

Einfluss der Mikrokonvektion auf Selektivität und Stofftransport während der Verdunstung binärer Flüssigkeiten aus porösen Schichten

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktoringenieurin (Dr.-Ing.)

von Dipl.-Ing. Ilina Urukova

geb. am 10.02.1974 in Haskovo

genehmigt durch die Fakultät für Verfahrens- und Systemtechnik
der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

Gutachter: Prof. Dr.-Ing. habil. Evangelos Tsotsas
Prof. Dr.-Ing. habil. Dieter Mewes
Prof. Dr.-Ing. habil. Achim Kienle

Promotionskolloquium am 29.10.2004

Meiner Mutter gewidmet, einer wundervollen Frau

– mein Erfolg hätte sie mit Stolz erfüllt.

Vorwort

Die vorliegende Arbeit entstand in der Zeit von 2000 bis 2003 während meiner Tätigkeit als Promotionsstipendiatin am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg.

Mein Dank gilt vor allem Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. E. Tsotsas für die stetige Unterstützung und vielfältige Anregungen sowie die wichtigen fachlichen Diskussionen, ohne die diese Arbeit niemals in einer solchen Form gelungen wäre.

Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. D. Mewes und Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. A. Kienle danke ich für die Übernahme des Korreferates und für die gründliche Durchsicht der Arbeit. Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. K. Sundmacher danke ich für die Übernahme des Vorsitzes der Promotionskommission.

Bedanken möchte ich mich auch bei allen Mitarbeitern des Lehrstuhls für Thermische Verfahrenstechnik, die mir durch Kommentare, Diskussionen und technische Unterstützung geholfen haben. Mein besonderer Dank gilt hierbei Herrn Dr.-Ing. U. Sündermann für seine unendliche Hilfsbereitschaft bei vielen Kleinigkeiten des Lehrstuhllalltags sowie bei auftretenden Verwaltungsproblemen. Ich möchte meinen Dank Herrn D. Kürschner aussprechen, der mir bei den Arbeiten im Labor stets überaus kompetent mit Rat und Tat zur Seite stand. Herrn Dr.-Ing. S. Post, auf dessen Untersuchungen die vorliegende Arbeit aufbaut, bin ich für seine wichtigen Anregungen und Impulse sowie für die fruchtbaren fachlichen Diskussionen zu Dank verpflichtet. Herrn Dr. T. Metzger danke ich für die kritische Durchsicht und die hilfreichen Hinweise, die zum Entstehen dieser Arbeit beigetragen haben.

Weiterhin bedanke ich mich bei Frau Dipl.-Ing. K. Sahandzhieva, die im Rahmen ihrer Studien- und Diplomarbeit einen Beitrag zu der hier vorgestellten Arbeit geleistet hat. Erwähnen möchte ich noch Frau Dr. M. Kostova und Herr Prof. Dr. M. Christov von der Universität für Chemische Technologie und Metallurgie in Sofia, die während meines Studiums mein Interesse an der Wissenschaft geweckt haben.

Ganz besonders möchte ich mich bei meinem Freund Nikolay für sein großes Verständnis, für seine Geduld und die stete Unterstützung bedanken. Hätte er nicht ein derart harmonisches privates Umfeld geschaffen und dabei auch berufliche Ziele und persönliche Interessen hintergestellt, wäre diese Arbeit nicht in dieser Form möglich gewesen. Mein aufrichtiger Dank gebührt meiner Familie für die private Unterstützung und den entgegengebrachten Rückhalt.

Diese Arbeit wurde vom Land Sachsen-Anhalt finanziell unterstützt. Für diese Förderung sei gedankt.

