

Einfluss niederfrequenter Fluidresonanzschwingungen auf den Stoffaustausch in Blasensäulen im System Wasser – Luft

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor-Ingenieur (Dr.-Ing.)

genehmigt durch die

Mathematisch-Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultät

(Ingenieurwissenschaftlicher Bereich)

der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg

von

Dipl.-Ing. Bashir Gebril Hussein

geb. am 22. April 1970 in Tripolis

Dekan der Fakultät: Prof. Dr.-Ing. habil .H. Altenbach

Gutachter:

- 1. Prof. Dr. sc. techn. K.-H. Baumann
- 2. Prof. Dr.-Ing. D. Mewes
- 3. Prof. Dr.-Ing. J. Briesovsky

Merseburg, den 29.01.2004

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit am Institut für Umwelttechnik, in der Abteilung Apparate- und Anlagentechnik im Fachbereich Ingenieurwissenschaften der Martin- Luther- Universität Halle- Wittenberg.

An dieser Stelle möchte ich die Gelegenheit wahrnehmen, um mich bei meinem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. K.-H. Baumann, für die Anregung der Arbeit, die in Diskussionen gegebenen wertvollen Hinweise und stets gewährte Unterstützung und Förderung recht herzlich zu bedanken.

Herrn Prof. Dr. J. Briesovsky gebührt ebenso mein Dank für die wertvollen Diskussionen, Anregungen und zahlreichen kritischen Hinweise.

Außerdem möchte ich allen Mitarbeitern des Institutes, die durch Diskussion und tatkräftige Mithilfe zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben, herzlich danken, insbesondere Herrn Dozent Dr.–Ing. G. Blacha und Herrn Dr.–Ing. W. Schmidt. Weiterhin danke ich Frau Schröder, Frau Müller-Siggelkow und Frau Jakob für die allzeit gute Zusammenarbeit.

Dank gilt auch Herrn Prof. Dr. S. Otte für die Unterstützung in der Endphase und bei der Niederschrift der Arbeit.

Nicht zuletzt möchte ich meinen Eltern für die umfangreiche Unterstützung und meiner Ehefrau für ihr Verständnis herzlich danken.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Aufgabenstellung4			
2	Theoretische Grundlagen6			
2.1	Berechnungen von Blasensäulen6			
2.2	Stofftransport in der Blasensäule1			
2.3	Definition des flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten k_L 12			
2.4	Definition der volumenbezogenen Phasengrenzfläche a _G 14			
2.5	Definition des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ 17			
2.6	Messung der Blasengrößenverteilung bzw. des Blasendurchmessers20			
3	Theoretische Untersuchungen von Resonanzschwingungen24			
3.1	Einfluss von Schwingungen auf den Stoffaustauschprozess24			
3.2	Berechnung der Resonanzfrequenz30			
4	Experimentelle Untersuchungen			
4.1	Aufbau der Versuchsanlage			
4.1.1	Funktionsweise und Betrieb			
4.2	Ermittlung der Resonanzfrequenz und Amplitude der Blasensäule in			
	Abhängigkeit von der Wasserhöhe und dem integralen Gasgehalt ϕ_{G_1}			
4.3	Ermittlung und quantitative Erfassung der Charakteristik			
	der Sauerstoff - Elektrode41			
4.4	Untersuchungen des Blasenregimes (Anzahl, Verteilung, Größen)			
	ohne und mit Resonanzschwingungen45			

4.4.1	Zur Methodik der Informationsgewinnung	45
4.4.2	Die Bilderzeugung	45
4.5	Untersuchungen zum Stoffaustausch im System Wasser - Luft	
	ohne und mit Resonanzschwingungen49	
4.5.1	Bestimmung des $k_L a$ - Wertes mit der dynamischen Methode	49
4.5.2	Messung des Konzentrations-Zeit-Verlaufes des Sauerstoffes im Wasser	.49
4.6	Bestimmung des integralen Gasgehaltes φ_G	1

5	Auswertung der Versuchsergebnisse	52
5.1	Auswertungsmethode	52
5.2	Berechnung des theoretischen Sauerstoffkonzentrations-Zeit-Verlaufes	
	in der flüssigen (C_L) und in der gasförmigen (C_G) Phase	56
5.3	Berechnung der theoretischen Werte der Elektrodenanzeige (C_E)	60
5.4	Fehlerbetrachtung	61

6	Ergebnisse und Diskussion	.65
6.1	Verhalten der Sauerstoffelektrode	65
6.2	2 Vergleich der analytischen mit der numerischen Lösung	
6.3	Einfluss der Resonanzschwingungen auf das Blasenspektrum7	
6.4	Einfluss der Resonanzschwingungen auf den integralen Gasgehalt ϕ_{G}	76
6.5	Einfluss der Resonanzschwingungen auf den volumenbezogenen	
	Stoffübergangskoeffizientenk _L a	78
6.6	Vergleich der Versuchsergebnisse mit der Literatur	83

7	Zusammenfassung und Ausblick	86
8	Symbolverzeichnis	90
9	Literaturverzeichnis	

Erklärung

1. Einleitung und Aufgabenstellung

Die Anwendung von Resonanzschwingungen auf technologische Prozesse insbesondere der Chemie, Biotechnologie, Pharmazie und des Umweltschutzes stellt eine radikale Prozess- und Produktinnovation dar. Es gelingt mit einem neuen Wirkprinzip Prozesse wesentlich zu verbessern und Energie einzusparen [113].

In letzter Zeit wurden verstärkt Forschungen zur Nutzung von Schwingungen bei Wirbelschichten [117,118,79] und bei Foulingprozessen [119] durchgeführt.

Umfangreiche Untersuchungen zum Einfluss von Resonanzschwingungen auf den Stoffaustausch wurden von Ostrovsky [76] durchgeführt. Bei seinen Versuchen an Blasensäulen stellte er eine Erhöhung des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten um bis zum Zehnfachen fest.

Durch die Wirkung der Resonanzschwingungen kommt es in der Zweiphasenströmung zu einer Erhöhung der Turbulenz und zum Blasenzerfall, was außerhalb der Resonanz nicht zu beobachten ist.

Durch die Anwendung von Resonanzschwingungen nimmt die volumenbezogene Phasengrenzfläche a_{G} zu, was zu einer Erhöhung des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_{L}a$ führt.

In der vorliegenden Arbeit wurden die Versuche in Blasensäulen im System Wasser-Luft ohne und mit Resonanzschwingungen durchgeführt.

Ziel der Arbeit ist die Ermittlung des Einflusses von niederfrequenten Resonanzschwingungen auf :

- den volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten k_La
- den integralen Gasgehalt ϕ_G
- Blasenbewegung, Blasengröße und Blasenanzahl

Die ersten Untersuchungen galten der Ermittlung der Resonanzschwingungsbereiche sowie ihre Abhängigkeit von der Wasserhöhe und dem integralen Gasgehalt φ_G . Die Untersuchungen wurden mit Wasserhöhen von 1,5 bis 4,5 Meter und einem integralen Gasgehalt φ_G von ca. 5% bis 20% durchgeführt. Dabei wurden die experimentell ermittelten und die theoretisch berechneten Resonanzfrequenzen bei isothermen und isentropen Zustandsänderungen im Inneren der Gasblasen berücksichtigt.

Für die Bestimmung des Stoffübergangskoeffizienten von Sauerstoff in Gas- Flüssig-Reaktoren stehen zwei Messmethoden zur Verfügung: die stationäre [34-38] und die dynamische Methode [39,40,85]. In der vorliegenden Arbeit wurde de dynamische Messmethode zur Bestimmung des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ angewendet, wobei die Gelöst - Sauerstoffkonzentration in der Flüssigphase mit Hilfe einer schnell arbeitenden Sauerstoff - Elektrode gemessen wurde.

Zur Bestimmung des Einflusses der niederfrequenten Resonanzschwingungen auf Blasenbewegung und Blasengröße wurde die fotografische Methode verwendet.

Der Verlauf der Flüssigkeitskonzentration C_L und der Gaskonzentration C_G des Sauerstoffes wurden für den Mittelwert des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ – Wertes durch numerische Lösung der partiellen Differentialgleichung in Abhängigkeit von Ort (Messhöhe) und Zeit (Messzeit an der Messhöhe) berechnet.

Die numerisch ermittelten Flüssigkeitskonzentrationen C_L wurden unter Berücksichtigung der Charakteristik der Sauerstoffelektrode in Messwerte C_E umgerechnet.

Die berechneten Messwerte C_E wurden mit im Versuch gemessenen C_E – Werten verglichen und der volumenbezogene Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ – Wert (als Mittelwert über die Höhe) durch Minimierung der Summe der Fehlerquadrate (C_E Rechnung - C_E Messung)² für alle Messhöhen und Messzeiten des Versuches bei konstanter Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} ermittelt.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Berechnung von Blasensäulen

Blasensäulen werden als Stoffaustauschapparate und Reaktoren für viele chemische und biotechnologische Prozesse eingesetzt [88]. In Blasensäulen werden Gase in Flüssigkeiten dispergiert, um große Phasengrenzflächen für den Wärme- und Stoffaustausch zu erzielen. Im Bereich der Modellierung von Blasenauftriebsströmungen, ihrer effizienten numerischen Simulation und der experimentellen Verifikation der Ergebnisse sind in den letzten Jahren zahlreiche Arbeiten erschienen [90, 91, 92,97,123, 124].

Die numerische Strömungssimulation ermöglicht es, das mehrdimensionale und instationäre Verhalten der Blasenströmung zu beschreiben. Es können beliebige Betriebsbedingungen und Apparateabmessung für die Auslegung berücksichtigt werden [88,89] . Für die Berechnung kommt der spezifischen Phasengrenzfläche eine besondere Bedeutung zu. Stoff, Wärme und Impuls werden durch die Grenzfläche zwischen den Phasen übertragen. Die erzielbare Wärme- und Stoffaustauschleistung hängt von diesen Transportvorgängen ab.

Die lokal zur Verfügung stehende Phasengrenzfläche wird aus der Blasengrößenverteilung erhalten. Sie ist im Strömungsfeld nicht konstant, sondern örtlich und zeitlich veränderlich. Die Koaleszenz und der Zerfall von Blasen sowie der Stoffaustausch beeinflussen die Blasengrößenverteilung. Die Häufigkeit mit der Blasen zerfallen und koaleszieren hängt vom Strömungsfeld ab. Andererseits sind die lokalen Blasengrößenverteilungen für den Impulstransport zwischen den Phasen maßgeblich und beeinflussen ihrerseits das Strömungsfeld. Strömungsfeld und Blasengrößenverteilung sind eng miteinander gekoppelt. Trotzdem wurden in den bisherigen numerische Berechnungen der Strömungsfelder in Blasensäulen die örtlich und zeitlich veränderlichen Blasengrößenverteilungen nicht berücksichtigt [90,91,92]

In Abhängigkeit der Gasleerrohrgeschwindigkeit des Gases werden in Blasensäulen zwei typische Betriebszustände unterschieden:

- 1. Im homogen Bereich für kleine Gasleerrohrgeschwindigkeit erscheint die Größe und die Aufstiegsbewegung der Blasen relativ einheitlich.
- Für hohe Werte der Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} liegt der heterogene Strömungszustand vor. Die Strömung ist durch starke Wirbel gekennzeichnet. Durch Koaleszenz bilden sich Großblasen, die mit erhöhter Geschwindigkeit in der Blasensäule aufsteigen.

Im niedrigen Bereich von Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} nimmt der integrale Gasgehalt φ_G linear mit der Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} zu. Im heterogenen Bereich steigt der integrale Gasgehalt φ_G langsamer an. Der Übergang zwischen den unterschiedlichen Betriebszuständen hängt von der konstruktiven Gestaltung des Gasverteilers und den stofflichen Eigenschaften der Flüssigkeit ab [87, 93, 94, 95]. Für kleine Gasleerrohrgeschwindigkeiten W_{SG} ist der integrale Gasgehalt φ_G höher für Gasverteiler an denen gleichmäßig verteilt kleine Blasen erzeugt werden. Dies gilt z.B. für den Einsatz von Sinterplatten anstelle von Lochplatten als Gasverteiler.

Chen, Reese und Fan [96] führten ihre Messungen in Blasensäulen durch. Sie beobachteten den Übergangsbereich zwischen homogenem und heterogenem Strömungszustand. Die Strömung ist gekennzeichnet durch einen zentralen spiralförmigen Blasenschwarm, der um die Säulenachse schwingt. Unabhängig vom Betriebszustand wurde aus den Messungen für das zeitlich gemittelte Strömungsfeld ein einheitliches Strömungsbild erhalten. Es bildete sich eine großräumige Zirkulationsströmung, in der die Flüssigkeit in der Mitte der Blasensäule nach oben und in der Nähe der Wand nach unten strömt. Der Volumenanteil der Blasen ist in der Mitte der Blasensäule am höchsten und in der Nähe der Wand am niedrigsten

Die ersten Ergebnisse numerischer Berechnungen für die Strömungsfelder in zylindrischen Blasensäulen wurden von Torvik und Svedsen [98] veröffentlicht. Sie setzten radialsymmetrische und stationäre Strömungsfelder voraus und führten Berechnungen für zwei Raumdimensionen durch. Für radialsymmetrische Strömungsfelder wurden nachfolgend von Jakobsen und und Svendsen [99], Grienberger [100], Celik und Wang [101], Boisson und Malin [102], Ranade [103], Thakre und Joshi [104] sowie von Saynal, Vaquez, Roy und Dudukovic [105] Berechnungen durchgeführt.

Die Annahme radialsymmetrischer Strömungsfelder ist jedoch nur für die zeitlich gemittelten Strömungsfelder in Blasensäulen gerechtfertigt. Die aus Experimenten bekannten stark zeitlich und örtlich veränderlichen Strömungsfeder können nicht berechnet werden.

Die ersten Berechnungen für die zeitabhängigen Strömungsfelder wurden von Webb, Que und Senior [106] für die instationäre Bewegung eines aufsteigenden ebenen Blasenschwarms für zwei Raumdimensionen veröffentlicht.

Berechnungen für das instationäre dreidimensionale Strömungsfeld in einer zylindrischen Blasensäule wurden von Lapin und Lübbert [107,108] durchgeführt. Um höhere Blasenanzahldichten und Gasgehalte berechnen zu können, verfolgten sie nicht Einzelblasen, sondern Cluster aus mehreren Blasen mit stationärer Anordnung beim Aufstieg. Dadurch bewegen sich die Blasen in den Clustern nicht mehr unabhängig voneinander.

Ähnliche Berechnungen für die Strömungsfelder in lokal begasten, flachen, rechteckigen Blasensäulen wurden von verschiedenen Forschergruppen durchgeführt. Delnoij, Kuipers und van Swaaij [109] setzen das Euler – Lagrange Verfahren ein und gehen dabei von laminarer Strömung aus. Ebenfalls mit dem Euler – Lagrange Verfahren unter Anwendung des k - ε Turbulenz – Modells arbeiteten Lain, Bröder und Sommerfeld [110].

Trotz der stark vereinfachenden Annahmen ist der numerische Aufwand für die Berechnungen von Lo [111] bereits erheblich. Zudem sind meist nicht die lokalen Blasengrößenverteilungen selbst von Interesse, sondern nur integrale Größen der Blasengrößenverteilungen wie die spezifischen Phasengrenzflächen. Aus diesen Gründen werden anstelle der vollständigen Populationsbilanz vereinfachte Lösungen benötigt.

Kocamustafaogullari und Ishii [112] erweiterten die Populationsbilanz auf beiden Seiten mit der Phasengrenzfläche der einzelnen Blasen. Durch Integration über alle Blasenvolumina erhielten sie eine Bilanzgleichung für die spezifische Phasengrenzfläche der Blasen. Sie ersetzten daher die Kernfunktionen für Zerfall und Koaleszenz durch Quellterme, die die integral Änderung der spezifischen Phasengrenzfläche durch Zerfall bzw. Koaleszenz beschreiben. Diese können jedoch nicht allgemeingültig formuliert werden. Sowohl die Anzahldichteverteilung als auch die Kernfunktionen für Koaleszenz und Zerfall sind Funktionen des Blasenvolumens. Die integrale Änderung der spezifischen Phasengrenzfläche hängt immer von der Form der Anzahldichteverteilung ab. Diese ist jedoch nicht bekannt .

2.2 Stofftransport in der Blasensäule

Zur Veranschaulichung der wesentlichen Zusammenhänge beim Stofftransport zwischen zwei fluiden Phasen ist die Filmtheorie [87,26] aufgrund ihres einfachen Aufbaus gut geeignet. Dieses Modell geht davon aus, dass der den Stofftransport hemmende Widerstand nur in den Grenzschichten zu beiden Seiten der Phasengrenzfläche wirksam ist. In den angenommenen Filmen erfolgt der Stofftransport ausschließlich durch molekulare Diffusion, so dass sich ein linearer Konzentrationsverlauf in den Grenzschichten einstellt. Den Verlauf der Konzentration in der flüssigen Phase und Gasphase zeigt Abbildung 2.1



Abb. 2.1 Konzentrationsverlauf nach dem Filmmodell

Das System ist kinetisch kontrolliert, und es gibt keine nennenswerte Umsetzung innerhalb des Filmvolumens $a \cdot \boldsymbol{d}_L \cdot V_R$. Die Komponente A aus der Gasphase wird an der Phasengrenzfläche von der Flüssigkeit absorbiert, durch den Film mit der Dicke \boldsymbol{d}_L transportiert und schließlich im Kernbereich der Flüssigkeit mit einer dort im Überschuss vorliegenden Komponente B umgesetzt.

Die Konzentration von B in der Flüssigkeit kann unter diesen Voraussetzungen als konstant betrachtet werden. Für die Komponente A gilt im Kernbereich $c_{A,L} > 0$.

Die Absorption sei in desem Beispiel eine Reaktion erster Ordnung bezüglich der Komponente A. Damit lautet der Ansatz für die Absorption:

$$N_{A}^{*} = -k_{1} \cdot c_{A,L} \cdot V_{R}$$
(2.1)

Mit den Bezeichnungen aus Abbildung 2.1 lassen sich die Stoffströme auf der Gasbzw. der Flüssigkeitsseite folgendermaßen formulieren:

$$N_{A}^{*} = k_{G} \cdot A_{Ph} \cdot (c_{A,G} - c_{A,G,gl})$$
(2.2)

$$N_{A}^{*} = k_{L} \cdot A_{Ph} \cdot (c_{A,L,gl} - c_{A,L})$$
(2.3)

An der Grenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit soll sich ein Gleichgewicht einstellen, für welches das Henry-Gesetz in der Form gilt:

$$c_{A,G,gl} = He \cdot c_{A,L,gl}$$
(2.4)

Bei Vernachlässigung des Transportwiderstandes in der Grenzschicht erhält man die volumenbezogene Phasengrenzfläche a_G aus

$$a_{\rm G} \equiv \frac{A_{\rm Ph}}{V_{\rm R}}$$
(2.5)

2.3 Definition des flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten k_L

In Zweiphasenreaktoren mit disperser Phasengrenzfläche wird für die Angabe des übergehenden Stoffstroms häufig der volumenspezifische Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ verwendet. Damit lässt sich der absorbierte Stoffstrom folgendermaßen beschreiben:

$$\mathbf{N}^{\star} = \mathbf{k}_{\mathrm{L}} \mathbf{a} \cdot \Delta \mathbf{c} \cdot \mathbf{V}_{\mathrm{R}} \tag{2.6}$$

Der volumenspezifische Stoffübergangskoeffizient ist als das Produkt aus dem flüssigkeitsseitigen Stoffübergangskoeffizienten k_L und der volumenbezogenen Phasengrenzfläche a_g definiert:

$$k_{L}a \equiv k_{L} \cdot a_{G} \tag{2.7}$$

worin die volumenspezifische Phasengrenzfläche durch die Gleichung (2.5) gegeben ist.

Aus Ansätzen auf der Grundlage der Theorie der isotropen Turbulenz [1] kann man eine Abhängigkeit des Stoffübergangskoeffizienten k_L von den hydrodynamischen Bedingungen und somit von der eingebrachten Energie erkennen:

$$k_{L} \sim D_{L}^{2/3} \cdot v_{L}^{-5/12} \cdot (P/m)^{1/4}$$
 (2.8)

Darin steht der Ausdruck (P/m) für den auf die gesamte Systemmasse bezogenen Leistungseintrag.

