pinto, J. J. C., Korchinsky, W. J. (1980): Experimental Confirmation of the Influence of Drop Size Distribution on Liquid-Liquid Extraction Column Performance. *Chem. Eng. Sci.* **35**, 2213-2219.
- Cruz-Pinto, J. J. C., Korchinsky, W. J. (1981): Drop Breakage in Counter Current Flow Liquid-Liquid Extraction Columns. *Chem. Eng. Sci.* **36**, 687-694.
- Fan, Z., Oloidi, J. O., Slater, M. J. (1987): Liquid-Liquid Extraction Column Design Data Acquisition from Short Columns. *Chem. Eng. Res. Des.* **65**, 243-250.
- Garthe, D. (2004): Persönliche Mitteilung, Technische Universität München, AG Stichelmair.
- Godfrey, J. C., Slater, M. J. (1991): Slip Velocity Relationships for Liquid-Liquid Extraction Columns. *Trans. IChemE.* **69**, Part A, 130-141.
- Godfrey, J. C. and Slater, M. J. (1994): *Liquid-liquid extraction equipment*. John Wiley & Sons, New York, p. 137.
- Grace, W., Wairegi, J., Nguyen, N. (1976): Shapes and Velocities of single drops and bubbles moving. *Trans. Inst. Chem. Eng.* **54**, 167-173.
- Hähnsen, A. (1989): Inbetriebnahme von zwei pulsierten Packungsextraktoren, sowie vergleichende Untersuchungen der Fluidodynamik und des Stoffaustausches zur Optimierung der Packungsabmessungen und der Packungsoberflächen. Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal.
- Handlos, A. E., Baron, T. (1957): Mass- and Heat-Transfer from Drops in Liquid-Liquid Extraction. *AIChE J.* **3** (1), 127-136.
- Heertjes, P. M., Holve, W. A. and Talsma, H. (1954): Mass Transfer between isobutanol and water in a spray column. *Chem. Eng. Sci.* **3**, 122-142.
- Henschke, M. und Pfennig, A. (1999): Mass-Transfer Enhancement in Single-Drop Extraction Experiments. *AIChE J.* **45** (10), 2079-2086.
- Henschke, M. und Pfennig, A. (2002): Influence of Sieve Trays on the Mass Transfer of Single Drops. *AIChE J.* **48** (2), 227 - 234.

- Henschke, M. (2003): *Auslegung pulsierter Siebboden-Extraktionskolonnen*. Habilitationsschrift, RWTH Aachen.
- Hoting, B. (1996): *Untersuchungen zur Fluidodynamik und Stoffübertragung in Extraktionskolonnen mit strukturierten Packungen*. Dissertation, Technische Universität Clausthal.
- Ismail, A. M., Korchinsky, W. J. (1988): Mass-Transfer Parameters in Rotating-Disc Contactors: Influence of Column Diameter. *J. Chem. Tech. Biotechnol.* **43**, 147-158.
- Kaskas, I. in: Brauer, H. (1971): *Grundlagen der Einphasen- und Mehrphasenströmungen*. Verlag Sauerländer, Aarau.
- Korchinsky, W. J., Young, C. H. (1988): High Flux Mass Transfer: Comparison of Liquid-Liquid Extraction Column and Drop (Handlos-Baron) Model Predictions with Rotating Disc Contactor Performance. *Chem. Eng. Sci.* **41** (12), 3053-3061.
- Kronberger, T. A., Ortner, A., Zulehner, W., Bart, H.-J. (1995): Numerical simulation of extraction columns using a drop population model. *Comp. Chem. Eng.* **19**, 639-644.
- Kronig, R., Brink, J. C. (1950): On the theory of extraction from falling droplets. *Appl. Sci. Res.* **A2**, 142 – 154.
- Kühn, F.(1980): *Einfluss der freien Siebfläche auf die Wirksamkeit einer pulsierter Siebbodenkolonne II*. Diplomarbeit, FH Köln.
- Kumar, A., Hartland, S. (1995): A Unified Correlation for the Prediction of Dispersed-Phase Hold-up in Liquid-Liquid Extraction Columns. *Ind. Eng. Chem. Res.* **34**, 3925-3940.
- Leu, J. T. (1995): *Beitrag zur Fluidodynamik von Extraktionskolonnen mit geordneten Packungen*. Fortschritt-Berichte VDI, Reihe 3, Nr. 413, VDI-Verlag, Düsseldorf.
- Mackowiak, J. (1993): Grenzbelastungen von unpulsierten Füllkörperkolonnen bei der Flüssig/Flüssig-Extraktion. *Chem.-Ing.-Tech.* **65**, 423-429.
- Mersmann, A. (1986): *Stoffübertragung*. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, Tokio.

Misek, T., Berger, R., Schröter, J. (1985): *Standard test systems for liquid extraction*. 2. Aufl., The Institution of Chemical Engineers, Warwickshire, England (s. auch: <http://dechema.de/extraktion>).