Magdeburg, im November 2004

Ilina Urukova

Kurzreferat

Dass Mikrokonvektion zu einer u.U. wesentlichen Verbesserung des flüssigseitigen Stofftransportes bei zahlreichen Trennprozessen führen kann, wird in der Literatur seit langem zumindest vermutet. Entsprechend im Experiment beobachteten Effekte können aber bei den derzeit verfügbaren Berechnungsmethoden noch nicht mit hinreichender Genauigkeit berücksichtigt und systematisch erfasst werden. Die Schwierigkeit einer eingehenden theoretischen Beschreibung ist hierbei auf die Vielfalt der Effekte zurückzuführen. So müssen neben fluid-dynamischen Vorgängen diverse Betriebsparameter sowie Parameter des Stoff- und Wärmetransports in die Problemstellung mit einbezogen werden. Kenntnis über die Bedingungen, unter denen Phasengrenzkonvektionen auftreten, ist für die Aufstellung eines Stoffübergangsmodells eine wichtige Voraussetzung.

Die vorliegende Arbeit möchte zur weiteren Aufklärung des Einflusses flüssigseitiger Mikrokonvektionen (*Bénard-* bzw. *Marangoni*-Konvektion) auf den Stofftransport sowie zur Vorusberechnung dieser Effekte beitragen. Ausgehend von den Untersuchungen von Post [Post 1] wurde eine Messmethodik entwickelt, mit der die Selektivität während der Verdunstung binärer Gemische aus porösen Schichten in Trägergas messtechnisch zugänglich ist. Ein Modell zur Beschreibung der physikalischen Mechanismen der Verdunstung aus Schüttungen wurde ebenso entwickelt. Durch Anpassung des Modells an die Messergebnisse konnte der flüssigseitige Stoffübergangskoeffizient in Anwesenheit von Mikrokonvektion ermittelt werden. Seine Anwendung lieferte somit die Möglichkeit für die Entwicklung von Ansätzen zur Korrelation des *Enhancement*-Faktors, in welchem die Verbesserung des Stofftransportes infolge von Grenzflächenkonvektionen zusammengefasst werden kann.

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	i
Nomenklatur	iii
1 Einleitung	1
1.1 Einführung	1
1.2 Motivation und Ziel vorliegender Arbeit	2
1.3 Historischer Überblick zur <i>Marangoni</i> - bzw. <i>Bénard</i> -Konvektion	3
1.4 Struktur der Arbeit	8
2 Verdunstung von Flüssigkeitsgemischen	10
2.1 Vorhandene Modelle zur Beschreibung der Verdunstung	10
2.2 Modellvorstellung zur Verdunstung aus Schüttungen	12
2.2.1 Stofftransport während der Verdunstung	14
2.2.2 Wärmetransport während der Verdunstung	26
2.3 Einführung dimensionsloser Kennzahlen	36
2.4 Zusammenfassung	38
3 Versuchsmaterialien, -aufbau und Auswertungsmethoden	39
3.1 Versuchsmaterialien	39
3.1.1 Eigenschaften der Schüttung	39
3.1.2 Eigenschaften des binären Stoffsystems Isopropanol/Wasser	43
3.2 Versuchsaufbau	48
3.2.1 Beschreibung der Versuchsanlage	48
3.2.2 Versuchsdurchführung	54
3.3 Auswertungsmethoden	55
3.3.1 Bestimmung der gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten	55
3.3.2 Ermittlung der Selektivitätsverlaufskurven	60
3.3.3 Ermittlung der optimierten flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten ..	63
4 Ergebnisse und Diskussion	65
4.1 Einfluss der Gastemperatur	65
4.1.1 Ergebnisse der Versuche mit unterschiedlicher Gastemperatur für Konzen- trationen oberhalb des azeotropen Punktes	65
4.1.2 Ergebnisse der Versuche mit unterschiedlicher Gastemperatur für Konzen-	