Nach Untersuchungen von Calderbank et. al. [1] an Einzelblasen spielt die Turbulenz der umgebenden kontinuierlichen Flüssigkeit eine wichtige Rolle. Die Autoren stellten fest, dass sich kleine, durch die Flüssigkeitsturbulenz beeinflusste Blasen mit dem Ansatz aus Gleichung (2.8) korrelieren lassen, während die großen, sich frei unter dem Einfluss der Schwerkraft bewegenden Blasen keine Abhängigkeit von der in das System eingebrachten Energie besitzen:

$$k_{L} = 0.42 \cdot D_{L}^{1/2} \cdot g^{1/3} \cdot v_{L}^{-1/6}$$
 (große Blasen) (2.9)

$$k_{L} = 0.13 \cdot D_{L}^{2/3} \cdot v_{L}^{-5/12} \cdot (P/m)^{1/4} \quad \text{(kleine Blasen)}$$
(2.10)

Nach Calderbank et. al. [1] lässt sich der Einfluss des Blasendurchmessers bei Einzelblasen durch die Einteilung in zwei Blasengrößenklassen beschreiben. In Blasensäulen gaben dagegen Akita et. al. [2] mit der Beziehung:

$$k_{L} = 0.5 \cdot g^{5/8} \cdot D_{L}^{1/2} \cdot \rho_{L}^{3/8} \cdot \sigma^{-3/8} \cdot d_{B}^{1/2}$$
(2.11)

und Hugmark [3] mit:

$$k_{L} = \frac{D_{L}}{d_{B}} (2 + 0.0187 \cdot d_{B}^{0.556} \cdot v_{B}^{0.484} \cdot v_{L}^{-0.145} \cdot D_{L}^{-0.387} \cdot g^{0.024})^{1.61}$$
(2.12)

davon abweichend einen direkten Einfluss des Blasendurchmessers d_B an. Bei Akita et. al. [2] ist der Stoffübergangskoeffizient unabhängig von der Viskosität. Dagegen wird, im Gegensatz zu den Ansätzen anderer Autoren, der Oberflächenspannung eine besondere Bedeutung zugemessen.

Chang et. al. [4] passten ihre Ergebnisse wie Calderbank et. al. [1] zusätzlich mit dem massenbezogenen Leistungseintrag an:

$$k_{L} = 0.43 \cdot d_{B}^{3} \cdot v_{L}^{-5/2} \cdot D_{L}^{1/2} \cdot (P/m)$$
(2.13)

Die direkte Proportionalität der Dissipationsleistung mit der Gasleerrohrgeschwindigkeit gemäß:

$$\frac{P}{m} \sim W_{SG} \cdot g \tag{2.14}$$

steht darin im Widerspruch zu den Ergebnissen von Akita et. al. [2], Reith et. al. [5] und Schumpe et. al. [5], die in Blasensäulen keine oder nur eine geringfügige Abhängigkeit des Stoffübergangskoeffizienten von der Gasbelastung feststellten.

2.4 Definition der volumenbezogenen Phasengrenzfläche a_g

Da in einem Kontaktapparat wie der Blasensäule die übertragene Stoffmenge der Austauschfläche direkt proportional ist, hat die in Gleichung (2.5) definierte volumenbezogene Phasengrenzfläche große Bedeutung für die Dimensionierung von Blasensäulen. In der Literatur beschäftigten sich zahlreiche Autoren mit dieser Größe [2-6, 7, 8, 9], wobei sie verschiedene Untersuchungsmethoden und unterschiedliche Stoffsysteme verwenden. Sie nennen dabei gemeinsam als Haupteinflussgrößen

- die Gasbelastung
- die Viskosität der Flüssigkeit und
- die Koaleszenzeigenschaften der Flüssigkeit.

Mit zunehmender Gasbelastung vergrößert sich die Phasengrenzfläche in der Blasensäule. Da es bei höheren Gasgeschwindigkeiten zur Ausbildung einer heterogenen Blasenströmung und zur Bildung von Großblasen oder Blasenagglomeraten kommt [10], erhöht sich die Phasengrenzfläche unterproportional zur Gasbelastung. Es besteht ein Zusammenhang der Art:

$$a_{\rm G} \sim W {\rm sg}^{\rm a_2} \tag{2.15}$$

wobei der Exponent a_2 im heterogenen Strömungsbereich Werte zwischen 0,4 und 0,7 annimmt [11, 12].

Mit zunehmender Flüssigkeitsviskosität tritt eine Abnahme der volumenbezogenen Phasengrenzfläche auf, die sich mit einem Ansatz der Form:

$$a_{\rm G} \sim \eta_{\rm L}^{a_3}$$
 (2.16)

und Werten für den Exponenten a_3 zwischen -0,2 und -0,5 beschreiben lässt. Dieses Phänomen wird durch eine viskositätsbedingte Dämpfung der Turbulenzbewegungen in der Flüssigkeitsphase erklärt, welche den Blasenzerfall behindert und so eine Zunahme des mittleren Blasendurchmessers bewirkt [11]. In Stoffsystemen mit Koaleszenzhemmung sind besonders große volumenbezogene Phasengrenzflächen möglich. Die Ursache dafür besteht in einer Stabilisierung der Grenzflächen durch die Ausbildung von Ladungshüllen in Form von elektrischen Doppelschichten [13]. Bei der Annäherung bzw. dem Zusammenstoß der gleichartig geladenen Hüllen verschiedener Blasen behindern abstoßende Ladungskräfte die Koaleszenz.

Die Geometrie der Blasensäule hat normalerweise keinen Einfluss auf die Größe der Phasengrenzfläche. Erst bei einem Reaktordurchmesser von $D_R < 0,15m$, wie er in Laborapparaturen auftreten kann, kommt es zu Wandeffekten, die Auswirkungen auf die Hydrodynamik und damit auf die Größe der Phasengrenzfläche haben. Ein Einfluss des Gasverteilers ist insbesondere in koaleszenzgehemmten Stoffsystemen und bei Flüssigkeiten hoher Viskosität zu erwarten [10].

Zur volumenbezogenen Phasengrenzfläche in Blasensäulen liegen nur wenige Ergebnisse in Form von Korrelationsbeziehungen vor. Einige Autoren [6, 11] verwendeten dazu dimensionsbehaftete Potenzansätze mit den Haupteinflussfaktoren "Gasleerrohrgeschwindigkeit" und "effektive Viskosität" in der Form:

$$\mathbf{a}_{\rm G} = \mathbf{a}_1 \cdot \mathsf{Wsg}^{\mathbf{a}_2} \eta_{\rm eff}^{\mathbf{a}_3} \tag{2.17}$$

Akita et. al. [2] gaben in ihrer dimensionslosen Beziehung als weitere Einflussgrößen auch den Reaktordurchmesser und die Oberflächenspannung an und korrelierten ihre Messdaten zusätzlich mit dem Gasgehalt:

$$a_{G} \cdot D_{R} = \frac{1}{3} \cdot \left(\frac{g \cdot D_{R}^{2} \cdot \rho_{L}}{\sigma}\right)^{0.5} \cdot \left(\frac{g \cdot D_{R}^{3}}{v_{L}^{2}}\right)^{0.1} \cdot \varphi_{G}^{1.13}$$
(2.18)

Diese Ergebnisse stammen aus Untersuchungen mit einer photographischen Methode an Blasensäulen mit 7,5 und 15 cm Durchmesser. Der hier festgestellte Einfluss der Säulengeometrie $(a_G \sim D_R^{0.3})$ ist vermutlich auf den geringen Querschnitt der Versuchsapparatur zurückzuführen. Die Proportionalität der volumenbezogenen Phasengrenzfläche mit der Oberflächenspannung $(a_G \sim s^{-0.5})$ wird durch Schlussfolgerungen unterstützt, die sich aus Untersuchungen von Mendelson [14] zum Einfluss der Oberflächenspannung auf die Blasenaufstiegsgeschwindigkeit ziehen lassen. Eine Erhöhung der Oberflächenspannung resultiert in einer Zunahme der Blasengröße und damit einer Vergrößerung der Blasenaufstiegsgeschwindigkeit. Dies hat eine Verringerung des Gasgehaltes und damit eine Verminderung der volumenbezogenen Phasengrenzfläche zur Folge, für die im Falle kugelförmiger Blasen der folgende Zusammenhang gültig ist:

$$a_{\rm G} = \frac{6 \cdot \varphi_{\rm G}}{d_{\rm B}} \tag{2.19}$$

Eine Verminderung der volumenbezogenen Phasengrenzfläche als Folge einer Erhöhung der Oberflächenspannung tritt dann auf, wenn die Zunahme der mittleren Blasengröße größer als die Gasgehaltszunahme ist. Darüber entscheiden im Einzelfall die Koaleszenzeigenschaften und die Hydrodynamik des Systems.

2.5 Definition des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$

Zur Berechnung des Stofftransportes in dispersen Zweiphasensystemen ist der direkt gemessene volumenbezogene Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ oft besser geeignet als ein Produkt aus den einzeln bestimmten Größen k_L und a_G . Der volumenbezogene Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ wird durch das Stoffsystem und durch die Hydrodynamik bestimmt. In diese Größe gehen Faktoren ein, die den Blasendurchmesser und die Filmbeweglichkeit beeinflussen, wie z. B. die Flüssigkeitsviskosität, die Oberflächenspannung und das Koaleszenzverhalten der dispergierten Phase.

Zwischen der Viskosität und dem Diffusionskoeffizienten der kontinuierlichen Phase besteht über die Stokes-Einstein-Beziehung [15] der Zusammenhang:

$$\mathsf{D}_{\mathsf{L}} \sim \frac{\mathsf{T}}{\eta_{\mathsf{L}}} \tag{2.20}$$

Mit zunehmender Flüssigkeitsviskosität verschlechtert sich daher der diffusive Stofftransport in der Grenzschicht. Zusätzlich bewirkt die durch die Zunahme der Flüssigkeitsviskosität hervorgerufene Dämpfung der Turbulenzbewegungen eine Verminderung der Blasendesintegration und damit eine Abnahme der Phasengrenzfläche. Eine Viskositätserhöhung führt daher in jedem Fall zu einer Verminderung des k_La -Wertes.

Untersuchungen an koaleszierenden und koaleszenzgehemmenten Systemen zeigen, dass die Veränderungen des $k_L a$ -Wertes hauptsächlich auf den unterschiedlich großen Phasengrenzflächen beruhen. Dabei stellt man fest, dass die Werte für den volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten in den koaleszenzgehemmten Medien größer sind. Begründet wird dies dadurch, dass der flüssigkeitsseitige Stoffübergangskoeffizient mit steigender Koaleszenzhemmung zwar leicht zurückgeht, die Phasengrenzfläche durch die Stabilisierung der Grenzflächen jedoch überproportional zunimmt [8]. Über den Einfluss suspendierter Feststoffpartikeln auf den Stoffübergang Gas / Flüssigkeit in Dreiphasen-Blasensäulen sowie -Fließbetten wurden bisher sehr unterschiedliche und widersprüchliche Aussagen getroffen. Nach einem Einsatz von Feststoff konnte im Vergleich zum feststofffreien System neben einer Erniedrigung [52-59] auch häufig eine Erhöhung [60-72] des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten ermittelt werden.

In den in der Literatur vorliegenden Untersuchungen zum volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten werden die Einflüsse der Säulengeometrie, des Gasverteilers und der Stoffeigenschaften betrachtet. Ein Teil der Autoren gibt die Ergebnisse in Form von dimensionslosen oder dimensionsbehafteten Korrelationsbeziehungen an.

Die dimensionsbehafteten Beziehungen [6, 16, 17, 18] für den $k_L a$ - Wert haben die Form:

$$k_{L}a = b_1 \cdot WSG^{b_2} \cdot \eta_{eff}^{b_3}$$
(2.21)

wobei, wie schon in Gleichung (2.17) bei der volumenbezogenen Phasengrenzfläche a_{G} , die signifikanten Haupteinflussgrößen "Gasleerrohrgeschwindigkeit" und "Flüssigkeitsviskosität" im Vordergrund stehen. Koaleszenz- und sonstige Stoffeigenschaften gehen in den Vorfaktor b_{1} ein.

Akita et. al. [19] fassten ihre Ergebnisse in einer dimensionslosen Beziehung zusammen:

$$\frac{k_{L}a \cdot D_{R}^{2}}{D_{L}} = 0.6 \cdot \left(\frac{\nu_{L}}{D_{L}}\right)^{0.5} \cdot \left(\frac{g \cdot D_{R}^{2} \cdot \rho_{L}}{\sigma}\right)^{0.62} \cdot \left(\frac{g \cdot D_{R}^{3}}{\nu_{L}^{2}}\right)^{0.31} \phi \cdot_{G}^{1.1}$$
(2.22)

in der $k_L a$ wie auch die volumenbezogene Phasengrenzfläche (Gleichung 2.18), vom Reaktordurchmesser $(k_L a \sim D_R^{0.17})$ und der Oberflächenspannung $(k_L a \sim s^{-0.62})$ abhängig ist. Kataoka et. al. [120] bestätigten diese Angaben mit Messungen in einer Blasensäule von 5,5 m Durchmesser. Posarac et. al. [121] benutzten diese Beziehung zur Anpassung von Daten aus Experimenten mit wässrigen Alkohollösungen, wobei sie nur einer Veränderung des kostanten Vorfaktors vornehmen.

Öztürk et. al. [20] setzten ihre Beziehung für den Volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ ähnlich an, verzichteten allerdings auf eine Formulierung in Abhängigkeit vom Gasgehalt und verwendeten als charakteristische Länge statt des Reaktordurchmessers den Blasendurchmesser.

Wie bereits von vielen Autoren [82-84,24] bei den Untersuchungen an Gas/Flüssigkeits-Zweiphasenreaktoren beobachtet wurde, führen größere Bohrungsdurchmesser zu einer deutlich geringeren Stoffaustauschleistung. In der vorliegenden Arbeit wurden Lochplatten mit einem Lochdurchmesser von 100 µm verwendet, die zu einer deutlichen Verbesserung der Stoffaustauschleistung führten.

Wie Yu [85] ermittelte, hat eine Vergrößerung des Säulendurchmessers von 0,1 bis 0,44 m nur zu einer geringeren Zunahme der Stoffaustauschleistung geführt.

Zusammenfassend lässt sich über den Stoffübergang in zweiphasigen Blasensäulen sagen, dass die Gasleerrohrgeschwindigkeit und die Flüssigkeitsviskosität in allen Untersuchungen als signifikante Einflussfaktoren angegeben werden. Dagegen liegen unterschiedliche Ergebnisse zum Einfluss des Säulendurchmessers und der stofflichen Größen (Oberflächenspannung, Gasdichte und Gasviskosität) vor.

2.6 Messung der Blasengrößenverteilung bzw. des Blasendurchmessers

Zur Ermittlung der Blasengrößenverteilung beziehungsweise des Blasendurchmessers steht eine Reihe von Messmethoden zur Verfügung. Dabei wird die Gas-Flüssigkeits-Dispersion entweder durch in die Säule eingebaute Fenster beobachtet, oder es werden Sonden, die nach verschiedenen Prinzipien arbeiten, eingeführt. Eine weitere Möglichkeit besteht darin, einen repräsentativen Teil der Blasendispersion aus dem Reaktor abzuziehen und außerhalb zu untersuchen.

Wegen ihrer Einfachheit ist besonders die fotografische Methode weit verbreitet [2, 20, 21, 22, 23, 25]. Dabei werden fotografische Aufnahmen der Gas-Flüssigkeits-Dispersion unter Mitaufnahme eines geeigneten Maßstabes angefertigt. Wegen der apparativ bedingten Wandkrümmung kann es leicht zu Verzerrungen kommen, was sich durch Anbringen eines planparallelen Fensters beziehungsweise durch Ummantelung der Säule mit einem flüssigkeitsgefüllten rechteckigen Kasten vermeiden lässt [21]. Die Auswertung der Blasenfotografien erfolgt durch Auszählung und Klassierung mittels geeigneter Geräte, wobei ein Lichtkreis der Projektionsfläche der einzelnen Blasen angepasst wird. Eine Online-Auswertung der Blasenbilder befindet sich noch in der Entwicklung [27]. Im Allgemeinen wird eine Auszählung von mehr als 500 Blasen empfohlen, um zuverlässige Mittelwerte zu erhalten. Fehler bei der Auswertung ergeben sich erst dann, wenn die Blasen von der Kugelgestalt abweichen und daher bei der zweidimensionalen Projektion durch einen flächengleichen Kreis nur approximiert werden können. Nach Kölbel et. al. [25] haben nur Blasen bis zu einem Durchmesser von 1 mm eine streng kugelförmige Gestalt. Bei größeren Durchmessern nehmen sie die Form von Rotationsellipsoiden beziehungsweise ab $d_{B} = 5mm$ die von Kugelkalotten an. Beim Vorliegen von Rotationsellipsoiden sind nur mäßige Korrekturen erforderlich, für Kugelkalotten sind sie jedoch beträchtlich. Bleiben die Formänderungen unberücksichtigt, können erhebliche Fehler auftreten [28].

Das fotografische Verfahren ist relativ mühsam und erfasst nur die Blasen in Wandnähe, nicht jedoch die bevorzugt im Zentrum der Säule aufsteigenden Blasen mit größerem Durchmesser. Deshalb wurden im vergangenen Jahrzehnt verschiedene Messsonden entwickelt, die eine Bestimmung der Blasengrößenverteilungen praktisch an jeder Stelle des Gas-Flüssig-Reaktors erlauben und zudem zur gleichzeitigen Bestimmung des Gasgehalts und der Blasenaufstiegsgeschwindigkeit geeignet sind. Hier soll nur das Prinzip von zwei dieser Verfahren kurz vorgestellt werden.

Die Zweipunkt-Leitfähigkeitssonde nach Buchholz [29], ist zur Vermessung der Blaseneigenschaften in elektrisch gut leitenden Flüssigkeitsmedien geeignet. Sie besteht aus zwei identischen Edelmetallfühlern (Pt/Ir), die mit Ausnahme der Spitze elektrisch isoliert sind. Der Abstand der beiden parallelen Nadeln lässt sich dem zu vermessenden System anpassen. Die Sonde wird senkrecht nach unten gerichtet in die Blasenströmung eingebracht, so dass die aufsteigenden Blasen der Länge nach durchstoßen werden. Zuerst wird an dem längeren Fühler durch das Eintauchen in die Gasblase die Leitfähigkeit (gemessen gegenüber der Masse des Schutzrohres der Fühler) herabgesetzt und nach Verstreichen der Zeit Δt auch der Stromfluss an dem um die Länge Δx höher angebrachten Fühler unterbrochen.

Mit Hilfe einer geeigneten Datenverarbeitungsanlage und unter Verwendung eines Vielkanalanalysators lassen sich aus den Messsignalen folgende Größen berechnen. Der lokale Gasgehalt $\varphi_G(x)$ ergibt sich als

$$\varphi_{\rm G}(\mathbf{x}) = \frac{\sum \Delta t}{t_{\rm G}}$$
(2.23)

wobei t_G die Gesamtzeit darstellt.

Die Blasenaufstiegsgeschwindigkeit und der Blasendurchmesser (in Aufstiegsrichtung) errechnen sich nach

$$W BA = \frac{\Delta x}{\Delta t}$$
(2.24)

und

$$d_{\rm B} = \frac{\Delta t_1}{\Delta t} \Delta x \tag{2.25}$$

Um mit der Zweipunkt-Leitfähigkeitssonde genauere Ergebnisse zu erhalten, müssen die Blasen zentral durchstoßen werden. Eine gewisse Zentrierung nicht mittig ge-

troffener Blasen ermöglicht die Hydrophobierung der Sonden und der Einbau eines Komparators in die Auswertelektronik, der die Signallängen Δt_1 und Δt_2 vergleicht, so dass sich nicht zentral getroffene Blasen aussondern lassen. Besser geeignet zur Vermessung der Blaseneigenschaften nach dem Leitfähigkeitsprinzip ist Mehrpunkte-Sonden zum Beispiel mit vier Fühlern, wobei drei Fühler auf einer Ebene in kurzem Abstand oberhalb des zentral angeordneten vierten Fühlers angebracht werden. Durch die elektronische Signalverarbeitung kann auch hier sichergestellt werden, dass nur die Signale der zentral getroffenen Blasen ausgewertet werden.