Modes, G. (1999): *Grundsätzliche Studie zur Populationsdynamik einer Extraktionskolonne auf Basis von Einzeltropfenuntersuchungen*. Dissertation, Technische Universität Kaiserslautern.

Nedungadi, K. (1991): *On the Performance of a Liquid-Liquid Extraction Column packed with Sulzer SMV Static Mixers*. Dissertation, Swiss Federal Institute Of Technology, Zürich.

Newman, A. B. (1931): The drying of porous solids: Diffusion and surface emission equations. *Trans. AIChE* **27**, 203 - 220.

Newman, A. B. (1931): The drying of porous solids: Diffusion calculation. *Trans. AIChE* **27**, 310 - 333.

Olander, D. R. (1966): The Handlos-Baron Drop Extraction Model. *AIChE* **12** (5), 1018 – 1019.

Petersen, M. (1994): *Einfluß des Stoffübergangs auf die Fluiddynamik und die Trennleistung einer pulsierten Extraktionskolonne mit geordneten Packungen*. Diplomarbeit, Technische Universität Clausthal.

Pilhofer, T. (1989): *Industrielle Anwendungen von Flüssig-flüssig Extraktionsprozessen*. Dechema-Monographie, **114**, 303-313.

Qi, M. (1992): *Untersuchungen zum Stoffaustausch am Einzeltropfen in flüssigkeitspulsierten Siebboden-Extraktionskolonnen*. Dissertation, Technische Universität Clausthal.

Richardson, J. F., Zaki, W. (1954): Sedimentation and fluidisation: Part I. *Trans. Institution of chemical Engineers* **32**, S. 35-53.

Rohlfing, E. (1992): *Untersuchungen zum fluiddynamischen Verhalten einer pulsierten Füllkörperkolonne*. Dissertation, RWTH Aachen.

Rohlfing, E., Hartmann, H. (1992): Rückwirkung des Stoffaustausches auf die Tropfengröße in einer pulsierten Füllkörper-Extraktionskolonne. *Chem.-Ing.-Tech.*, **64**(5), 470-471.

Roock, D. (1985): *Vergleichende Messungen in einer Füllkörperkolonne mit geordneten Einbauten*. Diplomarbeit, FH Köln.

Rydberg, J., Musikas, C., Choppin, G. R. (1992): *Principles and Practices of Solvent Extraction*. Marcel Dekker Inc., New York.

Schlieper, L., Pfennig, A. (1998): *Datenbank Extraktion*. Demonstration auf der 7. Sitzung des DVCV-Gemeinschaftsausschusses „Extraktion“ am 17. und 18. September in Kaiserslautern.

Schmidt, R. (1994): ACHEMA Berichte: Anlagen und Apparate für Destillation, Rektifikation, Sorption, Permeation, Extraktion. *Chem.-Ing.-Tech.* **66** (11), S. 1448-1462.

Seibert, A. F. (1986): *Hydrodynamics and Mass Transfer in Spray and Packed Liquid-Liquid Extraction Columns*. Dissertation, University of Texas at Austin.

Sommeregger, E., Wolschner B., Marr, R. (1980): Calculation of the concentration profile in a rotating disc contactor. *Chem. Ing. Tech.* **52**, 277.

Stichlmair, J., Steude, H. E. (1990): *Abtrennen und Rückgewinnung von Stoffen aus Abwasser und Abfallflüssigkeiten*. „Stofftrenntechnik in der Umwelttechnik“, Diskussionstagung 4./5.12.1990, VDI-GVC, Düsseldorf.

Stichlmair, J., Bravo, J. L., Fair, J. R. (1989): General model for prediction of pressure drop and capacity of countercurrent gas/liquid packed columns, *Gas Separation & Purification* **3**, S. 19-26.

Wagner, I. (1999): *Der Einfluß der Viskosität auf den Stoffübergang in Flüssig-flüssig-Extraktionskolonnen*. Dissertation, Technische Universität München.

Wolschner, B. H. (1980): *Konzentrationsprofile in Drehscheibenextraktoren*. Dissertation, Technische Universität Graz.

Zamponi, G. (1996): *Das dynamische Verhalten einer gerührten Solventextraktionskolonne*. Dissertation, Technische Universität München.

Zhang, S. H., Yu, S. C., Zhou, Y. C., Su, Y. F. (1985): A Model for Liquid-Liquid Extraction Column Performance - The Influence of Drop Size Distribution on Extraction Efficiency. *Can. J. of Chem. Eng.* **63**, S 212-226.

Zwischenbericht für den Zeitraum: 01.01.01 bis 31.12.01 (Forschungsstelle 2, TU München), AiF-Vorhaben-Nr.: 40 ZN 04248/00, 2002.

Zwischenbericht für den Zeitraum: 01.01.02 bis 31.12.02 (Forschungsstelle 2, TU München), AiF-Vorhaben-Nr.: 40 ZN 04248/00, 2003.

Zwischenbericht für den Zeitraum: 01.01.03 bis 31.12.03 (Forschungsstelle 2, TU München), AiF-Vorhaben-Nr.: 40 ZN 04248/00, 2004.