trationen unterhalb des azeotropen Punktes	72
4.2 Einfluss der Schüttungsparameter h und \bar{d}_p	78
4.2.1 Ergebnisse der Versuche bei Variation der Schüttungshöhe	78
4.2.2 Ergebnisse der Versuche bei Variation des Partikeldurchmessers	85
4.2.3 Ergebnisse der Versuche bei Variation beider Schüttungsparameter	90
4.2.4 Vergleich mit anderen Autoren	94
4.3 Zusammenfassung der Ergebnisse	96
5 Korrelationen des <i>Enhancement</i>-Faktors	99
5.1 Erster Ansatz zur Korrelierung der Messergebnisse	99
5.2 Zweiter Ansatz zur Korrelierung der Messergebnisse	102
5.3 Nachrechnungen und Diskussion	106
6 Zusammenfassung	112
A Anhang	115
A.1 Stoffwerte	115
A.1.1 Isopropanol	115
A.1.2 Wasser	117
A.1.3 Luft	119
A.1.4 Isopropanol-Wasser-Gemisch	120
A.1.5 Isopropanol-Luft-Gemisch	124
A.1.6 Wasser-Luft-Gemisch	124
A.2 Ableitung der Phasengrenztemperatur nach <i>Post</i> [<i>Pos I</i>]	124
A.3 Darstellung von Korngrößenverteilungen	127
A.4 Umlinearisierung / Querempfindlichkeit	130
A.5 Dichtemessung	133
A.6 Übersicht über die durchgeführten Versuche	135
Literaturverzeichnis	152

Nomenklatur

Lateinische Buchstaben

a	Temperaturleitfähigkeit	m^2/s
a_i	normierte Luftvorbeladung der Komponente i	s. Gl. (2.17)
A	Vorbeladungskoeffizient	-
A	Wärme- und Stoffaustauschfläche	m^2
A_i	<i>Antoine</i> -Konstante	-
B_i	<i>Antoine</i> -Konstante	K
\tilde{c}_p	molare spezifische Wärmekapazität	$J/kmol\ K$
C	gaseitiger Absättigungskoeffizient	-
C_f	Formfaktor	-
C_i	<i>Antoine</i> -Konstante	-
d_h	hydraulischer Durchmesser	m
d_p	Partikeldurchmesser	m
D	Diffusionskoeffizient	m^2/s
D	Innendurchmesser der Messkammer	m
E	Energie	J
g	Erdbeschleunigung	m/s^2
h	Schüttungshöhe	m
\tilde{h}_i	molare spezifische Enthalpie der Komponente i	$J/kmol$
$\Delta\tilde{h}_{v,i}$	molare Verdampfungsenthalpie der Komponente i	$J/kmol$
H	Höhe der Messkammer	m
$K_{A,i}$	<i>Ackermann</i> -Korrekturfaktor	-
K_i	Gleichgewichtskonstante der Komponente i	-
M	Masse	kg
\tilde{M}_i	Molmasse der Komponente i	$kg/kmol$
n	<i>Lewis</i> -Exponent	-
n	molare Dichte	$kmol/m^3$
N	Stoffmenge	$kmol$
$N_{Ver,i}$	verdunstete Stoffmenge der Komponente i	$kmol$

\dot{N}	Stoffstrom	$kmol/s$
\dot{N}_i	Stoffstrom der Komponente i	$kmol/s$
p	Druck	Pa
p_i^0	Dampfdruck der Komponente i	Pa
q	relative Häufigkeit	mm^{-1}
Q	Verteilungssumme	-
\dot{Q}	Wärmestrom	W
\dot{i}_i	relativer Verdunstungsstrom der Komponente i	-
\tilde{R}	allgemeine Gaskonstante	$J/kmol\ K$
S_i	Selektivität der Komponente i	-
t	Verdunstungszeit	s
T	Temperatur	$^{\circ}C, K$
u	Durchströmungsgeschwindigkeit	m/s
u_i	Verdunstungsgeschwindigkeit	m/s
u_0	Leerrohrgeschwindigkeit	m/s
V	Volumen	m^3
\dot{V}	Volumenstrom	m^3/s
\tilde{V}_i	Molvolumen der Komponente i	$m^3/kmol$
$W_{g,i}$	gaseitiger Wirkungsgrad der Komponente i	-
\tilde{x}_i	Molenbruch der Komponente i in der Flüssigphase	-
\tilde{y}_i	Molenbruch der Komponente i in der Gasphase	-
\tilde{Y}_i	molare Luftbeladung mit der Komponente i	-