Ebenfalls entwickelt wurden optische Sonden, die auch in nicht leitenden, organischen Medien einsetzbar sind. Das Messprinzip beruht darauf, dass an einem entsprechend angefertigten Ende eines Lichtleiters je nachdem, ob die Sonde in Flüssigkeit oder eine Blase eintaucht, Strahldurchgang bzw. Totalreflexion erfolgt. Das elektrooptische Messverfahren geht auf Todtenhaupt [30] zurück und wurde von Pilhofer und Miller [31] sowie Brentrup et. al. [32] weiterentwickelt. Die Zweiphasenströmung wird bei einem konstanten Unterdruck durch eine Kapillare aus dem Reaktor abgesaugt, wobei sich die Blasen, ohne zu zerreißen, zu Pfropfen verformen. Die Länge des Pfropfens wird über Lichtschranken vermessen.

Mit Kenntnis des Kapillardurchmessers d_{κ} errechnet sich das Blasenvolumen zu

$$V_{\rm B} = \mathbf{h} \cdot \pi \cdot \left(\frac{\mathbf{d}_{\rm K}}{2}\right)^2 \cdot \frac{\Delta t_1}{\Delta t}$$
(2.26)

Die Genauigkeit und Zuverlässigkeit des elektrooptischen Messverfahrens hängt wesentlich von der Breite der zu vermessenden Blasengrößenverteilung und vom gewählten Kapillardurchmesser und der Absauggeschwindigkeit der Zweiphasenströmung ab. Nur bei isokinetischer Absaugung ist ein ungestörtes Einlaufen der Blasen mit unterschiedlichen Durchmessern in die Kapillare möglich. Als Größe des Kapillardurchmessers wird der mittlere Blasenradius empfohlen [33]. Generell stellt der Kapillardurchmesser die untere Erfassungsgrenze dar, während sich die obere dadurch ergibt, dass sich größere Blasen besonders bei hohen Absauggeschwindigkeiten in der Kapillare zerteilen. Bei zu kleinen Absauggeschwindigkeiten ist mit Blasenkoaleszenz im Einlauftrichter zu rechnen. Da die Blasen auf Grund ihrer unterschiedlichen Größe verschiedene Aufstiegsgeschwindigkeiten aufweisen, ist die Forderung nach isokinetischer Absaugung nur bei engen Blasenverteilungen und geringen Blasendichten zu realisieren.

Buchholz et. al. [33] haben Blasengrößenverteilungen, die nach verschiedenen Verfahren ermittelt wurden, verglichen. Bei den Messungen mit den Sonden werden die schnell aufsteigenden, größeren Blasen überrepräsentiert, da sie eine geringere Verweilzeit aufweisen aber in entsprechend geringerem Maße zum Gasgehalt und zur Phasengrenzfläche beitragen. Die Berechnung des für die Phasengrenzfläche maßgeblichen Sauter-Durchmessers nach

$$d_{\rm S} = \frac{\sum n_i d_i^3}{\sum n_i d_i^2}$$
(2.27)

liefert daher nicht denselben Wert wie der räumlich gemittelte Sauter-Durchmesser, der für die Berechnung der geometrischen Phasengrenzfläche erforderlich ist [28]. Dieser Fehler tritt bei der fotografischen Methode nicht auf, da die Wahrscheinlichkeit der Erfassung der Blasen umgekehrt proportional ihrer Aufstiegsgeschwindigkeit ist [21]. Es muss ausdrücklich betont werden, dass alle Messverfahren bestimmten Einschränkungen unterliegen und zum Teil eine deutliche Blasenselektion erfolgt. Insbesondere geben alle Messtechniken nur dann zuverlässige Ergebnisse, wenn quasihomogene Strömung vorliegt, also die Blasengrößenverteilung möglichst eng ist. Empfehlenswerte Messtechniken zur Erfassung der Eigenschaften der Großblasen bei heterogener Strömung wurden bisher nicht beschrieben.

3 Theoretische Untersuchungen von Resonanzschwingungen

3.1 Einfluss von Schwingungen auf den Stoffaustauschprozess

Viele Vorrichtungen, wie zum Beispiel Hochleistungsrührwerke, statische Mischer und Blasensäulen, wurden bereits dazu benutzt, den Stoffübergang vom Gas zur Flüssigkeit zu erhöhen. Einer der einfachsten und gebräuchlichsten Kontaktapparate ist die Blasensäule. Diese besteht aus einem mit Flüssigkeit gefüllten Rohr, in das Gas eingeblasen wird. Das Verhalten des Stoffüberganges in Blasensäulen ist bereits ausreichend untersucht und dokumentiert. Deckwer's Korrelation [70], die auch von Shah et. al. [42] empfohlen wird, wird allgemein benutzt, um Übertragungskoeffizienten vorauszusagen.

Innere und äußere Schlaufenreaktoren, untersucht von Chisti [43] sind eine komplexere Form von Blasensäulen. Man unterscheidet zwischen den Typen Spaltzylinderrohr und Spaltzugrohr. Das Grundprinzip der Wirkungsweise ist, dass die Größe der Dichteunterschiede in der Zweiphasendispersion von der Position des Gasverteilers abhängt, welcher gleichzeitig die Zirkulation der Flüssigkeit antreibt.

Stoffübergangsmessungen wurden von Lewis und Davidson [44] an äußeren Schlaufenreaktoren und von Chisti [43] auch an inneren durchgeführt. Der Gas-Flüssigkeits-Stoffübergang wurde ohne Verwendung von mechanischen Rührern mit steigendem Volumenanteil der Blasen verbessert.

Der am meisten verbreitet benutzte Behälter, der den Stoffübergang mit mechanischen Hilfen verbessert, gebraucht Rührer und Gasverteiler.

Calderbank [45] untersuchte und wies Korrelationen für die Grenzfläche bezüglich des Energieverbrauches nach. Linek und seine Mitarbeiter [46] gaben eine Beziehung zwischen dem Stoffübergang, der Energie, der Dichte und der äußeren Gasgeschwindigkeit an.

Schwingung ist auch eine Form, eine Flüssigkeit aufzurühren. Baird und Garstang [48] führten Untersuchungen mit Schwingungen mit dem Resultat durch, dass sich der Stoffübergang vom Gas zur Flüssigkeit erhöht hat. Bellhouse et. al. [49] benutzten die Schwingungen in unebenen Kanälen, um den Blutsauerstoff anzureichern. Knott und Mackley [50] bemerkten entlang der Strömung an scharfen Ecken in schwingenden Systemen Wirbelbildungen. Diese Arbeit wurde von Brunold et. al. [51] erweitert, indem ein U-Rohr mit rechtwinkligen Biegungen und Trennwänden benutzt wurde. Die Trennwände wurden eingesetzt, um die scharfen Ecken zu simulieren. Die Anderen fanden heraus, dass für gute Wechselwirkungen der Wirbel für die Abstände der Umlenkbleche das 1,5-fache des Rohrdurchmessers optimal wäre.

Dickens et. al. [41] untersuchten das Ort-Zeit-Verhalten von schwingenden Strömungen in einem Rohr mit Umlenkblechen mit der optimalen Geometrie von Brunold et. al. [51]. Sie haben herausgefunden, dass die Vorrichtung, wenn diese mit einer Art Pfropfenströmung betrieben werden könnte, eine effiziente radiale Mischung liefert. Außerdem intensiviert sich die Mischung innerhalb des Hohlraums, wenn man die Frequenz und die Amplitude erhöht.

Baird und Garstang [47] haben durch Experimente mit pulsierenden Gas-Flüssigkeitsgemischen gezeigt, dass sich mit regulär verteilten Abständen zentral laufender Umlenkbleche ein dreifacher Anstieg des gasseitigen Volumenanteils ergab. Es wurde auch ein dreifacher Anstieg des Stoffüberganges für Hochfrequenz- und Amplitudenschwingungen festgestellt.

Die Aufgabe von niederfrequenten Schwingungen auf verfahrenstechnische Systeme ist bekannt bei der Gegenstromführung von zwei nicht mischbaren Flüssigkeiten in der kontinuierlichen Extraktion, wobei die oszillierenden Bewegungen durch Kolbenpumpen, vibrierende Membranen oder Siebböden erzeugt werden [73].

Es werden die Vorteile in der sehr guten Stoffübertragung und im hohen spezifischen Durchsatz gesehen, während als Nachteil der größere Aufwand im Vergleich zu Extraktoren mit rotierenden Einbauten und die Eignung nur für kleine Apparatedurchmesser hervorgehoben werden. Für Gas-Flüssigkeitssysteme beschrieb Brauer [74] den Hubstrahlreaktor als Gasdispergiermaschine, die für den Sauerstoffertrag ein Vielfaches dessen von Oberfächenbelüftern und der Turmbiologie leistet. Diese Maschine arbeitet mit im Apparat angeordneten Lochscheiben, die sich senkrecht mit einer Frequenz von 1Hz und einer Amplitude von 100 mm hin und her bewegen.

Zadorski und Shalakman [75] untersuchten Ventilböden von Kolonnen, bei denen man unter normalen Betriebsbedingungen spontane Vibration der Ventilklappen beobachten kann. Sie stellten fest, dass der Stoffaustauschkoeffizient an der Phasengrenze Gas-Flüssigkeit merklich von den Frequenzen und Amplituden der Schwingungen abhängt, und empfehlen für den Betrieb die Ventilfrequenz so zu wählen, dass sie nahe der Eigenfrequenz des Gas-Flüssigkeits-Systems liegt. Ostrovsky und Mitarbeiter [76] berichteten über Schwingungsapparate im Resonanzregime. Als wesentlicher Vorteil gegenüber Schwingungen im Nichtresonanzregime wird die Verringerung des Energieaufwandes um eine Zehnerpotenz hervorgehoben. Außerdem vereinfacht sich die Konstruktion der Energieübertragung am effektivsten mit Schwingungen. Bei hohen Frequenzen (bis zur Größenordnung einiger 10 Hz) verlaufen die Prozesse der Masse- und Energieübertragung am effektivsten. Es wurden als Modell zwei Kolonnen betrachtet, wobei eine Kolonne mit Wasser gefüllt war und die andere Kolonne am Boden ein Gaspolster hatte, das durch einen elastischen Körper von der Flüssigkeit getrennt war. Beide Flüssigkeiten wurden mit einem Pulsator seitlich periodisch bewegt.

Im ersten Fall wurde für ein Beispiel mit einer Wasserhöhe von 1 m eine Eigenfrequenz bzw. Resonanzfrequenz von $f_R = 400$ Hz berechnet. Eine gezielte Veränderung der Resonanzfrequenz kann dadurch erfolgen, dass elastische Glieder, z B. in Form von Luftpolstern, geschaffen werden. Flüssigkeit und Gas bilden somit ein völlig neues schwingungsfähiges System. Die Eigenfrequenz liegt bei einigen Hertz. Für die Experimente wurde eine Versuchseinrichtung genutzt. Es wurden verschiedene Versuche zur Beschreibung des Resonanzverhaltens durchgeführt. Dabei wurde festgestellt, dass die Eigenfrequenz des schwingungsfähigen Systems vom Luft- und Wasservolumen abhängig ist und nach folgender Gleichung berechnet werden kann:

$$f_{R} \approx \frac{1}{2\pi} \left(\frac{P^{*} + \rho_{L} gh_{L}}{\rho_{L} h_{L} V / A_{S}} \right) Q_{5}$$
(3.1)

/ ...

Für die Bestimmung der Stoffübergangskoeffizienten in Gas-Flüssigkeitssystemen wurde Natriumsulfit oxidiert und eine zehnfache Erhöhung des Stoffdurchganges im Resonanzregime festgestellt.

Die technische Nutzung von Resonanzschwingungen in der Verfahrenstechnik ist eine sehr anspruchsvolle Aufgabe. Eine systematische und sachkundige Entwicklung dieser neuen Technik besitzt ein sehr hohes innovatives und ökonomisches Potential [114].

Hatami [77] beschäftigte sich mit dem Flüssig-Gas-System. Sein Ziel war es, die Reaktionszeiten in Blasensäulen durch Schwingungen zu verkürzen. Für seine Untersuchungen nutzte er eine Blasensäule mit mehreren Siebböden. Der mechanische Erreger war ein stufenlos regelbarer Hydraulikmotor, der unterhalb des Siebbodens eine kreisförmige Platte drehte. Mit den aufgebrachten Schwingungen war es möglich, die Reaktionszeit in einem chemischen Reaktor zu verkürzen.

Ostrovsky und Mitarbeiter [76] führten experimentelle Untersuchungen am Blasenverhalten in Flüssigkeitssäulen durch. Sie beobachteten, dass sich die Blasen unter Aufbringung von Schwingungen im Resonanzregime einander annähern und zum Teil vereinigen. Außerdem stellen sie eine Verlangsamung der Aufstiegsgeschwindigkeit fest, die auch negative Werte annahm.

Keiji Yasuda et. al. [115] führten Versuche an Schlaufenreaktoren und Blasensäulen durch. Ihr Ziel war eine Erhöhung der Reaktionsgeschwindigkeit. Als Schwingungserreger benutzte er Ultraschallwellen mit 510 kHz. Er hat festgestellt, dass durch Verkleinerung der Blasengröße primär die Mischungszeit verkürzt und dadurch auch die Reaktionsgeschwindigkeit im Gas-Flüssigkeitsgemisch gesteigert werden kann.

Nach Forner und Großer [116] konnte bei kleineren Frequenzen als 5 Hz keine Steigerung des Stoffübergangs nachgewiesen werden, während bei höheren Frequenzen und Amplituden der Schwingung die übergehende Stoffmenge ansteigt.

Über ein Ionenaustauschersystem mit Schwingungen berichtete Mak [78]. In einer pulsierten Packungskolonne wurde der Stofftransport zwischen Kationenaustauscherpartikeln, die in der Kolonne nach unten rieseln, und einer im Gegenstrom geführten Kaliumhydroxidlösung untersucht. Die Schwingungen wurden in der die Flüssigkeit zuführenden Rohrleitung erzeugt. Der Frequenzbereich lag zwischen 0 und 2,4 Hz bei Kolbenhüben von 0 bis 15 mm. Es wurde festgestellt, dass durch Schwingungen der Flüssigkeit die Dispersion der Feststoffpartikel verbessert wird und damit auch der Stoffübergangskoeffizient.

Aboukhres [79] beschäftigte sich mit dem Einfluss niederfrequenter Fluidschwingungen auf die Nickelentfernung aus Prozesswasser. Er untersuchte das hydraulische Verhalten von durchströmten lonenaustauscherharzschichten bei Aufgabe von Schwingungen auf das Fluid. Insbesondere wurde die Resonanzfrequenz theoretisch und experimentell bestimmt. Für die Bestimmung der Resonanzfrequenz f_k in einem

27

Rohr - in – Rohr - System mit durchströmter Ionenaustauscherharzschicht wurde die Gleichung nach [79] abgeleitet:

$$f_{R} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{2g}{h_{W}} + \frac{P_{i} - \rho_{L} gh}{\rho_{L} h_{W} h_{G}}}$$
(3.2)

Die Schwingungserregung der Flüssigkeitssäule erfolgte durch eine Kolbenpumpe im Bereich von ca. 0,3 bis 4 Hz.

Die experimentellen Untersuchungen zur Stoffübertragung wurden mit Nickelnitratiösung Wofatit Ca 20 der Chemie AG Bitterfeld durchgeführt.

Es wurde durch den Einfluss von Schwingungen eine Erhöhung der nutzbaren Kapazität des Ionenaustauschers bis etwa 78 % erreicht.

Ebenfalls Usui [80] beschäftigte sich mit pulsierenden Flüssigkeiten in einem Festbett. In dieser Studie werden Effekte des Stofftransportes an Eisenteilchen dargelegt, welche bei metallischen Überzügen, z.B. Kupfer, Nickel, Chrom, von Bedeutung für die Industrie sind. Packungsmaterialien waren kugelförmige und kubische Eisenteilchen mit sehr unterschiedlichen Größen. Die Schwingung wurde mit einem Kolben aufgegeben, wobei verschiedene Geschwindigkeiten realisiert wurden.

Es konnte festgestellt werden, dass der Stoffübergangskoeffizient bei kubischen Teilchen besser war als bei kugelförmigen. Das kann darauf zurückgeführt werden, dass kubische Teilchen eine größere Oberfläche und damit eine größere Phasengrenzfläche aufweisen.

Iskakow [81] berichtete, dass die Intensivierung des Stofftransportprozesses im allgemeinen durch ein turbulentes Regime zustande kommt.

Das Problem des Stoffaustausches zwischen einer turbulenten flüssigen Phase und einer festen Phase sowie die Frage der Korrelation von Stoffübergangskoeffizient und pulsierender Flüssigkeit wurde auf der Basis von Spektralanalysen diskutiert. Es wurde gezeigt, dass die Schwingungen der Flüssigkeit keinen Einfluss auf die Reynold-Zahl, aber die Frequenz der Schwingungen einen starken Einfluss auf die Schmidt-Zahl hat.

Zusammenfassend lässt sich zum Einfluss von Schwingungen auf Stoffaustauschprozesse aus der Fachliteratur resümieren:

- durch das Aufbringen von Schwingungen auf Stoffaustauschprozesse kann sowohl der Stoffaustausch intensiviert werden.
- wenn diese Schwingungen im Bereich der Resonanzfrequenz erfolgt, kann mit erheblichen Energieeinsparungen gerechnet werden.

Die Literaturschau macht aber auch deutlich, dass für Stoffaustauschprozesse im Zusammenhang mit extern aufgebrachter Schwingungen eine Reihe von fachlichen Problemen zu klären ist, die eine industrielle Anwendung dieser Prozesse wirtschaftlich vertretbar machen. Dazu gehören z.B. Fragen nach dem Verhalten des Stoffübergangskoeffizienten in Abhängigkeit von der Gasleerrohrgeschwindigkeit, vom Gasanteil in der Flüssigkeit, von den geometrischen Abmessungen der eingesetzten Schwingungsapparate oder auch von der Positionierung des Schwingers am verwendeten Apparat.

In der vorliegenden Arbeit wird der Versuch unternommen, einige dieser Fragen zu klären, wobei aus Gründen einer günstigen industriellen Nutzung mit möglichst niedrigen Resonanzschwingungen gearbeitet werden soll.

3.2 Berechnung der Resonanzfrequenz

Untersuchungsgegenstand dieser Arbeit ist eine in Resonanzschwingungen versetzte Blasensäule. Das Gemisch besteht aus Wasser und Luft. In diesem Abschnitt sollen kurz die theoretischen Grundlagen dargelegt werden, wie ein solcher Zustand realisiert werden konnte und welche wichtigen Effekte sich durch die Schwingungen ergeben. Die Resonanzfrequenz einer Wassersäule lässt sich mit Beziehungen, die aus der Akustik stammen, herleiten. Für eine Blasensäule nach [76] gilt:

$$fR = \frac{(2k-1)a}{4 \cdot h_W}$$
(3.3)

k = 1,2,3... Nummer der entsprechenden Grund- oder Oberschwingungen

Für eine einen Meter hohe reine Wassersäule würde sich, für die Grundschwingung unter Normalbedingungen , eine Resonanzfrequenz von f_R =375 Hz mit a=1500 m/s und k=1 ergeben. Technisch ist dies nur mit Mühe umzusetzen.

Handelt es sich dagegen um ein Flüssigkeit - Gas - Gemisch, so ändert sich diese Frequenz radikal. Der Hauptgrund dafür, ist die stark veränderte Schallgeschwindigkeit. Für polytrope Zustandsänderungen ergibt sich die Schallgeschwindigkeit nach [76] wie folgt:

$$a = \sqrt{\frac{n \cdot p}{(\rho_W (1 - \phi_G) + \rho_G \cdot \phi_G) \cdot \phi_G)}}$$
(3.4)

Zur Abhängigkeit von der Art der Zustandsänderung (z. B. isotherm und adiabat) Ist der entsprechende Polytropenexponent zu verwenden.

Eine exakte Bestimmung des Exponenten wurde aber nicht vorgenommen. Für die vorliegende Arbeit ist auch nicht mehr als ein Näherungswert notwendig.

Wird die Gemischschallgeschwindigkeit in Gleichung (3.3) eingesetzt, so ergibt sich die Resonanzfrequenz einer Blasensäule.

Den Verlauf der Schallgeschwindigkeit in Abhängigkeit vom Gasgehalt zeigt Abb.3.1 die resultierende Resonanzfrequenz sinkt somit auf wenige Hertz. Eine einfache technische Umsetzung wird möglich.





Nach Ostrovsky [76, 113] befindet sich bei der praktischen Anwendung der Schwingungen der günstigste Energieeintrag im Resonanzbereich. Dabei sollte die Schwingungsfrequenz, die durch eine äußere Kraft eingebracht wird, mit der Eigenschwingungsfrequenz des Zweiphasengemisches übereinstimmen.