## 9 Vorträge und Veröffentlichungen

### 9.1 AG Pfennig

Pfennig, A., Bart, H.-J., Stichlmair, J.: *Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne – Die Verknüpfung zwischen den Skalen* (Poster). 75. Tagung des Wissenschaftlichen Rates der AiF, 28. - 29.11.2002, Magdeburg.

Altunok, M., Grömping, T., Groß-Hardt, E., Klinger, S.: *Column-Design for Liquid-Liquid Extraction* (Poster). ACHEMA 2003, 19.-24.05.2003, Frankfurt am Main.

Grömping, T., Henschke, M.: *Laboratory –Scale Measuring Cell to Determine Mass Transfer and Sedimentation Rate of Single Drops* (Exponat „Versuchsstand der Einzeltropfenmesszelle DN40“ sowie begleitendes Poster). ACHEMA 2003, 19.-24.05.2003, Frankfurt am Main.

Grömping, T., Pfennig, A.: *Design of Pulsed L-L Extraction Columns with Structured Packing Based on Lab-scale Experiments*, Oral presentation, ECCE 4, 21.-25.09.2003, Granada (ES).

Grömping, T., Pfennig, A.: *Design of Pulsed L-L Extraction Columns with Structured Packing Based on Lab-scale Experiments*, Proceedings ECCE 4, 21.-25.09.2003, Granada (ES).

Grömping, T., Pfennig, A.: *Stoffaustausch in einer Einzeltropfenmesszelle mit Packungselement – Experiment und Modellierung*, Vortrag auf dem DECHEMA/GVC-Gemeinschaftsausschuss 'Extraktion', 31.03.-01.04.2004, Aachen.

Grömping, T., Pfennig, A.: *Modellierung von pulsierten Packungskolonnen basierend auf Laborversuchen* (Poster), Pro3-Minisymposium 'Neue Wege und Lösungsmittel in der Extraktion', 29.-30.09.2004, Kaiserslautern.

Pfennig, A.: *Umfassende Modellierung pulsierter Extraktionskolonnen basierend auf Experimenten in Labormesszellen*, Vortrag auf dem 589. DECHEMA-Kolloquium „Vom Einzeltropfenexperiment zur Extraktionskolonne – Anforderungen und neue Entwicklungen“, 10.03.2005, Frankfurt am Main.

Altunok, M., Grömping, T., Pfennig, A.: *Prediction of extraction-column behaviour based on lab scale experiments*. Eingereicht für Proceedings of the International Solvent Extraction Conference, ISEC 2005, Peking(China).

## 9.2 AG Bart

Tropfenpopulationsmodellierung - Einfluss von Stoffsystem und technischen Geometrien, Schmidt, S., Simon, M.; Bart, H.-J., Vortrag beim DECHEMA/GVC Gemeinschaftsausschuss „Extraktion“ am 12.04.02 in Bingen.

Einzeltropfenzerfall in gerührten Extraktionskolonnen unter Berücksichtigung der Stoffsystemeigenschaften und des Stofftransports, VT-Seminar, Partenen, Österreich, 26.02.03.

Einzeltropfenzerfall in gerührten Extraktionskolonnen unter Berücksichtigung der Stoffsystemeigenschaften und des Stofftransports, Schmidt, S., Bart, H.-J., Vortrag beim DECHEMA/GVC-Gemeinschaftsausschuss „Extraktion“ am 06.03.03 in Würzburg.

Hydrodynamic calculation of a RDC-column with the drop population balance model based on single drop experiments, Schmidt, S., Bart, H.-J., Poster beim 4. ECCE am 21-25 September 2003, Granada, Spanien.

Skalierung von gerührten Extraktionskolonnen auf Basis von Einzeltropfen- und Tropfenschwarmexperimenten, Vortrag anlässlich der DECHEMA/GVC-Jahrestagung 14.10.04 in Karlsruhe.

Schmidt, S. A., Simon, M., Bart, H.-J. (2003): Tropfenpopulationsmodellierung – Einfluss von Stoffsystem und technischen Geometrien. *Chem. Ing. Tech.* **75**, 62 – 68.

Schmidt, S., Bart, H.-J. (2003): Hydrodynamic calculation of a RDC-column with the drop population balance model based on single drop experiments. *Proceedings 4. ECCE*, Granada, Spanien.

Schmidt, S., Simon, M., Attarakih, M. M., Lagar G. L., Bart, H.-J. (2004): Estimation of Population Parameters in Liquid-Liquid Extraction Columns. *Proceedings 2nd International Conference on Population Balance Modelling*, Valencia, Spanien.

Schmidt, S., Simon, M., Attarakih, M. M., Lagar G. L., Bart, H.-J. (2004): Droplet Population Balance Modelling - Hydrodynamics and Mass Transfer. eingereicht bei *Chem. Eng. Sci.*.

Bart, H.-J., Schmidt, S.A., Attarakih, M. M.: *Advanced Column Modelling for Reactive Extraction*. 8th Conference on Process Integration, Modelling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction, May 15-18 2005, Giardini Naxos, Italy, eingereicht.