Griechische Buchstaben

α	Wärmeübergangskoeffizient	$W/(m^2\ K)$
β	Stoffübergangskoeffizient	m/s
γ_i	Aktivitätskoeffizient der Komponente i	-
Γ	dimensionsloser Geometrieterm	-
δ	Abbruchkriterium	-
η	dynamische Viskosität	$kg/(m\ s)$

κ	Permeabilität	m^2
λ	Wärmeleitfähigkeit	$W/m\ K$
ν	kinematische Viskosität	m^2/s
ρ	Dichte	kg/m^3
σ	Oberflächenspannung	N/m
Φ	Phasenumwandlungszahl	-
χ	Optimierungsgröße	-
ψ	Porosität	-

Dimensionslose Kennzahlen

α_{12}	thermodynamischer Trennfaktor	$\alpha_{12} = K_1/K_2$
Bi_i	<i>Biot</i> -Zahl der Komponente i	$Bi_i = n_g \beta_{g,i} / n_l \beta_l$
Eh	<i>Enhancement</i> -Faktor	$Eh = \beta_{l,opt} / \beta_{l,0}$
K_g	gasseitiger kinetischer Trennfaktor	$K_g = W_{g,2} / W_{g,1}$
K_l	flüssigseitiger kinetischer Trennfaktor	$K_l = \exp(-u_l / \beta_l)$
Le	<i>Lewis</i> -Zahl	$Le = a/D$
Ma_s	<i>Darcy</i> -modifizierte <i>Marangoni</i> -Zahl	$Ma_s = \Delta\sigma_l \kappa / \eta_l D_{l,eff} h$
$NTU_{g,i}$	Anzahl der gasseitigen Übertragungseinheiten der Komponente i	$NTU_{g,i} = n_g \beta_{g,i} A^* / \dot{N}_g$
Pr	<i>Prandtl</i> -Zahl	$Pr = \nu/a$
Ra_s	<i>Darcy</i> -modifizierte <i>Rayleigh</i> -Zahl	$Ra_s = \Delta\rho_l g h \kappa / \eta_l D_{l,eff}$
Re	<i>Reynolds</i> -Zahl	$Re = u d / \nu$
Sc	<i>Schmidt</i> -Zahl	$Sc = \nu/D$

Tiefgestellte Indizes

a	Austritt
ad	adiabat
Az	Azeotrop
$\ddot{a}q$	äquivalente Größe
bed	Schüttung
B	Kern

<i>e</i>	Eintritt
<i>eff</i>	effektive Größe
<i>Exp</i>	aus dem Experiment
<i>g</i>	Gasphase
<i>i</i>	Komponente <i>i</i>
<i>kin</i>	kinetisch
<i>l</i>	Flüssigphase
<i>opt</i>	optimierte Größe
<i>p</i>	Partikel
<i>pot</i>	potentiell
<i>Ph</i>	Phasengrenze
<i>Rech</i>	aus der Rechnung
<i>s</i>	Feststoff
0	zum Zeitpunkt $t=0$
1	Isopropanol
2	Wasser
3	Luft
∞	im unendlichen

Hochgestellte Indizes

\sim	molare Größe
–	Mittelwert
0	Normzustand ($p = 1 \text{ bar}$, $T = 0 \text{ °C}$)

1 Einleitung

1.1 Einführung

In der Natur entstehen oft wie von selbst geordnete Strukturen, für die es auf makroskopischer Ebene keine Erklärung zu geben scheint. In Wahrheit sind mikroskopische Gesetze für eine solche Strukturbildung verantwortlich. Dadurch, dass diese Gesetze im Kleinen wirken, sind sie uns schwer zugänglich und blieben lange verborgen. So wurden z.B. der toten Materie, mangels besserer Kenntnis, häufig Eigenschaften des Lebendigen zugesprochen.