Als grundlegende Basis der experimentellen Untersuchungen, wurden die spezifischen Eigenschwingungsfrequenzen des Zweiphasengemisches, im folgenden kurz benannt als Resonanzfrequenz, bei Veränderung der Phasenanteile für die Versuchsanlage ermittelt.

Somit ergeben sich folgende Berechnungen für Wasserhöhen von $h_W = 1,5$ m bis 4,5 m und integralen Gasgehalt von $\phi_G = ca. 0,05$ bis 0,2. Mit der Zusammensetzung des Zweiphasengemisches aus Wasser und Luft folgt unter den Angaben:

Umgebungsdruck $p = 10^5$ Pa

$$h_{Ges} = h_w + h_G \tag{3.5}$$

beziehungsweise:

$$V_{Ges} = V_W + V_G \tag{3.6}$$

Mit den Volumina:

$$V_{\rm W} = A \cdot h_{\rm W} \tag{3.7}$$

und:

$$V_{\rm G} = A \cdot h_{\rm G} \tag{3.8}$$

Mit dem inneren Durchmesser der Blasensäule:

d = 0,08m

und
$$A = \frac{\mathbf{p}}{4} d^2$$
(3.9)

ergibt sich eine Grundfläche von: A = $5,03 \cdot 10^{-3} \text{ m}^2$ Der integrale Gasgehalt ϕ_G im Gemisch ergibt sich aus:

$$\phi_{\rm G} = \frac{V_{\rm G}}{V_{\rm Ges}} \tag{3.10}$$

beziehungsweise:

$$\varphi_{\rm G} = \frac{h_{\rm G}}{h_{\rm Ges}} = \frac{h_{\rm Ges} - h_{\rm W}}{h_{\rm Ges}}$$
(3.11)

Der Volumenanteil der Flüssigkeit lässt sich mit folgender Gleichung berechnen:

$$\varphi_{W} = \frac{hW}{hGes} = \frac{hGes - hG}{hGes}$$
(3.12)

Für die Schallgeschwindigkeit im Gemisch gilt Gleichung (3.4). Wegen $\rho_W >> \rho_G$ lässt sich die Gleichung (3.4) vereinfachen zu:

$$a = \sqrt{n \frac{P}{\rho_W \ \phi_G \ (1 - \phi_G)}} \tag{3.13}$$

Daraus folgt für den isentropen Zustand mit n = 1,4

$$a_{k} = \sqrt{1,4 \frac{P}{\rho_{W} \phi_{G} (1 - \phi_{G})}}$$
(3.14)

und für den isothermen Fall mit n = 1:

$$a_{t} = \sqrt{\frac{P}{\rho_{W} \phi_{G} (1 - \phi_{G})}}$$
 (3.15)

Die Resonanzfrequenz des Wasser - Luft - Gemisches ergibt sich nach [76] entsprechend Gleichung (3.3) für den isentropen Zustand:

$$f_{Rk} = k \frac{a_k}{4 \text{ hGes}}$$
(3.16)

und für den isothermen Fall aus:

$$f_{\rm RT} = k \frac{a_t}{4 \, h_{\rm Ges}} \tag{3.17}$$

Nach der Berechnung der Eigenschwingungsfrequenz des Zweiphasengemisches, muss diese als Umformerfrequenz für den Erreger beziehungsweise für die Hubkolbenpumpe in folgender Weise berechnet werden:

 $f_E = 15 \cdot f_{Rk}$ beziehungsweise $f_E = 15 \cdot f_{RT}$

Aus den dargelegten Berechnungen folgende Ergebnisse sind in Tabelle 1 und 2 zusammengefasst, und die Ergebnisse der experimentellen Untersuchungen sind in Tabellen 3 und 4 dargestellt (s. Anhang CD Beilage).
4. Experimentelle Untersuchungen

4.1 Aufbau der Versuchsanlage

Für die Untersuchungen zum Schwingungs- und Resonanzverhalten sowie Stoffaustauschprozess wurde eine Versuchsanlage aufgebaut. In der Abbildung 4.1 ist das Schema und in der Abbildung 4.2 das Foto der Versuchsanlage dargestellt:



Abb.4.1: Aufbau der Versuchsapparatur

- 1. Antriebsumrichter
- 2. Hubeinstellung
- 3. Schwingungserreger
- 4. Ablassventil
- 5. Siebboden
- 6. Blasensäule
- 7. Rotameter

- 8. T-Stück
- 9. N₂-Ventil
- 10. Druckluftventil
- 11. Sauerstoffelektrode
- 12. Wasserventil
- 13. PVC-Kolonne

4.1.1 Funktionsweise und Betrieb

Die Versuchsanlage besteht aus einem nach oben hin offenen Rohr aus durchsichtigem Kunststoff. Die Blasensäule (6) hat eine Gesamtlänge von H = 5 m, einen Außendurchmesser von 0,090 m und einen Innendurchmesser von 0,081 m. Die Sauerstoffelektrode (11) ist an der Wand der Säule befestigt. Über ein Ventil (9) wird zuerst Stickstoff eingeleitet, um "sauerstofffreies" Wasser zu erhalten. Danach wird über ein anderes Ventil (10) das gewünschte Gemisch durch Zugabe von Luft eingestellt. Die Menge wird über ein Rotameter (7) vor der Säule eingestellt und die Verteilung der Luft über einen Siebboden (5) erreicht. Die Gemischhöhe kann durch eine Längenskala an der Säule abgelesen werden. Die Schwingung wird mit einer Hubkolbenpumpe als Schwingungserreger (3) erzeugt und auf das schwingungsfähige System übertragen. Der Kolbenhub wird manuell direkt an der Pumpe eingestellt (2) , wodurch die Amplitude der Erregerschwingung verändert wird. Die Frequenz des Kolbenhubes wird über den Motor (1) gesteuert und somit die Frequenz der Erregerschwingung eingestellt.



Abb. 4.2 Darstellung der Versuchsanlage.

- 1.) gefüllte Blasensäule mit einem beleuchteten Segment
- 2.) Schwingungserreger (Hubkolbenpumpe mit E-Motor), Steuerelektronik

4.2 Ermittlung der Resonanzfrequenz und Amplitude der Blasensäule in Abhängigkeit von der Wasserhöhe und dem integralen Gasgehalt **j** _G

Die Untersuchungen wurden mit Wasserhöhen von 1,5 bis 4,5 m und integralen Gasgehalt φ_G von ca. 0,05 bis 0,2 durchgeführt. Um den Resonanzbereich zu finden, wurde die Erregerfrequenz systematisch verändert. Parallel dazu erfolgte die Ermittlung der Amplitude der Blasensäule.

Aus den aufgenommenen Messwerten lassen sich wesentliche Schlussfolgerungen ziehen. Die theoretischen Betrachtungen können mit den Ergebnissen bestätigt werden. Dazu lassen sich die resultierenden Beziehungen empirisch wie folgt darstellen. Eine wesentliche Einflussgröße auf die Resonanzfrequenz des Luft–Wasser–Gemisches stellt der integrale Gasgehalt ϕ_G dar. Die Resonanzfrequenz verringert sich mit zunehmenden integralen Gasgehalt ϕ_G und es folgt:

$$f_R \sim \frac{1}{\phi_G} \quad \text{für} \quad \phi_G \le 0,5$$
 (4.1)

als auch durch Vergrößerung der Wassersäule mit:

$$f_R \sim \frac{1}{h_W}$$
 (4.2)

Durch den Zusammenhang von ϕ_G und h_W ergibt sich somit:

$$f_R \sim \frac{1}{h_{Ges}}$$
 (4.3)

Berücksichtigt man Gleichung (3.4), folgen daraus für die Schallgeschwindigkeit:

$$a \sim \frac{1}{\phi_G}$$
 für $\phi_G \le 0.5$ (4.4)

Im folgenden sind einzelne Beispiele hervorgehoben.

Zur Verdeutlichung der Beeinflussung der Resonanzfrequenz durch den Flüssigkeitsanteil sind in Abbildung 4.3 für das Beispiel bei einem integralen Gasgehalt $\varphi_G = 0,05$ die Resonanzfrequenzen gegen verschiedene Höhen der Wassersäule aufgetragen.



Abb.4.3: Entwicklung der Resonanzfrequenz f_R bei einem integralen Gasgehalt $\phi_G = 0,05$

In Abbildung 4.4 ist die Beziehung zwischen der Resonanzfrequenz und dem integralen Gasgehalt φ_G im Flüssigkeits-Gas-Gemisch dargestellt. Dieses Beispiel bezieht sich auf eine Höhe der Wassersäule von h_W = 3,0 m.



Abb.4.4: Entwicklung der Resonanzfrequenz für Höhe der Wassersäule $h_W = 3,0$ m

Um den Resonanzbereich besser zu erkennen, ist in der Abbildung 4.5 die vertikale Auslenkung der Gemischoberfläche dargestellt. Die Untersuchungen wurden für eine Höhe der Wassersäule $h_W = 4,0$ und integralen Gasgehalt $\phi_G = 0,075$ durchgeführt.



Abb.4.5: Zusammenhang von Frequenz f und Amplitude der Blasensäule

Ziel der experimentellen Untersuchungen war der Ermittlung der Resonanzschwingungsbereiche sowie ihrer Abhängigkeit von der Wasserhöhe und dem integralen Gasgehalt.

Die Untersuchungen wurden mit Wasserhöhen von 1,5 bis 4,5 Meter und einem integralen Gasgehalt von ca. 5% bis 20% durchgeführt. Dabei wurden die experimentell ermittelten und die theoretisch berechneten Resonanzfrequenzen bei isothermen und isentropen Zustandsänderungen berücksichtigt. Die experimentell ermittelte Resonanzfrequenz befindet sich nahezu vollständig in Übereinstimmung mit den theoretisch ermittelten Werten, wobei mit Zunahme der Wasserhöhen und des Gasanteiles die Resonanzfrequenzen abnehmen.

Weiterhin lassen sich aus den Beobachtungen zu Blasengröße und Blasenbewegung bestimmte Feststellungen treffen. Durch die Anwendung von Resonanzschwingungen wurde ein Effekt auf das Blasenspektrum festgestellt. Die Blasen wurden über die Lochplatte gleichmäßig verteilt und blieben so über der Säulenhöhe, das heißt bei Resonanzschwingung wurden die Blasen nicht in der Mitte der Säule zentriert, sondern sie blieben über den Querschnitt gleichmäßig verteilt ohne Blasenkoaleszenz zu bilden.

Die Resonanzschwingung führt zu einer höheren Flüssigkeitsturbulenz und dadurch zu einem Blasenzerfall.

4.3 Ermittlung und quantitative Erfassung der Charakteristik der Sauerstoff - Elektrode

Durch Transport- und Diffusionswiderstände an der Sauerstoffelektrodenmembran, im Elektrolyten und der Grenzschicht kommt es zu einer Verzögerung der Anzeige C_E gegenüber der Flüssigkeitskonzentration C_L .



Abb.4.6 Zeitliches Verhalten der Anzeige der Sauerstoffelektrode im mit Luftsauerstoff gesättigten Wasser

Für die Ermittlung des Zeitverhaltens der Sauerstoffelektrode wurde zuerst durch Begasen der Flüssigkeit (Wasser) im Messbehälter mit Stickstoff die Sauerstoffkonzentration auf annähernd Null abgesenkt, und dann wurde die Sauerstoffelektrode schnell in die mit Luftsauerstoff gesättigte und ständig mit Luft begaste Flüssigkeit eingesetzt. Gleichzeitig wurde die zeitliche Änderung des Messwertes C_E der Elektrode in der mit Sauerstoff gesättigten Flüssigkeit registriert. Aus den Versuchen ergibt sich, dass das zeitliche Verhalten der Elektrode für C_L^* = konstant sehr gut beschrieben werden kann mit der Gleichung:

$$C_{E} = C_{L}^{*} \left(1 - \exp(-\frac{t}{t_{E}}) \right)^{n}$$
(4.5)

Durch optimale Anpassung des mit GI. (4.5) berechneten Konzentrations-Zeit-Verlaufes für den gelösten Sauerstoff an die gemessenen Konzentrations-Zeit-Werte lassen sich die Konstanten t_E und n bestimmen.

Die beste Anpassung an die Versuchsergebnisse gelingt mit den Parametern $t_E = 4,8098$ Sekunden und n = 2,7585.

Die Abbildung 4.6 zeigt den angezeigten und den gerechneten (Degressionsgleichung) Messwert des Sauerstoffgehaltes in O₂-gesättigtem Wasser.

Der Elektrodenversuch für C_L^* =konstant kann folgendermaßen interpretiert werden: Durch Umformung von Gleichung (4.5) folgt

$$\frac{C_{L}^{*} - C_{E}}{C_{L}^{*}} = 1 - \left(1 - \exp(-\frac{t}{t_{E}})\right)^{n}$$
(4.6)

sowie

$$\exp\left(-\frac{t}{t_{\rm E}}\right) = 1 - \left(\frac{C_{\rm E}}{C_{\rm L}^{\star}}\right)^{\frac{1}{n}}$$
(4.7)

Durch Differentiation von Gleichung (4.7) nach t folgt daraus:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{C_{E}}{C_{L}^{*}} \right) = \frac{n}{t_{E}} \left(\left(\frac{C_{E}}{C_{L}^{*}} \right)^{n-1} - \left(\frac{C_{E}}{C_{L}^{*}} \right) \right)$$
(4.8)

Für n=1 folgt daraus :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{C_{E}}{C_{L}^{\star}} \right) = \frac{1}{t_{E}} \left(1 - \frac{C_{E}}{C_{L}^{\star}} \right)$$
(4.9)

Sowie :

$$\frac{\partial C_{E}}{\partial t} = \frac{(C_{L}^{*} - C_{E})}{t_{E}}$$
(4.10)

Wird in Gleichung (4.10) C_L^* = konstant ersetzt durch $C_L = C_L$ (t) ergibt sich die Gleichung (4.11)

$$\frac{\partial C_{E}}{\partial t} = C_{L} \quad \left(\frac{\left(1 - \frac{C_{E}}{C_{L}}\right)}{t_{E}} \right) = \frac{C_{L} - C_{E}}{t_{E}}$$
(4.11)

Die mit n=1 und $\ddagger=8,7$ (s) erzielbare optimierte Anpassung der Versuchswerte an GI. (4.5) ist lediglich als befriedigend zu bezeichnen.

Die Gleichung (4.10) wird häufig u.a. auch von Yu [85] benutzt, um die Elektrodenkonstante \mathbf{t} zu bestimmen, während mit Gleichung (4.11) die zeitabhängige Flüssigkeitskonzentration in die Elektrodenmesswerte C_E umgerechnet werden.

Wird in Gleichung (4.8) C_L^* = konstant ersetzt durch $C_L = C_L$ (t), kann eine gegenüber Gl. (4.10) verbesserte Näherung erhalten werden.

Es ergibt sich dann analog zu Gleichung (4.11) die Gleichung (4.12) wie folgt :

$$\frac{\partial C_E}{\partial t} = \frac{\partial C_L}{\partial t} \cdot \frac{C_E}{C_L} + \frac{n \cdot C_L}{t_E} \left(\left(\frac{C_E}{C_L} \right)^{\frac{n-1}{n}} - \left(\frac{C_E}{C_L} \right) \right)$$
(4.12)

Die Gleichung (4.12) kann so interpretiert werden, dass der zeitliche Anstieg des Messwertes C_E um so stärker ist, je größer die Differenz zwischen C_L und C_E , bzw. je kleiner der Quotient C_E / C_L und je höher C_L ist, und der zeitlichen Veränderung von C_L um so schneller folgt, je höher die Aktivierung der Sauerstoffelektrode, also der Quotient C_E / C_L ist.

4.4 Untersuchungen des Blasenregimes (Anzahl, Verteilung, Größen) ohne und mit Resonanzschwingungen

4.4.1 Zur Methodik der Informationsgewinnung

4.4.2 Die Bilderzeugung

Eine der wesentlichen Aufgaben der Arbeit bestand darin, die Blasen strukturell zu erfassen. Auf der höchsten Abstraktionsstufe bedeutet das, ihre Abmessungen zu ermitteln. Dies läßt sich auf sehr vielfältigen Wegen bewerkstelligen. Das Spektrum reicht dabei von einfacher Messung mittels Lineal auf einer fotographischen Aufnahme oder der Auszählung von Kästchen in einem über das Foto gelegten Raster, über die Nutzung von Leitfähigkeitssonden bis hin zur Anwendung der Phasen-Doppler-Anemometrie. Die Kriterien, die für die Auswahl des zweckmäßigsten Verfahrens die von Bedeutung waren, sind in erster Linie:

- Umfang der messtechnischen Aufgabenstellung (Größe der Messreihe)
- erforderliche Genauigkeit
- Größe der finanziellen Ressourcen
- arbeitszeitliche Gegebenheiten

Nach Prüfung der technischen Gegebenheiten wurde klar, dass die Untersuchungen auf abbildenden Verfahren basieren sollten. Dabei wurden fotografische Aufnahmen erstellt, entwickelt und abgezogen. Diese Papierbilder wurden dann gescannt, um sie im Computer auswerten zu können. Andererseits bestand die Möglichkeit, mit einer direkt an einen Computer angeschlossenen, digitalen Videokamera Bilderfolgen aufzunehmen. Die Planungen sahen dabei vor, mit dem Fotoapparat einzelne möglichst genaue (scharfkantige) Abbildungen zu erzeugen, welche die Grundlage der späteren Vermessung bilden sollten. Die Vermessung der Blasen wurde in einem zweiten Arbeitsschritt mit Hilfe der Computertechnik bewerkstelligt werden. Es zeigte sich dabei schon frühzeitig, dass dazu die Software OPTIMAS der Firma Media Cybernetics, L.P. am geeignetsten war.

Die bedeutsamste Fragestellung bei der Erzeugung von fotografischen Aufnahmen, ist die Bereitstellung einer hochwertigen Beleuchtung. Aus diesem Grund wurde vor Beginn der Versuche eine kurze Testserie an Fotos produziert. Damit sollte festgestellt werden, durch welche Konstellation der Beleuchtung die kontrastreichsten Bilder erreicht werden können. Geprüft wurden:

- die erforderliche Helligkeit
- die Positionierung der Leuchten um die Blasensäule herum
- verschiedene Hintergründe
- Einstrahlungswinkel

Es stellte sich dabei heraus, dass die besten Resultate unter Nutzung von Gegenlicht erzielt werden konnten. Die Bilder 4.7 und 4.8 zeigen dies sehr deutlich.



Bild 4.7 Testaufnahme bei Gegenlicht

Während bei 4.8 mit einem schwarzen Hintergrund und Auflicht gearbeitet wurde, kam bei 4.7 eine Gegenlichtbeleuchtung zum Einsatz.

Bei Gegenlicht sind die Blasen dunkel umrandet und heben sich somit gut vom hellen Hintergrund (Beleuchtung selbst) ab. Bei Auflicht ist dies genau umgekehrt, was nicht automatisch negativ zu bewerten ist. Der Nachteil dabei liegt aber darin, dass die Unterscheidung einzelner Blasen so erschwert wird. Zum anderen ist bei Auflicht der Farbunterschied zwischen Blase und Hintergrund kleiner.



Bild 4.8 Testaufnahme bei Belichtung der Vorderseite und einem dunklen Hintergrund

Die Auswahl fiel somit auf eine Gegenlichtbeleuchtung. Die Frage des richtigen Hintergrundes ist deshalb, unter Berücksichtigung der erforderlichen Qualität, von minderer Wichtigkeit.

Auch die Frage nach dem günstigsten Lichteinfallswinkel sollte durch die Anwendung von Gegenlicht geklärt sein. Kamera, Blasensäule und Lichtquelle liegen dabei auf einer Linie. Da aber die vorhandene Technik eine solche Konstellation nicht ermöglichte, wurde eine etwas andere Anordnung realisiert (s.Abb. 4.9).



Abb. 4.9 Anordnung der Beleuchtung

Die Beleuchtung wurde also, in der dargestellten Anordnung, mit linienförmig angeordneten Leuchten durchgeführt. Die Lichtintensität war dabei stufenlos einstellbar. Genutzt wurden ca. 80 % der verfügbaren Leistung. Für das Fotografieren der Blasen gibt es verschiedene Variationsmöglichkeiten, bei deren Anwendung folgende Kriterien zugrunde gelegt wurden:

- Belichtungszeit
- Anwendung von Filter
- Erforderliche Ausrüstung

Der erste Untersuchungsgegenstand war die Belichtungszeit. Entsprechend der Möglichkeiten der Kamera wurden Variationen bei $t = 500 \cdot \frac{1}{s}$ sowie $t = 1000 \cdot \frac{1}{s}$ getestet. Die Ergebnisse zeigen eindeutig, dass eine kürzere Belichtungszeit wesentlich schärfere Aufnahmen ermöglicht als eine längere. Der Unterschied ist sogar so groß, dass Fotos mit $t = 500 \cdot \frac{1}{s}$ keine Auswertung zulassen. Bei $t = 1000 \cdot \frac{1}{s}$ hingegen ist eine Verbesserung der Abbildungsgenauigkeit (bezogen auf die Belichtungszeit) kaum noch denkbar. Es ist dabei allerdings noch zu bemerken, dass eine kürzere Aufnahmezeit auch eine intensivere Beleuchtung notwendig macht. Der verwendeten Lichttechnik bereitete dieser Bedarf allerdings keine Probleme.

Bezüglich der Verbesserung der Aufnahmen durch Filtertechnik wurden Versuche mit UV-Filtern und Polarisationsfiltern durchgeführt. Beide Techniken brachten jedoch eine Reihe von Nachteilen für die Qualität der Bilder, so dass auf die Anwendung von Filtern verzichtet wurde.

Die Versuche wurden durchgeführt mit einer Wassersäulenhöhe von 2,5 m und mit einer Gasleerrohrgeschwindigkeit von 0,01 und 0,03 m/s ohne und mit Resonanzschwingungen. Fotoaufnahmen wurden gemacht an den Höhen über der Lochplatte 1,6 m, 2 m und 2,4 m ohne und mit Resonanzschwingungen.

Dabei wurden die Konturen der Blasensäule und die Blasen selbst schwarz gefärbt, während die Flüssigkeit weiß gelassen wurde. Mit Hilfe des Softwareprogramms "Optimas" wurde dann die Bildauswertung vorgenommen, indem die Anzahl der Blasen und die Blasenflächen ausgezählt bzw. berechnet wurden.

Die Ergebnisse sind in Abschnitt 6.3 dargestellt.

4.5 Untersuchungen zum Stoffaustausch im System Wasser – Luft ohne und mit Resonanzschwingungen

4.5.1 Bestimmung des $k_L a$ - Wertes mit der dynamischen Methode

4.5.2 Messung des Konzentrations-Zeit-Verlaufes des Sauerstoffes im Wasser

Das Prinzip der dynamischen Messung von volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ beruht darauf, dass die Flüssigphase absatzweise vorgelegt und darin die zeitliche Änderung der Sauerstoffkonzentration bei sprunghafter Änderung der Gaszusammensetzung registriert wird. Dieser Sprung ist der Übergang von Stickstoff- auf Luftbegasung [39,40].

Durch Begasen mit Stickstoff wird zuerst der Sauerstoff aus der Suspension verdrängt, bis die Gelöst-Sauerstoffkonzentration in der Flüssigphase auf Null abgesunken ist. Anschließend wird schlagartig auf Begasung mit Luft umgestellt und gleichzeitig mit der polarografischen Sauerstoffelektrode die zeitliche Änderung der Konzentration an gelöstem Sauerstoff in der flüssigen Phase gemessen und registriert.

Die Versuche zu Messungen des Konzentrations- Zeit- Verlaufes mit der dynamischen Messung ohne und mit Resonanzschwingungen wurden mit einer Wasserhöhe $h_W = 2,5$ konstant und mit der Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} von 0,01 m/s bis 0,06 m/s durchgeführt.

Gleichzeitig wurde im Interesse einer besseren Analyse des Stoffaustauschprozesses die Veränderung des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ an verschiedenen Messhöhen von 0,8 m,1,2 m,1,6 m und 2 m über der Lochplatte aufgenommen

Alle Versuche haben gezeigt, dass unter Anwendung der Resonanzschwingungen die Sauerstoffaufnahme in der Flüssigkeit beschleunigt wird, so dass eine Verbesserung der Stoffaustauschprozesse bzw. eine Erhöhung des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ in der Blasensäule festzustellen ist. Die Abbildung 4.10 zeigt einen typischen Konzentrations-Zeit-Verlauf der Sauerstoffkonzentration im Wasser bei der dynamischen Messung ohne und mit Resonanzschwingungen für Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,05$ m/s (Messhöhe =0,8 m)



Abb. 4.10 Zeitlicher Verlauf der Gelöst-Sauerstoffkonzentration nach Beginn der Luftbegasung ohne und mit Resonanzschwingungen für die Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,05$ m/s und die Messhöhe =0,8 m

Die Abbildung 4.10 zeigt, dass der zeitliche Konzentrationsverlauf des in der Flüssigkeit gelösten Sauerstoffs durch den Einfluss von Resonanzschwingung erheblich beschleunigt werden kann.

4.6 Bestimmung des integralen Gasgehaltes **j** _G

Parallel zum Stoffübergangsverhalten wurde der integrale Gasgehalt ϕ_G gemessen. Die Gemischhöhe konnte durch eine Längenskala an der Säule abgelesen werden. Nach Gleichung (3.10) (s. Abschnitt 3.2) wurde der integrale Gasgehalt ϕ_G aus dem Verhältnis von Gasvolumen V_G und Gesamtfüllvolumen V_{Ges} im begasten Zustand ermittelt.

5 Auswertung der Versuchsergebnisse

5.1 Auswertungsmethode

Die Versuchsauswertung erfolgte in den folgenden wesentlichen Schritten:

 Der Verlauf der Flüssigkeitskonzentration C_L und der Gaskonzentration C_G des Sauerstoffes wurden für den Mittelwert über die Säulenhöhe des k_La – Wertes durch numerische Lösung der partiellen Differentialgleichung in Abhängigkeit von Ort (Messhöhe) und Zeit (Messzeit an der Messhöhe) berechnet.

Für h=0 (tiefste Stelle der Wassersäule über der Lochplatte) und für h= W_{BA} . t (Front der aufsteigenden Luftblasen) können C_L (t; h=0) bzw. C_G (h= W_{BA} . t) analytisch berechnet werden. Dadurch konnte das numerische Berechnungsverfahren für zwei Grenzfälle durch Vergleich mit den exakten Lösungen kontrolliert werden.

- Unter Berücksichtigung der Charakteristik der Sauerstoffelektrode (s. Abschnitt 4.3) wurden die Flüssigkeitskonzentrationen C_L (h, t) aus der Lösung der Differentialgleichung für die im Versuch festgelegten Höhen (0,8 ; 1,2 ; 1,6 ; 2,0 m) und Messzeiten (30 ; 60 ; 90 ; 120 ; 150 ; 180 Sekunden) in die (zeitlich nachlaufenden) Anzeigewerte C_E (h, t) der Sauerstoffelektrode C_E umgerechnet.
- Die so berechneten Messwerte C_E wurden mit den im Versuch gemessenen C_E – Werten verglichen und der k_La – Wert (als Mittelwert über die Höhe) mittels Variation durch Minimierung der Summe der Fehlerquadrate (C_{E Rechnung} - C_{E Messung})² für alle Messhöhen und Messzeiten des Versuches ermittelt (s. Abbildungen 5.1.a und 5.1.b)



Abb.5.1.a Vergleich der berechneten Messwerte C_E mit den im Versuch gemessenen C_E – Werten

Der Nachlauf von C_E (h=0,8m) gegenüber C_L (h=0,8m) ist in der Abbildung 5.1.b für den Zeitabschnitt 0 < t < 40 (s) nochmals verdeutlicht.



Abb. 5.1.b Vergleich der berechneten Messwerte C_E mit den im Versuch gemessenen C_E – Werten

- Zusätzlich wurde der Versuch unternommen, eine tendenzielle Änderung des $k_L a$ Wertes über die Höhe festzustellen, indem eine lineare Abhängigkeit des $k_L a$ Wertes von der Höhe angenommen wurde und Mittelwert und mittlerer Höhengradient von $k_L a$ wie vorher beschrieben bestimmt werden. Ein höherwertiger Ansatz für $k_L a = f(h)$ ist wegen der wenigen (vier) Messpunkte über die Höhe nicht sinnvoll.
- Jedem $k_L a$ Mittelwert für W_{SG} = konstant (mit bzw. ohne Resonanzschwingung) bzw. ($k_L a$, $\partial k_L a / \partial h$) liegen vier Messhöhen für sechs verschiedene Zeiten das heißt jeweils 24 Versuchspunkte zugrunde, wobei die Versuchspunkte die Mittelwerte aus 4 Einzelversuchen sind, d.h. 96 Messpunkte je $k_L a$ - Wert.
- Die Erhöhung des Flüssigkeitsspiegels in Abhängigkeit von der Gasleerrohrgeschwindigkeit der Luft und den aufgebrachten Resonanzschwingungen ist ein direkter Maßstab für den integralen Gasgehalt der gesamten Flüssigkeitssäule

- Die zeitlichen Schwankungen des Flüssigkeitsspiegels sind wegen der geringen Verformbarkeit der Säulenwandung der Inkompressibilität des Wassers, des bekannten Hubvolumens des Schwingerkolbens und der annähernden zeitlichen Konstanz des Gasstromes durch die Lochplatte ein Maß für die Schwingung der Gasblasen durch Volumenänderung bei gleichzeitiger Gestaltänderung bzw. Blasenzerfall. Eine Veränderung der Schwingungsintensität über die Höhe ließ sich messtechnisch nicht feststellen.
- Die Anlaufzeit der Luftblasenfront von der Lochplatte bis zur Messstelle $\left(t_h = \frac{h \cdot \phi_G}{W_{SG}}\right)$ wurde in der Berechnung berücksichtigt mit C_G=0 ; für t < t_h ;

5.2 Berechnung des theoretischen Sauerstoffkonzentration - Verlaufes in der flüssigen (C_L) und in der gasförmigen (C_G) Phase.

Für die Sauerstoffbilanz im Kontrollvolumen der Säule $\partial v_G = A_s \partial h$ über das Zeitintervall ∂t gilt :

$$\frac{\partial C_{L}}{\partial t} = (k \cdot C_{G} - C_{L}) \cdot k_{L} a$$
(5.1)

$$\frac{\partial C_{G}}{\partial h} = -\frac{A_{S} (1 - \varphi_{G})}{V_{G}} \cdot (k \cdot C_{G} - C_{L}) \cdot k_{L} a$$
(5.2)

oder

$$\frac{\partial C_{L}}{\partial t} = -\frac{V_{G}}{A_{S}(1-\phi_{G})} \cdot \frac{\partial C_{G}}{\partial h}$$
(5.3)

$$k = \frac{C_{L}^{*}}{C_{G}^{*}} \qquad \text{oder auch}$$

$$k = \frac{V_{M} \cdot \rho W \cdot p_{Ges}}{MW \cdot He}$$
(5.4)

Die Änderungen des Gasvolumenstromes durch Absorption bzw. Desorption (O₂/N₂) und der Gasdichte durch statische Druckhöhe und Druckverluste wurden vernachlässigt. Die Gleichungen (5.1 und 5.2) wurden numerisch gelöst nach dem Differenzverfahren, wobei gilt:

$$\mathbf{C}_{\mathsf{L}} \, \mathbf{k}, \mathbf{i} + \mathbf{1} = \mathbf{C}_{\mathsf{L}} \, \mathbf{i}, \mathbf{k} + \mathbf{k}_{\mathsf{L}} \mathbf{a} \left(\mathbf{k} \cdot \mathbf{C}_{\mathsf{G}} \, \mathbf{i}, \mathbf{k} - \mathbf{C}_{\mathsf{L}} \, \mathbf{i}, \mathbf{k} \right) \cdot \Delta \mathbf{t}$$
(5.5)

$$C_{G^{k+1,i}} = C_{G^{i,k}} - \frac{k_{L}a(1-\phi_{G})}{W_{SG}} \cdot (k \cdot C_{G^{i,k}} - C_{L^{i,k}}) \cdot \Delta h$$
(5.6)

Mit:
$$\frac{V_G}{A_S} = W_{SG}$$
 (m/s) Gasleerrohrgeschwindigkeit

 $k_L a$ wurde generell als von der Höhe (h) abhängig angenommen, da es mit wachsender Entfernung von der Lochplatte (h =0) zu einer Ungleichverteilung der Blasen über den Querschnitt der Säule (Zentrierung) und Veränderung der Phasengrenzfläche (Blasenkoalesenz) kommen kann.

Numerisch stabile Ergebnisse wurden nach Schrittweitenvariation sicher erreicht bei

$\Delta h = 0,01 (m)$		
$\Delta t = 0,1$	(s)	t≤ 20 (s)
$\Delta t = 0,5$	(s)	t>20 (s)

Als Gradmesser für die Genauigkeit der numerischen Näherungsrechnung kann ein zusätzlicher Vergleich mit der exakten analytischen Lösung für die beiden Extremfälle dienen (s. Abschnitt 6.2).

a.) h = 0; $C_G = C_G^* = konstant$.

b.)
$$t_h = \frac{h}{W_{BA}}$$
 $C_L = 0 = \text{konstant.}$,

$$W_{BA} = \frac{W_{SG}}{\phi_G}$$
 (m/s) Geschwindigkeit der Sauerstoffbeladenen (Luft)
Blasenfront

Im Fall (a) wird das Wasser über der Lochplatte stets von Frischluft durchströmt , so dass für Gleichung (5.1) h = 0 = konstant und $k_L a$ = konstant gilt:

$$\frac{\partial C_{L}}{\partial t} = \left(\mathbf{k} \cdot \mathbf{C}_{G}^{*} - \mathbf{C}_{L} \right) \cdot \mathbf{k}_{L} \mathbf{a} = \left(\mathbf{C}_{L}^{*} - \mathbf{C}_{L} \right) \cdot \mathbf{k}_{L} \mathbf{a}$$
(5.7)

Mit der Lösung der Gleichung (5.7) :

$$\frac{C_{L}}{C_{L}^{*}} = \left[1 - \exp\left(-t \cdot k_{L}a\right)\right]$$
(5.8)

In Fall (b) trifft die Front der sauerstoffbeladenen (Luft) Blasen in jeder Höhe auf sauerstofffreies Wasser, so dass gilt Gleichung (5.2) mit $C_L = 0$:

$$\frac{\partial C_{G}}{\partial h} = -\frac{A_{S}(1 - \varphi_{G})}{V_{G}} \cdot k_{L}a \cdot k \cdot C_{G}$$
(5.9)

Mit der Randbedingung C_G (h=0) = C_G^* und der Lösung

von Gleichung (5.9) folgt:

$$\frac{C_{G}}{C_{G}^{*}} = \exp\left(\frac{-A_{S}\left(1-\phi_{G}\right)\cdot k_{L}a\cdot k\cdot h}{V_{G}}\right)$$
(5.10)

$$\frac{C_{G}}{C_{G}^{*}} = \exp\left(\frac{-k \cdot k_{L} a \left(1 - \varphi_{G}\right) \cdot h}{W_{sG}}\right)$$
(5.11)

5.3 Berechnung der theoretischen Werte der Elektrodenanzeige (C_E)

Die Anzeigewerte $C_E = C_E$ (t) wurden in Abhängigkeit von der Sauerstoffkonzentration im Wasser $C_L = C_L$ (t) unter Verwendung der Gleichung (4.12) nach folgender Vorschrift berechnet :

$$\mathbf{t}_{i+1} = \mathbf{t}_i + \Delta \mathbf{t} \tag{5.12}$$

$$C_{E^{1+1}} = C_{E^{1+1}} + \frac{\partial C_{E}}{\partial t} \cdot \Delta t + \frac{\partial^{2} C_{E}}{\partial t^{2}} \cdot \frac{\Delta t^{2}}{2}$$
(5.13)

$$\frac{\partial C_{E^{-i}}}{\partial t} \approx \frac{\Delta C_{E^{i}}}{\Delta t} \approx \frac{(C_{L^{-i}} - C_{L^{-i-1}})}{\Delta t} + \frac{n \cdot C_{L^{-i}}}{t_{E}} \left(-\left(\frac{C_{E^{-i}}}{C_{L^{-i}}}\right)^{n-1} - \left(\frac{C_{E^{-i}}}{C_{L^{-i}}}\right) \right)$$
(5.14)

$$\frac{\partial^2 C_{E^i}}{\partial t^2} \approx \frac{\Delta C_{E^i} - \Delta C_{E^{i-1}}}{\Delta t^2}$$
(5.15)

Obwohl die mit diesem Verfahren bei zeitlichen Ausgleichsvorgängen erhaltenen Ergebnisse i.d.R. hinreichend genau sind, wurden hier ebenfalls kleine Zeitinkremente verwendet mit :

$$t \le 20$$
 (s) $\Delta t = 0,1$ (s)

$$t > 20$$
 (s) $\Delta t = 0.5$ (s)

Ein Gradmesser für die Güte der numerischen Näherungsrechnung ist neben dem Ergebnisvergleich für variable Schrittweiten Δ t ein Vergleich der analytischen Lösung von Gleichung (4.5) für C_L^* = konstant mit der numerischen Lösung von Gleichung (4.12). (s. Abschnitt 6.2)

5.4 Fehlerbetrachtung

Auf die Genauigkeit der beiden wichtigsten Ergebnisse der durchgeführten Untersuchungen, den integralen Gasgehalt φ_{G} und den volumenbezogenen Stoffaustauschkoeffizienten $k_{L}a$ haben mehrere Einflussfaktoren und Messgrößen einen Einfluss. Im Wesentlichen sind dies:

- Anzeigewerte C_E der Sauerstoffkonzentration im Wasser,
- Reproduzierbarkeit des Elektrodenverhaltens,
- Flüssigkeitshöhe der begasten und der unbegasten Säule,
- Einhaltung der vorgegebenen Messzeiten,
- Umschaltung der Begasung von Stickstoff auf Luft,
- Genauigkeit und zeitliche Konstanz der Gasmenge,
- Sauerstoffgehalt und Temperatur der Umgebungsluft.

Quantitativ betrachtet werden hier nur die Fehler, die sich bei der Durchführung der Messung ergeben können durch Ablesefehler für die Messzeit und den Messwert der Elektrodenanzeige.

Der Fehler bei der Ablesung der Elektrodenanzeige kann abgeschätzt werden zu $\Delta C_{EA} = 0,1 \text{ (mg/l)}$ als kleinste angezeigte Dezimale. Der Endwert der Elektrodenanzeige liegt bei $\approx 9,2 \text{ (mg/l)}$.

Für Messzeiten über 30 (s) weichen der korrekte Anzeigewert C_E und die Flüssigkeitskonzentration C_L nur noch wenig voneinander ab, wie der Elektrodenversuch für $C_L^* = 9,2$ (mg/l) =konstant und die diagrammatisch dargestellten Berechnungswerte für C_E und C_L zeigen (s. Abschnitt 5.1 Abb.5.1.b).

Wenn man davon ausgeht, dass die Streuung der Messwerte C_E um die numerisch berechneten C_E - Werte neben dem Einfluss von ΔC_{EA} maßgeblich auf Zeitfehler bei

der visuellen Ablesung zurückzuführen sind, und näherungsweise für Messzeiten $t_M > 30$ (s) gilt:

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} \approx \frac{\partial C_E}{\partial t} ; \qquad (5.16)$$

kann für den scheinbaren Fehler der i-ten Einzelmessung gesetzt werden

$$\Delta C_{Ei}^2 \approx \Delta C_{EA}^2 + \Delta t_A^2 \left(\frac{\partial C_L}{\partial t}\right)_i^2$$
(5.17)

Die Berechnung der Fehlerquadratsumme $\sum_{i=1}^{n} \Delta C_{E_i}^2$ zur Optimierung des $k_L a$ – Wer-

tes erfolgte bei den 6 Messzeiten 30,60,90,120,150,180 Sekunden.

Für die Abschätzung des mittleren Zeitfehlers Δt_{AM} bei der Ablesung gilt dann

$$\Delta t_{AM} \approx \left(\frac{\sum_{i=1}^{6} \Delta C_{Ei}^{2} - 6\Delta C_{EA}^{2}}{\sum_{i=1}^{6} \left(\frac{\partial C_{L}}{\partial t}\right)^{2}} \right)^{0,5}$$
(5.18)

Die Ermittlung der $\frac{\partial C_L}{\partial t}$ erfolgt dabei für $C_G \approx C^*_G$. Diese Annahme ist für die Zeitfehlerabschätzung gerechtfertigt, da C_G sich im Blasensäulenversuch nur wenig ändert ($\Delta C_G \le 10\%$) und C_L immer die gleichen Werte $0 < C_L < C^*_L$ durchläuft. Damit gilt:

$$\frac{\partial C_E}{\partial t} \approx \frac{\partial C_L}{\partial t} k_L a \cdot \exp(-k_L a \cdot t)$$
(5.19)

Gasleerrohrgeschwindigkeit W _{SG} (m/s)	Ablesefehler für Messzeit ∆t _{AM} (s) ohne Resonanzschwingungen	Ablesefehler für Messzeit ∆t _{AM} (s) mit Resonanzschwingungen
0,01	2,631	1,111
0,02	2,389	0,769
0,03	2,552	2,056
0,04	1,342	1,244
0,05	0,994	1,213
0,06	0,856	1,257

Für die 12 Messreihen ergeben sich damit die folgenden Zeitfehler Δt_{AM} (s).

Damit ergibt sich der durchschnittliche Ablesefehler für die Messzeit Δt_{AM} ohne Resonanzschwingungen =1,79 (s) und mit Resonanzschwingungen = 1,28 (s) Trotz der resonant schwankenden Flüssigkeitsoberfläche ist bei Resonanzschwingungen der unter Δt_{AM} erfasste Messfehler deutlich geringer als ohne Resonanzschwingungen.

Für den zu berücksichtigenden Messzeitfehler als wichtigste Störgröße wird in konservativer Abschätzung ein Wert von $\Delta t_{AM} = 2$ (s) angenommen. Weitere zufällige Einflussfaktoren auf die Streuung der Messwerte wie z.B. Zeitfehler beim Umschalten von Stickstoff auf Luft, Ablesefehler des Flüssigkeitsspiegels, Reproduzierbarkeit der Elektrodenkonstante, Messung der Gasmenge usw. sind damit unter dem Begriff "Messzeitfehler" erfasst worden und brauchten daher nicht weiter betrachtet zu werden.

Für die Abschätzung des Einflusses der beiden Messfehlergrößen ΔC_{EA} und Δt_{AM} auf den $k_L a$ – Wert wurde ein Schätzwert für die Standardabweichung von $k_L a$ unter dem Einfluss der beiden zufälligen Fehler nach dem Gaussschen Fehlerfortpflanzungsgesetz ermittelt zu :

$$S_{k_{L}a} \Delta k_{L}a \approx \sqrt{\left(\frac{\partial k_{L}a}{\partial C_{E}}\right)^{2} \cdot \Delta C_{EA}^{2} + \left(\frac{\partial k_{L}a}{\partial t}\right)^{2} \cdot \Delta t_{AM}^{2}}$$
(5.20)

Da $k_L a$ durch numerische Lösung von zwei Differentialgleichungen {C_L(h,t), C_G(h,t), C_E(C_L(h,t))} ermittelt wurde, konnten die partiellen Differentialquotienten auch nur numerisch durch Lösung der Differentialgleichungen ermittelt werden. Bezogen auf die Standardabweichung konnte daraus die Genauigkeit des ermittelten $k_L a$ – Werte mit $\leq \pm 8,65\%$ (min. 7,1% max.10,3%) abgeschätzt werden. Den größten Einfluss auf die Fehlergröße $\pm \Delta k_L a$ hatten dabei der "Messzeitfehler" Δt_{AM} .

Der größte Fehlerwert ergab sich für die Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,01$ (m/s) ohne Resonanzschwingungen. Der kleinste Fehlerwert wurde für die Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,03$ (m/s) mit Resonanzschwingungen berechnet.

Es ist zu vermuten, dass sich unter dem Einfluss von Resonanzschwingungen und optimalen Gasleerrohrgeschwindigkeiten $W_{SG} \leq 0,04$ (m/s) schneller, d.h. bereits in geringer Höhe über der Lochplatte, ein stabileres Blasenregime einstellt.

Die Ermittlung von $k_L a$ ist sehr aufwendig und fehleranfällig durch die vielen Einflussgrößen (alle Messwerte φ_G , W_{SG} , C_E , t, Sauerstoffelektrode), die alle mit Fehlern behaftet sind.

Im Vergleich dazu ist die Genauigkeit von \mathbf{j}_{g} nur einer geringen Anzahl von Einflussgrößen und deren Fehlern unterworfen.

Da $k_L a$ mittels numerischer Rechnung in mehreren Stufen (C_G, C_L, C_E) berechnet wird, kommt der Genauigkeit des numerischen Berechnungsverfahrens besondere Bedeutung zu.

Die Regressionsgleichungen für $k_L a$ (s. Abschnitt 6.5 Abbildung 6.12) bestätigen die quantitativen Abschätzungen und korrelieren die Messwerte mit einem Fehler (Standardabweichung) von 5 bis 9,6 %, wobei der Potenzansatz zwar einen etwas geringeren Fehler liefert aber der Exponentialansatz physikalisch besser zu begründen ist. Die in verfahrenstechnischen Untersuchungen angestrebte Genauigkeit von ± 10% ist damit erreicht.

6. Ergebnisse und Diskussion

6.1. Verhalten der Sauerstoffelektrode

Wie in Abschnitt 4.3 bereits erläutert wurden durch optimale Anpassung des mit Gl. (4.5) berechneten Konzentrations- Zeit- Verlaufes für den gelösten Sauerstoff an die gemessenen Konzentrations- Zeitwerte die Konstanten t_E und n bestimmt.

Die Methode zur Bestimmung des Elektrodenkonstante t_∈ für den Fall n=1 wurde von den Autoren [39,40,85] nicht näher beschrieben.

In Abschnitt 4.3 ist die Methode zur Bestimmung des Elektrodenkonstante tert, die in der vorliegenden Arbeit angewendet wurde.

Die Gleichung (4.10) wird häufig benutzt um die Elektrodenkonstante \underline{t} zu bestimmen [85], während mit Gleichung (4.11) die zeitabhängige Flüssigkeitskonzentration in die Elektrodenmesswerte C_E umgerechnet wird. Das reale Elektrodeverhalten wird damit jedoch nur grob angenähert. Die mathematische Behandlung ist allerdings wesentlich einfacher.

Die Gleichung (4.11) und Gleichung (4.12) sind für n=1, und n=2,7585 in Abbildung 6.1 dargestellt. Wie zu erkennen ist, stellt die in Abschnitt 4.3 entwickelte neue Gleichung (4.12) den aus Versuchen bekannten realen zeitlichen Verlauf des Messwertes der Sauerstoffkonzentration besser dar.



Abb. 6.1 Vergleich der Anstiegsgeschwindigkeit von C_E nach Gleichung (4.11) (n=1) und Gleichung (4.12) (n=2,76)

6.2. Vergleich der analytischen mit der numerischen Lösung

In diesem Abschnitt werden die bekannten analytischen Lösungen der beiden partiellen Differentialgleichung C_G = f(t, h) und C_L = f(t, h) mit der numerischen Lösung verglichen, um die Güte des numerischen Berechnungsverfahrens zu prüfen.

Wie in Abschnitt 5.2 erklärt, wird im Fall a das Wasser über der Lochplatte stets von Frischluft mit $C_G = C_G^*$ durchströmt.

Analytische und numerische Lösung sind beispielhaft für $W_{SG} = 0,01$ (m/s), $k_L a = 0,01813$ (1/s), $\varphi_G = 0,07513$ mit Resonanzschwingung, für h = 0 und $k_L a$ = konstant in Abbildung 6.2 dargestellt und zeigen gute Übereinstimmung.



Abb. 6.2 Vergleich der analytischen mit der numerischen Lösung für W_{SG} =0,01 (m/s) und h=0 mit Resonanzschwingung in Flüssigphase (h=0); C_G =C*_G = konstant

In Fall (b) trifft die Front der sauerstoffbeladenen Blasen nach der plötzlichen Umstellung von Stickstoff auf Luft in jeder Höhe auf sauerstofffreies Wasser, d.h. es gilt:

$$C_{L} = 0$$
:

Analytische und numerische Lösung sind beispielhaft

für
$$k_L a = 0,01813 (1/s)$$

$$\phi_{G} = 0,07513$$

 $W_{SG} = 0,01 \text{ (m/s)}$

mit Resonanzschwingung im Bereich

 $0 \ \leq h \leq 2m \qquad \mbox{mit } h(t) = W_{BA} \ . \ t_h \ \ bzw. \quad t_h = \phi_G \cdot h/W_{SG} \ ; \label{eq:basic}$

im Abbildung 6.3 dargestellt und zeigen ebenfalls gute Übereinstimmung, wobei zu beachten ist, dass in der Darstellung der Bereich $0.9 \le C_G/C_G^* \le 1$ stark gespreizt wurde.



Abb. 6.3 Vergleich der analytischen mit der numerischen Lösung für $W_{SG} = 0,01$ (m/s) mit Resonanzschwingung in der Gasphase ($C_L = 0 = \text{konstant}$)

Ein zusätzlicher Gradmesser für die Güte der numerischen Näherungsrechnung ist neben dem Ergebnisvergleich für variable Schrittweiten Δ t ein Vergleich der analytischen Lösung (Degressionsgleichung) von Gleichung (4.5) (s. Abschnitt 5.3) für C_L^* = konstant mit der numerischen Lösung von Gleichung (4.12). Das heißt, auch der einfache Elektrodenversuch wird numerisch nochmals berechnet.

Die Abbildung 6.4 zeigt die gute Übereinstimmung zwischen der Degressionsgleichung der Versuchswerte und der numerischen Lösung der Differentialgleichung für den Fall

 $C_L = C_L^* = \text{const.}$



Abb. 6.4 Vergleich der analytischen Lösung von Gleichung (4.5) für C_L^* = konstant mit der numerischen Lösung von Gleichung (4.12).

Damit ist die Güte der numerischen Berechnungsverfahren für $C_G = f(t, h)$;

 $C_L = f(t, h)$ und $C_E = f(C_L(t))$

im maximal möglichen Umfang überprüft und ihre Genauigkeit nachgewiesen worden.

6.3. Einfluss der Resonanzschwingung auf das Blasenspektrum

Wie in Abschnitt 2.6 diskutiert, hat eine Reihe von Autoren zur Untersuchung des Blasenregimes die fotographische Methode benutzt. Die Versuche wurden in der vorliegenden Arbeit mit einer Wassersäulenhöhe von 2,5 m und mit Gasleerrohrgeschwindigkeiten $W_{SG} = 0,01$ und $W_{SG} = 0,03$ m/s ohne und mit Resonanzschwingungen durchgeführt.

Die Fotoaufnahmen wurden in den Höhen 1,6 m, 2 m und 2,4 m über Lochplatte ohne und mit Resonanzschwingungen gemacht.

Dabei wurden die Konturen der Blasensäule und die Blasen selbst schwarz gefärbt, während die Flüssigkeit weiß gelassen wurde. Mit Hilfe des Softwareprogramms "Optimas" wurde dann die Bildauswertung vorgenommen, wobei die Anzahl der Blasen und die Blasenflächen ausgezählt bzw. berechnet wurden.

Zur Vereinfachung der Auswertung wurden Flächen von $0,05 \text{ cm}^2$ bis $0,15 \text{ cm}^2$ als $0,1 \text{ cm}^2$ und von $0,15 \text{ cm}^2$ bis $0,25 \text{ cm}^2$ als $0,2 \text{ cm}^2$ und von $0,25 \text{ cm}^2$ bis $0,35 \text{ cm}^2$ als $0,3 \text{ cm}^2$ schließlich von $0,35 \text{ cm}^2$ bis $0,45 \text{ cm}^2$ als $0,4 \text{ cm}^2$ zu Mittelwerten zusammengefasst.

Die Abbildungen 6.5 bis 6.7 zeigen die Ergebnisse für drei Aufnahmestellen ohne und mit Resonanzschwingungen für eine Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} von 0,01 m/s.


Abb. 6.5 Darstellung der Anzahl der Blasen über der Querschnittsfläche ohne und mit Resonanzschwingungen für Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,01$ m/s und Messstelle =1,6 m



Abb. 6.6 Darstellung der Anzahl der Blasen über der Querschnittsfläche ohne und mit Resonanzschwingungen für Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,01$ m/s und Messstelle =2 m



Abb. 6.7 Darstellung der Anzahl der Blasen über der Querschnittsfläche ohne und mit Resonanzschwingungen für Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} = 0,01 m/s und Messstelle =2,4 m

An den Messstellen von 1,6 m und 2,0 m Höhe der Blasensäule und bei einer Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} von 0,01 m/s überstieg die Blasenzahl unter dem Einfluss der Resonanzschwingungen diejenige ohne Resonanzschwingung ab einer Querschnittfläche größer als 0,1 – 0,2 cm² (s. Abb. 6.5 und Abb.6.6).

An der Messstelle 2,4 m mit Resonanzschwingung überwiegt die Anzahl der kleineren Blasen bis zu einer Größe von 0,25 cm². Ohne Resonanzschwingungen überwiegt die Anzahl der größeren Blasen (ab 0,25 cm²) (s. Abb.6.7).

Die Abbildungen 6.8 bis 6.10 zeigen die Ergebnisse für drei Höhen ohne und mit Resonanzschwingungen für eine Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} von 0,03 m/s.



Abb. 6.8 Darstellung der Anzahl der Blasen über der Querschnittsfläche ohne und mit Resonanzschwingungen für Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,03$ m/s und Messstelle =1,6 m



Abb. 6.9 Darstellung der Anzahl der Blasen über der Querschnittsfläche ohne und mit Resonanzschwingungen für Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,03$ m/s und Messstelle =2 m



Abb. 6.10 Darstellung der Anzahl der Blasen über der Querschnittsfläche ohne und mit Resonanzschwingungen für Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,03$ m/s und Messstelle =2,4 m

Bei den Höhen 1,6 m und 2 m und einer Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} von 0,03 m/s war die Zahl der Blasen mit Resonanzschwingungen größer als die ohne Resonanzschwingungen , wie in Abbildung 6.8 und 6.9 ersichtlich.

Bei der Höhe 2,4 m überwog die Zahl der kleinen Blasen bis 0,2 cm² mit Resonanzschwingung, während ohne Resonanzschwingung die Anzahl der Blasen mit einer Fläche von 0,25 cm² überwog. (s. Abbildung 6.10).

Das fotografische Verfahren erfasst nur die Blasen in Wandnähe, nicht die jedoch die bevorzugt im Zentrum der Säule aufsteigenden Blasen. Dadurch führt die fotografische Methode zu einem Fehler bei der Auswertung der Messergebnisse (Blasengrößen und Blasenzahlen). Die Messergebnisse in Summe weisen hin auf eine Verkleinerung der Blasengröße bzw. des Blasendurchmessers und eine Zunahme der Blasenzahl durch Resonanzschwingungen.

Durch Anwendung von Resonanzschwingung bleiben die Blasen auch noch weit über der Lochplatte gleichmäßig verteilt ohne Blasenkoaleszenz zu bilden.

Durch die Verkleinerung der Blasengröße bzw. des Blasendurchmessers unter dem Einfluss von Resonanzschwingung erfolgt durch die verringerte Aufstiegsgeschwindigkeit eine Erhöhung des integralen Gasgehalts φ_G , was zu einer Erhöhung der Stoffaustauschleistung im wesentlichen durch Vergrößerung der volumenbezogenen Phasengrenzfläche a_G führt (s. Abschnitt 2.4).

6.4. Einfluss der Resonanzschwingung auf den integralen Gasgehalt j G

Der integrale Gasgehalt φ_G wird nach der Gleichung (3.10) bestimmt. (s. Abschnitt 4.6)

In der Abbildung 6.11 ist der Einfluss der Resonanzschwingungen auf den integralen Gasgehalt φ_G in Abhängigkeit von der Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} zusammenfassend dargestellt.



Abb. 6.11 : Integraler Gasgehalt ϕ_G in Abhängigkeit von der Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} mit und ohne Resonanzschwingung

Aus der Darstellung ist zu erkennen, dass sich der integrale Gasgehalt φ_G mit zunehmender Gasleerrohrgeschwindigkeit erhöht. Die Resonanzschwingungen führen zu einer zusätzlichen Erhöhung des integralen Gasgehaltes φ_G um ca. 40%.

Die Resonanzschwingungen führen zu einer Verkleinerung der Blasengrößen durch Blasenzerfall (s. Abschnitt 6.3), damit steigt der integrale Gasgehalt φ_{G} .

Wie in Abbildung 6.11 ersichtlich nimmt der Einfluss der Resonanzschwingungen mit steigender Gasrohrleergeschwindigkeit leicht ab. Dies kann mit der abnehmenden Resonanzfrequenz infolge des steigenden Gasgehaltes und der steigenden Eigenturbulenz der Zweiphasenströmung bei höheren Gasleerrohrgeschwindigkeiten erklärt werden.

6.5. Einfluss der Resonanzschwingung auf den Volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$

Wie in Abschnitt 5.1 diskutiert werden die numerisch ermittelten Werte C_E mit den im Versuch gemessenen C_E – Werten verglichen und daraus der $k_L a$ – Wert durch Variation (als Mittelwert über die Höhe) für alle Messhöhen und Messzeiten des Versuches ermittelt.

In der Abbildung 6.12 ist der Einfluss der Resonanzschwingungen auf den volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ dargestellt.



Abb.6.12 : Volumenbezogener Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ als Funktion der Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} mit und ohne Resonanzschwingung

Der volumenbezogene Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ steigt mit Zunahme der Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} an. Dieses Ergebnis stimmt mit [6, 16, 17, 18, 24, 76, 82, 83, 84, 85, 87] überein.

Die Abbildung 6.12 zeigt deutlich, dass durch die niederfrequenten Resonanzschwingungen eine Erhöhung des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ (ca. 50%) erfolgt, primär durch eine Erhöhung des integralen Gasgehalts φ_G (ca. 40%) infolge Verkleinern der Blasengröße bzw. des Blasendurchmessers (s. *A*bschnitt 6.3) und sekundär durch eine Erhöhung der Turbulenz.

Durch das Verkleinern der Blasengröße (Blasendurchmesser) und Steigerung des integralen Gasgehalts φ_G wird die volumenbezogene Phasengrenzfläche a_G größer (s. Abschnitt 2.4 Gleichung (2.19)), wobei gilt:

$$k_{\rm L}a = k_{\rm L} \quad . \quad \frac{6\varphi_{\rm G}}{d_{\rm B}} \tag{6.1}$$

Die aus den Messungen numerisch berechneten Werte für den volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ und der integrale Gasgehalt φ_G sind in Abhängigkeit von der Gasleerrohrgeschwindigkeit mit und ohne Resonanzschwingung mit einer Potenzfunktion sowie mit einer Exponentialfunktion der Regressionsrechnung unterzogen worden. In der Verfahrenstechnik wird häufig die Potenzfunktion als Degressionsgleichung verwendet.

Die quantitative Erfassung der Abhängigkeit des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ - Wertes und des integralen Gasgehalt φ_G - Wertes von der Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} und der aufgebrachten Resonanzschwingung erfolgte zunächst nach der üblichen Methode über ein Potenzgesetz (s.a. [6, 16, 17, 18]).

$$\mathbf{k}_{\mathrm{L}} \mathbf{a} = \mathbf{a}_{1} \cdot \mathbf{W}_{\mathrm{SG}}^{\mathrm{b}_{1}} \tag{6.2}$$

79

und

$$\varphi_{\rm G} = a_2 \cdot W_{\rm SG}^{b_2} \tag{6.3}$$

das bereits eine befriedigende Beschreibung der quantitativen Zusammenhänge liefert.

Weiterhin wurde ein Exponentialansatz verwendet in der Form:

$$k_{L}a = a_{3} [1 - exp (-b_{3} \cdot W_{SG})]$$
 (6.4)

und

$$\varphi_{\rm G} = a_4 \left[1 - \exp \left(-b_4 \cdot W_{\rm SG} \right) \right] \tag{6.5}$$

Wie in den beiden Abbildungen 6.11 und 6.12 sichtbar, ist die Exponentialfunktion besser geeignet als Regressionsgleichung für den volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ und den integralen Gasgehalt φ_G aus den durchgeführten Versuchen. Deswegen wird die Exponentialfunktion als Regressionsgleichung bevorzugt.

Mit dem Exponentialansatz wird dem Umstand besser Rechnung getragen, dass es offensichtlich Maximal- bzw. Sättigungswerte vom volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ und dem integralen Gasgehalt φ_G gibt , die sich näherungsweise bereits bei einer optimalen Gasleerrohrgeschwindigkeit von $W_{SG} \leq 0,05$ m/s einstellen. Zudem ist für sehr kleine W_{SG} - Werte der $k_L a$ - Wert direkt dem φ_G - Wert bzw. W_{SG} proportional, was prinzipiell nur durch den Exponentialansatz richtig wieder gegeben wird.

Der Effekt von Resonanzschwingungen auf den volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ und den integralen Gasgehalt φ_G ist bei geringen Gasleerrohrgeschwindigkeiten W_{SG} am größten, was primär auf das große Verhältnis von Schwingungsgeschwindigkeit zu Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} (Blasenaufstiegsgeschwindigkeit) zurück zu führen ist. Nach dem Überschreiten der optimalen Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} \le 0,05$ m/s muss mit einem Abfall des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ gerechnet werden, da die Gasströmung zunehmend vom gleichmäßig verteilten feinen Blasensystem zur zentrierten Gasströmung mit zunehmender Koaleszenz übergeht, was mit abnehmender volumenbezogenen Phasengrenzfläche a_G und Flüssigkeitsströmung entgegen der Gasströmung in Wandnähe und instabilen Strömungszuständen verbunden ist, die auch durch Resonanzschwingungen nicht mehr stabilisiert bzw. unterdrückt werden können.

Die lokale Flüssigkeitsrückströmung wirkt dem Blasenaufstieg entgegen. Im Vergleich dazu werden im Schlaufenreaktor durch den Blasenaufstieg eine gleichgerichtete Flüssigkeitsströmung im Zweiphasenraum und damit prinzipiell stabilere Strömungsverhältnisse (geringere Relativgeschwindigkeit des Gas-Flüssig-Gemisches, geringere Rückströmung der Flüssigkeit) erzeugt. In der Schlaufe sind daher höhere volumenbezogene Stoffübergangskoeffizienten k_La - Werte und höhere maximale Gasleerrohrgeschwindigkeit W_{SG} - Werte zu erwarten.

Die nach dem Potenzgesetz regressierte Abhängigkeit des integralen Gasgehaltes von der Gasleerrohrgeschwindigkeit gibt die theoretische Abhängigkeit nach Ostrovsky [122]:

$$\varphi_{\rm G} \sim W_{\rm SG}^{0,5} \tag{6.6}$$

nur für den Fall der Resonanzschwingungen befriedigend wieder.

$$\phi_G \sim W_{SG}^{0,48}$$
 mit Resonanzschwingungen (6.7)

und

$$\phi_G \sim W_{SG}^{0,62}$$
 ohne Resonanzschwingungen (6.8)

Die Vermutung, dass ohne Resonanzschwingungen es zu einem Abfall des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten k_La - Wertes durch Blasenkoaleszenz, Zentrierung des Blasenschwarmes und verstärkter Flüssigkeitsrückströmung in Wandnähe kommt, konnte quantitativ nicht bestätigt werden. Dazu bedürfte es einer weiteren Erhöhung der Messgenauigkeit und einer verfeinerten Höhenabstufung der Messstellen.

Bei der Auswertung der Messergebnisse ergibt sich die Tendenz, dass bei Resonanzschwingungen die Ansprechgeschwindigkeit der Sauerstoffelektrode größer ist als ohne Resonanzschwingungen.

Die ist ein weiterer indirekter Nachweis, dass durch Resonanzschwingungen die Stofftransportvorgänge beschleunigt werden.

Ein stabiler Säulenbetrieb ist bis Gasleerrohrgeschwindigkeit nahe W_{SG} .0,05 m/s möglich. Die meisten Blasensäulen werden in der technischen Anwendung unterhalb dieses W_{SG} - Wertes betrieben. Die dadurch begrenzten Werte des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ können praktisch nur noch durch andere Maßnahmen als durch Steigerung des Gasdurchsatzes wirksam erhöht werden.

Im Fall der niederfrequenten Resonanzschwingungen beträgt die Erhöhung über ca. 50%, was durch keine andere bekannte Maßnahme bei ähnlich niedrigem technischen Aufwand möglich ist.

Der Versuch, eine Abhängigkeit des k_La -Wertes von der Höhe aus den O₂-Konzentrationsmessungen zu ermitteln, verlief sowohl bei den Messungen ohne als auch mit Resonanzschwingungen ergebnislos. Die Erwartung, dass der k_La -Wert ohne Resonanzschwingungen mit steigender Entfernung von der Lochplatte absinkt bzw. unter dem Einfluss von Resonanzschwingungen konstant bleibt oder sogar ansteigt, ließ sich mit den schwachen Abhängigkeiten und z.T. widersprüchlichen Ergebnissen $k_La = f(h)$ nicht bestätigen.

Die Anwendung niederfrequenter Schwingungen verbessert das Betriebsverhalten von Säulen großer Höhe, da die Blasenkoalezenz verhindert oder kompensiert wird so dass der volumenbezogene Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ über die gesamte Höhe nahezu gleichbleibend hoch bleibt und annähernd gleich dem Mittelwert ist.

6.6 Vergleich der Versuchsergebnisse mit der Literatur

Wie im Abschnitt 3.1 diskutiert, hat eine Reihe von Autoren [43-51,75,77,79,80,115-118] Untersuchungen von Stoffaustauschprozessen in Zweiphasensystemen mit Schwingungen durchgeführt, um die vorteilhafte Wirkung der Schwingungen auf technologische Prozesse nachweisen zu können.

Über die Untersuchungen zum Einfluss von Resonanzschwingungen auf den Stoffaustausch in der Blasensäule wurden lediglich von Ostrovsky [76,113] vergleichbare Versuche durchgeführt. In der Abbildung 6.13 sind die Ergebnisse zum Einfluss von Resonanzschwingungen auf den volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_{\perp}a$ von Ostrovsky [76,113] im Vergleich mit eigenen Ergebnissen dargestellt.



Abb.6.13: Vergleich der Ergebnisse von Ostrovsky [76,113] mit eigenen Ergebnissen zum volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ ohne und mit Resonanzschwingungen

Wie aus Abb. 6.13 zu erkennen ist, sind die volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ nach [76] und eigenen Messungen (s. Abb. 6.12) ohne Resonanzschwingungen in Tendenz und Höhe durchaus vergleichbar.

Die Abhängigkeit des Stoffaustauschkoeffizienten von der Gasleerrohrgeschwindigkeit lässt sich nach ähnlichen Beziehungen (am besten mit dem Exponentialansatz) wie für die eigenen Ergebnisse darstellen.

Die Resonanzschwingungen führten in [76] zu einer sehr starken Erhöhung des Stoffaustauschkoeffizienten, für Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,004$ m/s um ca. Faktor 10 und für Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,04$ m/s um ca. Faktor 4, was deutlich über dem Steigerungsfaktor von 1,65 bis 1,5 in den eigenen Untersuchungen für Gasleerrohrgeschwindigkeit $W_{SG} = 0,01$ bis $W_{SG} = 0,06$ m/s liegt.

Die Erklärung dafür ist in den wesentlich höheren Resonanzfrequenzen in [76] zu suchen, die im Bereich $f_R \approx 15$ bis 20 Hz und damit um den Faktor 5 über den eigenen (niederfrequenten) Schwingungsfrequenzen lagen.

Die Gründe für die hohen Frequenzen in [76] liegen primär in der geringeren Säulenhöhe (ca. 1 m gegenüber 4,5 m), die vermutlich teilweise mit noch geringeren Füllhöhen betrieben wurde, was nach Gl. (3.3) zu höheren Resonanzfrequenzen führt. Außerdem ist es möglich, dass Oberschwingungen in [76] verwendet wurden, während in den eigenen Untersuchungen ausschließlich Grundschwingungen aufgegeben wurden.

Unabhängig davon ergibt sich, dass mit einer Erhöhung der Resonanzfrequenz der Stoffaustausch intensiviert wird. Für große Flüssigkeitshöhen und/oder hohe integralen Gasgehalte φ_G des Zweiphasengemisches kann wegen der niedrigen Grundfrequenz (k = 1) der Stoffaustausch durch die höheren Frequenzen der Oberschwingungen wirksamer gesteigert werden.

Bestätigt wird durch die Ergebnisse von [76] auch die eigene Feststellung, dass mit steigender Gasleerrohrgeschwindigkeit der Effekt der Resonanzschwingung auf den Stoffaustausch sinkt.

In [76] wird die eigene Beobachtung bestätigt, dass mit einer Annäherung an höhere Gasleerrohrgeschwindigkeiten W_{SG} (obere Grenze in [76] $W_{SG} \approx 0.04$ m/s) das Blasenregime inhomogen und instabil wird. Insbesondere können große Blasen, die durchbruchsartig aufsteigen auch durch resonante Schwingungen nicht zerkleinert und homogenisiert werden, so dass eine weitere Steigerung des volumenbezogenen

84

Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ ebenso wie in den eigenen Untersuchungen zumindest asymptotisch begrenzt wird.

Yasuda [115] verwendete Schwingungen, um den Stoffaustausch in einer flüssigflüssig Reaktion zu beschleunigen. Ein Vergleich mit den eigenen Untersuchungen ist nur bedingt möglich, da die Versuchsbedingungen nach [115]

- Ultraschallwellen mit f = 510 kHz,
- keine Resonanz im Zweiphasensystem,
- $W_{SG} < 0,015 \text{ m/s}$

extrem von den eigenen Werten abwichen. Zudem handelte es sich um eine chemische Reaktion in der flüssigen Phase, d.h. es trat kein (merklicher) Stoffaustausch zwischen flüssiger und gasförmiger Phase auf. Die Gasblasen wurden demnach bdiglich als "Turbulenz erzeugende Rührer" zur besseren Durchmischung der flüssigen Phase verwendet. Durch die Ultraschallschwingungen wurde also nur der diffusive Stofftransport merklich beeinflusst. Dennoch lassen sich einige Parallelen und Schlussfolgerungen ziehen:

- Die Reaktionskonstante k zeigt in Abhängigkeit von W_{SG} einen ähnlichen Verlauf (k W_{SG}^{0,46}) wie k_La nach [76, 113] und den eigenen Untersuchungen.
- Schwingungen auch sehr hoher Frequenzen ohne Resonanz zeigen im Vergleich zur intensivierenden Wirkung der Gasblasenströmung einen vergleichsweise geringen Effekt. Die Ultraschallwellen allein haben eine geringere Wirkung auf den Stoffaustausch als eine Gasleerrohrgeschwindigkeit von W_{SG} < 0,0015 m/s, so dass die Zweckmäßigkeit der Ultraschallanwendung fraglich erscheint, da sich ihre Wirkung bei höheren W_{SG} praktisch verliert, obwohl der spezifische Energieeintrag (> 7W/I) durch den Ultraschall im Vergleich zu mechanischen Rührern sehr hoch ist.
- Mit größerer Entfernung von der Schallquelle, insbesondere bei hohen Frequenzen, nimmt die Intensität der Schwingungen durch Dämpfung im Zweiphasensystem messbar ab, was außerhalb der Resonanz offensichtlich stärker ausgeprägt ist als bei Resonanz.

Aus den eigenen Untersuchungen und den Literaturergebnissen bestätigt sich, dass die effektive Anwendung von Schwingungen in Zweiphasenprozessen nicht ungerichtet sondern gezielt im Resonanzbereich erfolgen sollte.

7 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde der Einfluss der Resonanzschwingung auf den volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizient $k_L a$ sowie den integralen Gasgehalt φ_G in einem Luft- Wasser-Gemisch (Blasensäule) untersucht.

Die ersten Untersuchungen galten der Ermittlung der Resonanzschwingungsbereiche sowie ihrer Abhängigkeit von der Wasserhöhe und dem integralen Gasgehalt φ_G . Die Untersuchungen wurden mit Wasserhöhen von 1,5 bis 4,5 Meter und einem integralen Gasgehalt φ_G von ca. 5% bis 20% durchgeführt. Dabei wurden die experimentell ermittelten und die theoretisch berechneten Resonanzfrequenzen bei isothermen und isentropen Zustandsänderungen berücksichtigt. Die experimentell ermittelte Resonanzfrequenz befindet sich in nahezu vollständiger Übereinstimmung mit den theoretisch ermittelten Werten, wobei mit Zunahme der Wasserhöhen und des Gasanteiles die Resonanzfrequenz abnimmt.

Zur Bestimmung des volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ wurde die dynamische Messmethode angewendet, wobei die Sauerstoffkonzentration in der Flüssigphase mit Hilfe einer schnell arbeitenden Sauerstoffelektrode gemessen wurde.

Der Verlauf der Flüssigkeitskonzentration C_L und der Gaskonzentration C_G des Sauerstoffes wurden für den Mittelwert des $k_L a$ - Wertes durch numerische Lösung der partiellen Differentialgleichung in Abhängigkeit von Ort (Messhöhe) und Zeit (Messzeit an der Messhöhe) berechnet.

Unter der Berücksichtigung der Charakteristik der Sauerstoffelektrode wurden die Flüssigkeitskonzentration $C_L(h, t)$ aus der Lösung der Differentialgleichung für die im Versuch festgelegten Höhen (0,8 ; 1,2 ; 1,6 ; 2,0 m) und Messzeiten (30 ; 60 ; 90 ; 120 ; 150 ; 180 s) in die (zeitlich nachlaufenden) Anzeigewerte der Sauerstoffelektrode C_E umgerechnet.

Die berechneten Messwerte C_E wurden mit den im Versuch gemessenen C_E - Werten verglichen und der k_La - Wert (als Mittelwert über die Höhe) mittels Variation durch Fehlerminimierung für alle Messhöhen und Messzeiten des Versuches ermittelt

Der Vergleich zwischen der numerischen und der analytischen Lösung ergibt eine gute Übereinstimmung.

Zur Bestimmung des Effektes der Resonanzschwingung auf die Blasengröße wurde die fotografische Methode verwendet.

Die Messergebnisse ergaben eine Verkleinerung der Blasengrosse bzw. des Blasendurchmessers und eine Zunahme der Blasenzahl durch Resonanzschwingungen.

Daraus folgt eine Steigerung des integralen Gasgehaltes unter dem Einfluss der Resonanzschwingung.

Durch Anwendung von Resonanzschwingungen wurde ein Effekt auf das Blasenspektrum festgestellt. Die Blasen wurden gleichmäßig verteilt über die Lochplatte und über die Säulenhöhe, das heißt durch Resonanzschwingungen werden die Blasen nicht in der Mitte der Säule zentriert, sondern sie werden über den Querschnitt gleichmäßig verteilt ohne Blasenkoaleszenz zu bilden. Die Resonanzschwingung führt zu höheren Flüssigkeitsturbulenzen und damit zum Blasenzerfall, wodurch die volumenbezogene Phasengrenzfläche a_G wächst.

Als Ergebnis der Versuche zum Stoffaustausch ist festzustellen, dass durch Resonanzschwingungen im Mittel eine Erhöhung der volumenbezogenen Stoffübergangskoeffizienten $k_L a$ von ca. 50% auftritt. Diese Erhöhung erfolgt durch eine mittlere Erhöhung des integralen Gasgehalts φ_G von ca. 40% in Folge der Verkleinerung der Blasengröße bzw. des Blasendurchmessers

Es wird für lange Industriekolonnen empfohlen, mit mehreren Schwingungserregern in optimaler Höhenlage und Phase zu arbeiten, da die Resonanzschwingung durch Reibung an der Wand und in der Flüssigphase gedämpft werden kann.

87

7 Summary

In this work the absorption of oxygen from air into tap water with and without pulsation by bubble column has been investigated. The first investigations dealt with the measurement of resonance frequency range and its dependence on water height and the gas volume content. The height of water in the columns and the total gas volume content varied from 1.5 m to 4.5 m and 5% to 20% respectively.

The experimentally measured resonance frequency was approximately the same as one with increasing water height and gas concentration up to 20% the resonance frequency decreased.

To measured the bubble size with and without Pulsation at resonance frequency, the photographic method was used. The diameter of the bubble column was 8cm and the water height was 2.5 m and superficial gas velocities were 0.01 m/s and 0.03 m/s. The photographs were taken at the vertical column position of 1.6 m, 2 m and 2.4 m

The size and the number of bubble was measured using software Programme (Optimas).

It was found from photographic measurements results at position 1.6 m and 2 m vertical column for superficial gas velocity equal to 0.01 m/s that the number of bubble up bubble size equal 0.2 cm^2 increasing by pulsation at resonance frequency.

And at position 2.4 was the number of small bubble increasing by pulsation at resonance frequency up to the bubble size equal 0.25 cm², and up the bubble size equal to 0.25 cm^2 was the number of big bubble increasing without pulsation.

At position 1,6 m and 2 m vertical column for superficial velocity equal to 0.03 m/s was the number of bubble by pulsation at resonance frequency more than without pulsation.

And at position 2.4 m was the number of small bubble up to bubble size equal to 0,25 cm^2 increasing by pulsation at resonance frequency, and up the bubble size equal to 0.25 cm^2 was the number of bubble increasing without pulsation

It was found that the size of bubble decreasing and the number of small bubble increasing by pulsation at resonance frequency . The principal investigation was directed to measure the mass transfer coefficient $k_L a$ in bubble column. The goal was to find out if the low frequency pulsation in resonance case would increase the magnitude of the mass transfer coefficient $k_L a$ in gas/liquid system was measured by the unsteady state dynamic method, in the dynamic method nitrogen gas was introduced first into water until the dissolved oxygen concentration was zero. The latter was measured by means of an oxygen electrode. The measurements were made both with and without pulsation. The mass transfer coefficient $k_L a$ was determined using the numerical calculation.

It was found that the mass transfer coefficient $k_L a$ were increased about 50% by pulsation at resonance frequency. As soon as the gas hold up were increased about 40% by pulsation at resonance frequency. However, different parameters affecting the mass transfer processes, especially under consideration of optimum technical application of the procedure should be further investigated. These parameters include :

- the best place for the pulsation system,
- Stability of the whole pulsating system

8 Symbolverzeichnis

Deutsche Symbole:

а	m/s	Schallgeschwindigkeit
a _G	1/m	volumenbezogene Phasengrenzfläche
А	m²	Fläche
As	m ²	Innenquerschnitt der Säule
С	kmol/m ³	Molkonzentration
C _G	kmol /m ³	Sauerstoffkonzentration des Luftstromes in der Bla-
		sensäule
CL	kmol/m ³	Sauerstoffkonzentration des Wassers
CE	kmol/m ³	Messsignal der Sauerstoffelektrode
C*L	kmol/m ³	Sättigungskonzentration des Sauerstoffs in Wasser
C* _G	kmol/ m ³	Sauerstoffgehalt der atmosphärischen Luft
d _B	m	mittlerer Blasendurchmesser
D _R	m	Reaktordurchmesser
DL	m²/s	Diffusionskoeffizient, Flüssigkeit
f _R	Hz	Resonanzfrequenz
g	m/s²	Erdbeschleunigung
Н	m	Höhe über Lochplatte
He bar/(kmolO ₂ /kmol H ₂ O)		Henrykoeffizient
$k_{L}a$	1/s	volumenbezogener Stoffübergangskoeffizient
kL	1/s	Flüssigkeitsseitiger Stoffübergangkoeffizient
k 1	1/s	Reaktionsgeschwindigkeitskonstante 1. Ordnung
Mw	kg/kmol	Molarmasse des Wassers
m	kg	Masse
N*	kmol/s	Molstrom
Р	kg*m²/s³	Leistung
р	Pa	Druck
P*	Pa	Druck des Gaspolsters unter der Flüssigkeit
Pi	Pa	Innendruck im Zentralrohr
R	S	Transportwiderstand
Т	К	Temperatur

t _G	S	Gesamtzeit
t _E	S	Zeitkonstante der Sauerstoffelektrode
t	S	Zeit
V	m/s	Geschwindigkeit
V	m³	Volumen
V_{G}	m³/s	zeitlich konstanter Gasdurchsatz
V_{M}	m³/kmol	Molvolumen des Gases bei Normalbedingungen
W_{BA}	m/s	mittl. Blasenaufstiegsgeschwindigkeit im Schwarm
W_{SG}	m/s	Gasleerrohrgeschwindigkeit
x	m	Ortskoordinate

Griechische Symbole:

δ	m	Filmdicke
Δ		Differenz
φ _G	1	integraler Gasgehalt
φw	1	Wassergehalt
φL	1	Flüssigkeitsgehalt
ν	m²/s	kinematische Viskosität
η	kg/(m*s)	dynamische Viskosität
ρ	kg/m³	Dichte
σ	kg/s²	Oberflächenspannung

Indizes und Exponenten:

A	Komponente A
В	Blase
E	Erregerfrequenz
eff	effektiv
G	Gasphase
ges	Gesamt
gl	Gleichgewichtszustand
h	Höhe
k	isentropen Zustand
L	Flüssigkeitsphase
Ph	Phasengrenze
0	ohne Resonanzschwingungen
R	Reaktor
Rs	Resonanzschwingungen
Reak	Reaktion
Т	isothermen Zustand
W	Wasser
Prakt	Praktikum

9 Literaturverzeichnis

- [1] Calderbank, P.H.; Moo- Young, M.B.Chem. Eng. Science 16 (1961), S.39-54
- [2] Akita, K., Yoshida, F.Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev. 13 (1974), S.84-91
- [3] Hugmark, G.A.Ind. and Eng. Chem. Proc. Des. and Dev. 6 (1967), S.218
- [4] Chang, S.K.; Kang, Y.; Kim, S.D.Journal of Chem. Eng. of Japan 19 (1986) 6, S.524-530
- [5] Reith, T.; Beek, W.J.Proc. 4th Europ. Symp. Chem. React. Eng. Brüssel 1968, S.191-202
- [6] Schumpe, A.; Deckwer, W.D.
 Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev. 21 81982), S.706-711
- [7] Buchholz, R.; Tsepetonides, J.; Steinemann, J.; Onken, U.Ger. Chem. Eng. 6 (1983), S.105-113
- [8] Zieminski,S.A.; Whittemore, R.C.Chem. Eng. Science 26 (1971), S.509-520
- [9] Franz,K.; Buchholz,R.; Schlügerl,K.Chem. Eng Commun. 5 (1980), S. 165-202
- [10] Nottenkämper, R. Dissertation Dortmund 1983
- [11] Sedelies, R.Dissertation Dortmund 1984

- [12] Schumpe, A.; Nguyen- Tien, K.; Deckwer, W.D.Chem.- Ing.- Techn. 53 (1981) 11, S.886
- [13] Sagart, N.H.; Quinn, M.J.Chem. Eng. Science 33 (1978), S.1087-1095
- [14] Mendelson, H.D.AlChE Journal 13 (1967) 2, S.250-253
- [15] Einstein, A.Ann. d. Physik 17 (1905), S.549-560
- [16] Burckhart, R.; Deckwer, W.- D.Verfahrenstechnik 10 (1976) 6, S.429-433
- [17] Deckwer, W.- D.; Burckhart, R.; Zoll, G.Chem. Eng. Science 29 (1974), S.2177-2188
- [18] Godbole, S.P.; Joseph, S.; Shah, Y.T.; Carr, N.L.Can. Journal of Chem. Eng. 62 (1984), S.440-445
- [19] Akita, K.; Yoshida, F.Ind. Eng. Chem. Process Des. Develop. 12 (1973) 1, S.76-80
- [20] Öztürk, S. S.; Schumpe, A.; Deckwer, W.D.AIChE Journal 33 (1987) 9, S.1473-1480
- [21] Schumpe, A.Dissertation, Universität Hannover, 1981
- [22] Deckwer, W.-D.; Adler I.; Zaidi, A.Can. J. Chem. Eng. 56 (1978), 43

- [23] Quicker, G.; Deckwer, W.-D.Chem.- Ing.- Tech. 53 (1981) 474
- [24] Schügerl, K.; Lücke, J.; Oels, U.Adv. Biochem. Eng. 7 (1977), 1
- [25] Kölbel, H.; Borchers, E.; Langemann, H.Chem.- Ing.- Tech. 33 (1961), 668
- [26] Schlünder, E.-U.
 Einführung in die Stoffübertragung
 Lehrbuch Verfahrenstechnik, Braunschweig/Wiesbaden 1996
- [27] Buchholz, R.; Zakrzewski, W.; Schügerl, K.Chem.- Ing.- Tech. 51 (1979), 568
- [28] Pilhofer, Th.Fortschr. Verfahrenstechnik 15 (1977), 92
- [29] Buchholz, R. Dissertation, Universität Hannover, 1980
- [30] Todtenhaupt, E. K.Chem.- Ing.- Tech. 43 (1971), 33
- [31] Th. Pilhofer und H. D. Miller, Chem.- Ing.- Tech. 44 (1972), 295
- [32] Brentrup, L.; Onken, U.; Irrgang, W.; Wagner, F.*"Bioreaktoren".* hrggn. von F.Keune und R. Scheunemann, DFVLR, 1977
- [33] Buchholz, R.; Schügerl, K.Eur. J. Appl. Microbiol. Biotechn. 6 (1979), 301

- [34] Sharma, M.M., Danckwerts, P.VBrit. Chem. Eng. 15 (1970) 522
- [35] Weiland, P., Sick, R., Onken, U.Chem.-Ing.-Tech. 53 (1981) 580
- [36] Weiland, P., Sick, R., Onken, U.Chem.-Ing.-Tech. 57 (1985) 72
- [37] Nguyen-Tien, K. Dissertation Universität Hannover (1984)
- [38] Patwari, A.N., Nguyen-Tien, K., Schumpe, A., Deckwer, W.D.Chem. Eng. Commun. 40 (1986) 49
- [39] Schumpe, A.Chem.-Ing.-Tech. 57 (1985) 501
- [40] Koch, A., Träger, M., Weiland, P., Buchholz, R., Onken, U.Chem.-Ing.-Tech. 59 (1987) 964
- [41] Dickens, A. W., Mackley, M. R. and Williams, H. R., 1989, Experimental residence time distribution measurements for unsteady flow in baffled tubes. Chem. Engng Sci. 44, S. 1471-1479.
- [42] Shah, Y. T., Kelkar, B. G., Godbole, S. P. and Deckwer, W. D., 1982, Design parameter estimations for bubble column reactors. A.I.C.E.J. 28,S. 353.
- [43] Chisti, M. Y., 1989, Airlift Bioreactors. Elsevier Amsterdam.
- [44] Lewis, D. A. and Davidson, J. F., 1985, Mass transfer in a reciculating bubble column. Chem. Engng Sci. 40, S.2013-2017.

- [45] Calderbank, P. H., 1958, The interfacial area in gas-liquidcontacting with mechanical agitation. Trans. Instn Chem. Engrs 36,S. 443.
- [46] Linek, V., Benes, P and Vacek, V., 1987, A critical review and experimental verification of the correct use of the dynamic method for the determination of oxygen transfer in aerated vessels to water, electrolyte solutions and viscous fluids. Chem. Engng J. Biol. J. 34, S. 11-34.
- [47] Baird, M. H. I. and Garstang, J. H., 1967, Power consumption and gas hold-up in a pulsed column. Chem. Engng Sci. 22, S. 1663-1673.
- [48] Baird, M. H. I. and Garstang, J. H., 1972, Gas absorption in a pulsed bubbled column. Chem. Engng Sci. 27, S. 823-833.
- [49] Bellhouse, B. J., Bellhouse, F. H., Curl. C. M., MacMillan, T.I., Gunning, A.J., Spratt, E.H.; MacMurray, S. B. and Nelems, J. M., 1973 A high efficiency Membrane oxygenartor and pulsatile pumping system, and ist application to animal trials, Trans. Am. Soc. artif. Internal Organs 19, S.72-79.
- [50] Knott, G. F. and Mackley, M. R., 1980, on eddy motions near plates and ducts induced by water waves and periodic flows, Phil. Trans. R. Soc. 294A, S. 599-623.
- [51] Brunold, C. R., Hunns, J. C. B., Mackley, M. R. and Thompson. J. W., 1989, Experimental observations on flow patterns and energy losses for oscillatory Flows in ducts with sharp edges. Chem. Engng Sci 44, S.1227-1244.
- [52] Sharma, M.M., Mashelker, R.A., 1968 Chem. Eng. Symp. Series 28, 10
- [53] Michael, R., Reichert, K.H., 1983, Chem.-Ing.-Tech. 55, S. 564
- [54] Sada, E., Kumazawa, H., Lee, C., Fujiwara, N., 1985, Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev. 24, S. 255

- [55] Kato, Y., Nishiwaki, A., Kago, T., Fukuda, T., Tanaka, S., 1973, Int.Chem. Eng. 13,S. 562
- [56] Koide, K., Takazawa, A., Kawura, A., Matsunaga, H.J., 1984, Chem.Eng. Jpn. 5,S. 459
- [57] Schumpe, A., Fang, L.K., Deckwer, W.D., 1984, Chem.-Ing.-Tech. 56, S.924
- [58] Kratochvil, J., Winkler, K., Zahradnik, J. Coll. Czech., 1985, Chem. Commun. S.50, 48.
- [59] Springmann, H.G., Steiff, A., Weinspach, P.M., 1991, Chem.-Ing.- Tech.63, S.512
- [60] Sittig, W. Verfahrenstechnik, 1977, 11, S.730
- [61] Godbole, S.P., Schumpe, A., Shah, Y.T., 1983, Chem. Eng. Commun.24, S.235
- [62] Sauer, T. Dissertation Universität-Gesamthochschule Paderborn 1986
- [63] Schumpe, A., Saxena, A.K., Fang, L.K. ,1987 Chem. Eng. Sci. 42 , S.1787
- [64] Brück, F.J., Hammer, H., 1986 Chem. Ing.- Tech. 58, S.60
- [65] Brück, F.J., Hammer, H., 1986 Ger. Chem. Eng. 9, S.382
- [66] Quicker, G., Alper, E., Deckwer, W. D., 1987 AIChE J., 33, S.871
- [67] Quicker, G., Schumpe, A., Deckwer, W. D. 1984, Chem.Eng. Sci. 39, S.179
- [68] Linder, D., Werner, M., Schumpe, A., 1988 AIChE J., 34, S. 1691

- [69] Ostergard, K., Davidson, J.F., Harrison, D.Fluidization, Academic Press, New York, 1977, S.773
- [70] Deckwer, W. D., Schumpe, A., 1983 Chem. Ing.-Tech. 55, S.591
- [71] Nguyen- Tien, K., Patwari, A.N., Schumpe, A., Deckwer, W.D., 1985 AIChE J.31, S.31 194
- [72] Kim, S. D., Kim, J.O. Can. J. 1990 Chem. Eng. 68 S.368
- [73] Weiß,W.: Thermische Verfahrenstechnik, Deutscher Verlag f
 ür Grundstoffindustrie, 1993
- [74] Brauer, H.Stoffaustausch-Maschinen, Chem. Ing. Tech. 58, 1986 Nr.2, S. 97
- [75] Schalakman, Y., Zadorski, V.M. Einfluss von Ventilschwingungen auf die Effektivität des Phasenkontaktes in Stoffaustauschapparaten. Theoretitsheskije Osnovy Khimitsheskoi Teknologii, Tom 14, Akademia Nauk SSSR, Moskva 1980, S.184.
- [76] Ostrovsky, G.M; Malyschev, P.A.; Aksenova, E.G.
 Über die Arbeit pulsierender Apparate im Resonanzregime. Teoretitsheskije
 Osnovy Khimitsheskoi
 Tekhnologii, Tom 24, Akademia Nauk SSSR, Moskva 1990, S. 835.
- [77] Hatami, R.
 Verkürzung der Reaktionszeit in Blasensäulen durch erzwungene Schwingungen, Industriefeuerung 1979, 15, S. 47

- [78] Mak, A.N.S.; Kuiper, P.C.; Hamersma, P.J.;Fortuin, J.M.H. Contiuous ion exchange in apulsed packed column containing structured packing: masstransfer – controlled kinetics. Chemical Engineering, Vol. 48, 1993, Nr.4, S. 701.
- [79] Aboukhres, M.R.
 Dissertation, 1995, Martin-Luther- Universität Halle Wittenberg, Fachbereich Verfahrenstechnik
- [80] Usui, T.
 Effect of pulsating flow on mass transfer in packed bed under Fe3
 plus- iron partikel system. Tetsu to Hagane v 77 n 7 July 1991, S. 913.
- [81] Iskakow, M.S.; Kashinskii, O.N.; Nakorykakov, V.E. Pulsation characteristics of the process of mass exchange between a solid spherical particle and a turbulized liquid. J Appl Mech Tech Phys V 27 n 6 Nov- Dec 1989, S. 850
- [82] Buikel, W.VDI-Berichte 218 (1974) 479
- [83] Buchholz, R., Tsepetonidis, I., Steinemann, J., Onken, U.Chem.-Ing.-Tech. 54 (1982) 840
- [84] Brentrup, L. Dissertation Universität Dortmund (1979)
- [85] Yu, B. Untersuchungen zum Stoffaustausch in Airlift- Schlaufenreaktoren mit suspendierten Feststoffen, Dissertation (1994) Dortmund Reihe 3: Verfahrenstechnik Nr. 352

[86] Prandlt, L.

Führer durch die Strömungslehre, 9. Auflage, Braunschweig, Viehweg Verlag Braunschweig (1990)

- [87] Deckwer, W.-D.Reaktionstechnik in Blassensäulen, Otto Salle Verlag, Frankfurt 1985
- [88] Dudukovic, M.P., Larachi, F., Multis, P.L.Multiphase reactors-revisited; Chem. Eng. Sci. 54(1999) 21, 1975-1995
- [89] Kuipers, J.A.M., van Swaaij, W.P.M.
 Computational fluid dynamics applied to chemical reactor engineering; Advances in Chemical Engineering, 24(1998), 227-327
- [90] Sokolichin, A., Eigenberger, G. Applicability of the standard k-ε turbulence model to the dynamic simulation of bubble columns. Partl : Detailed numerical simulation ; Chem. Eng.Sci. 54 (1999) 21, 2273-2284
- [91] Pfleger, D., Gomes, S., Gilbert, N., Wagner, H.-G.
 Hydrodynamic simulations of laboratory Scale bubble columns fundamental studies of the eulerian-eulerian modelling approach ; Chem.Eng.Sci. 54 (1999) 21, 5091-5099
- [92] Krishna, R., van Baten, J.M., Urseanu, M.I.
 Three phase eulerian simulations of bubble column reactors operating in the churn-turbulent regime : A scale up strategy ; Chem.Eng. Sci 55 (2000) 21, 3725-3286
- [93] Camarasa, E., Vial S. Poncin, C., Wild, G., Midoux, N. und Bouillard, J. Influence of coalescence behaviour of the Liquid and of gas sparging on hydrodynamics and bubble characteristics in a bubble column ; Chem.Eng. Processing 38 (1999), 329-344

- [94] Zahradnik, J., Fialova, M., Ruzicka, M., Drahos, J., Kastanek, F., Thomas, N.H.
 Duality of the gas-Liquid flow regimes in bubble column reactor; Chem.Eng.
 Sci. 52 (1997) 21/22, 3811-3826
- [95] Keitel, G., Onken, U.
 The effect of bubble size in air- water dispersions; Chem. Eng. Commun. 17(1982), 85-98
- [96] Chen, R.C., Reese, J., Fan, L.S.
 Flow structure in a three- dimensional bubble column and three- phase fluidised bed; AIChE J. 40 (7) 1994, 1093-1104
- [97] Sokolichin, A., Eigenberger, G., Lapin, A., Lübbert, A.
 Dynamic numerical simulation of gas-liquid two- phase flow; Chem. Eng. Sci.
 52 (1997) 4, 661-626
- [98] Torvik, R., Svendsen, H.F.Modeling of slurry reactors, a fundamental approach; Chem. Eng. Sci. 45 (1990) 8, 2325-2332
- [99] Jacobsen, H.A., Sannaes, B.H., Grevskott, S., Svendsen, H.F.
 Modeling of vertical bubble driven flows; Ind. Eng. Chem. Res. 36 (1997), 4052-4074
- [100] Grienberger, J.
 Untersuchung und Modellierung von Blasensäulen
 Dissertation, Universität Erlangen-Nürnberg, 1992
- [101] Celik, I., Wang, Y.Z.
 Numerical simulation of circulation in gas-liquid column reactors;
 Int.J.Multiphase Flow 20 (1994) 6,1053-1070

[102] Boisson, N., Malin, M.R.

Numerical prediction of two –phase flow in bubble columns; Int. J. for Numerical Methods in fluids 23 (1996), 1289-1310

[103] Ranade, V.V.

Modeling of turbulent flow in a bubble column reactor, Trans I ChemE, 75 (1997) Part A, 14-32

- [104] Thakre, S.S., Joshi, J.B. CFD simulation of bubble column reactor: Importance of drag force formulation; Chem. Eng. Sci. 54 (1999) 21, 5055-5060
- [105] Saynayal, J., Vasquez, S., Roy, S., Dudukovic, M.P.
 Numerical simulation of gas-liquid dynamics in cylindrical bubble column reactors; Chem.Eng.Sci. 54 (1999) 21, 5071-5083
- [106] Web, C., Que, F., Senior, P.R.
 Dynamic simulation of gas-liquid dispersion behavior in a 2-D bubble column; Chem.Eng. Sci 47 (1992) 13/14, 3305-3312
- [107] Lapin, A. ,Lübbert, A.Chaotic flow in bubble column reactors; Chem. Eng. Sci. 50 (1995) 16, 2661-2667
- [108] Lapin, A., Lübbert, A.
 Fluid dynamics in bubble column bioreactors :Experiments and numerical simulation; Biotechnology and Bioengineering 52 (1996), 248-258
- [109] Delnoij, E., Kuipers, J.A.M., van Swaaij, W.P.M.
 A three dimensional CFD model for gas-liquid bubble columns; Chem. Eng.
 Sci. 54 (1999) 21 ,2217-2226

[110] Lain, S., Bröder, D., Sommerfeld, M.

Experimental and numerical studies of the hydrodynamics in a bubble column Chem. Eng. Sci. 54 (1999) 21, 4913-4920

[111] Lo, S.

Application of population balances to CFD modelling of bubble flows via the MUSIG model ; 4 th International Conference on Gas- Liquid and Gas- Liquid- Solid Reactor Engineering, Delft, August 23-25, 1999

- [112] Kocamutafaogullari, G., Ishii, M.
 Foundation of the interfacial area transport equation and ist closure relations Int. J. Heat and Mass Transfer 38 (1995), 481-493
- [113] Ostrovsky, G.M., Briesovsky, J.
 Nutzung resonanter Schwingungen in der Prozesstechnik Fachtagung 25.September 2002, Halle/Saale
- [114] Turek, F. Energetische und kinetische Effekte bei resonanten Fluidschwingungen Fachtagung 25.September 2002, Halle/Saale
- [115] Keiji Yasuda,M., Tachi, M., Oga, Y., Bando, M. Nakamura Development of Airlift Bubble Column Sonochemical Reactor for Treatment of Wastewater Including Refractory Material, 5th Japanese – German Symposium, bubble columns 28.-30.5.(2000)
- [116] Forner, A., Großer, A. Pulsierende Relativbewegung zwischen Partikel und Fluid- Erwartung und Ergebnisse Fachtagung 25.September 2002, Halle/Saale
- [117] Devahastin, S., Mujumdar, A. S. Some hydrodynamic and mixing characteristics of a pulsed spouted bed dryer Powder Technology, 117 (2001) S.189-197.

- [118] Li , Z. Y., Nishimura, A., Kobayashi, N., Watanabe, F., Hasatani, M. Enhancement of Heat and Mass Transfer by Using Pused Fluidized Bed 6th World Congress of Chemical Engineering, Melbourne, Australia 23-27 September 2001.
- [119] Augustin, W., Bohnet, M. Einfluss einer pulsierernden Strömung auf das Foulingverhalten an wärmeübertragenden Flächen, Chem.Ing.Tech. (73)9/2001, S. 1139-1144.
- [120] Kataoka, H. et al. Journal of Chem. Eng. Of Japan 12 (1979) 2, S.105-110
- [121] Posarac, D.,Tekic,M.N. AIChE Journal 33 (1987) 3, S.497-499
- [122] Ostrovsky, G.M.Angewandte Mechanik inhomogener MedienVerlag Nauka, St. Petersburg, 2000
- [123] Delnolij, E., Lammers, F. Kuipers , J., Van Swaaij, W.
 Dynamic Simulation of dispersed gas-liquid two phase flow using a discrete bubble model. Chem. Eng. Sci., 52:1429-1458, 1997.
- [124] Sommerfeld, M., Decker, S., Kohnen, G. Time-dependent calculation of bubble columns based on Reynolds-averaged Navier Stokes equations with k-e turbulence model. In: Proceedings of the 2nd Japanese-German Symposium on Multi-Phase Flow, 1997.
Die vorliegende Arbeit entstand in der Zeit von März 1997 bis September 2003 am Institut für Umwelttechnik, Abteilung Apparate- und Anlagentechnik, der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg in Merseburg.

Erklärung

Hiermit erkläre ich an Eides Statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt sowie die aus den angegebenen Quellen entnommenen Stellen durch Zitate kenntlich gemacht habe.

Bashir Gebril Hussein Merseburg, den 14. 10. 2003