Prominente Beispiele spontaner Strukturbildung an Oberflächen zwischen verschiedenen Medien sind die zellulär organisierten Strömungen der Hydrodynamik (z.B. *Bénard-Zellen*, *Taylor-Wirbel* [*Kos I*]), die Rollenstrukturen im Sand der küstennahen Flachgewässer oder der Dünen, die auf wachsenden Kristalloberflächen entstehenden Rippen- und Buckelmuster [*Ros I*] sowie die polygonalen Strukturen, die bei der Solidifikation heißer, flüssiger Substanzen (Lava, Legierungen, Glas, vgl. z.B. [*Dav I*]) auftreten. Man darf natürlich die Phänomene nicht vergessen, die uns im täglichen Leben begleiten. Dazu gehören die Konvektionszellen, die durch Sahne in Kaffee- oder Teetassen sichtbar werden, die leicht zu entdeckenden Zellen in erhitzten Olivenölfilmern oder das bekannte „Weintränenphänomen“, welches am Innenrand eines mit Wein gefüllten Glases zu beobachten ist. Das Fundament zum Verständnis dieser Erscheinungen bilden die Entdeckung der Grenzflächenkonvektionen infolge eines Grenzflächenspannungsgradienten durch den italienischen Physiker *C. Marangoni* (1840-1925) und die frühen Experimente von *H. Bénard* [*Bén I*] mit dünnen, von unten beheizten Flüssigkeitsschichten, bei denen die Konvektion durch den Auftrieb infolge eines Dichtegradienten in der Flüssigkeitsgrenzschicht verursacht wird.

Die Kenntnis und Optimierung von Grenzflächeneigenschaften bildet in vielen Industriezweigen die Grundlage zur Verbesserung von Produktionsprozessen und Produkteigenschaften. In der Textilindustrie beispielsweise werden Färbeprozesse vom Benetzungsverhalten der Fasern beeinflusst. Zur Entwicklung neuer Lacke auf Wasserbasis oder von Beschichtungen mit hohem Feststoff- und niedrigem Lösungsmittelanteil sind umfassende Untersuchungen von Grenzflächeneffekten notwendig. Instabilitätserscheinungen an einer Phasengrenze, die durch örtliche Inhomogenitäten der Dichte und/oder Grenzflächenspannung angetrieben werden, spielen bei den verschiedensten Trennprozessen der Verfahrenstechnik wie z.B. Extraktion,

Absorption, Rektifikation eine bedeutende Rolle, indem sie der grenzflächennahen Strömung entgegenwirken oder sie unterstützen können. Generell kann das Auftreten von Grenzflächenkonvektionen zu einer signifikanten Verbesserung des Stofftransportes führen und ist Gegenstand der Untersuchungen in dieser Arbeit.

1.2 Motivation und Ziel vorliegender Arbeit

Wichtige Trennprozesse beruhen auf den Konzentrationsunterschieden, welche sich im Gleichgewicht auf beiden Seiten einer Phasengrenze einstellen, und wären somit im Grenzfall als reversible Vorgänge denkbar. Kennzeichen kinetischer Trennprozesse ist hingegen ein selektierender Widerstand. Eine reversible Trennung wäre nur denkbar, wenn dieser Widerstand für die eine Komponente gleich Null, für die andere aber unendlich wäre. Derartige ideale semipermeable Membranen oder entsprechende selektive Widerstände lassen sich jedoch in der Praxis nicht verwirklichen. Kinetische Trennprozesse erreichen deshalb meist nur niedrige exergetische Wirkungsgrade. Man greift dennoch auf sie zurück, wenn Gleichgewichtsprozesse nicht oder nur schwer durchführbar sind, wie z.B. bei der Trennung azeotroper Gemische. Zum selben Prozesstyp kann die Verdunstung eines Alkohol-Wasser-Gemisches aus verschiedenen porösen Matrizen (Schüttungen, poröse Platte usw.) gezählt werden. Bereits durchgeführte Arbeiten zu dieser Problematik ([Sch 2], [Mar 3], [Rie 1]) zeigen, dass der flüssigseitige Stofftransportwiderstand, erzeugt durch die poröse Matrix, einen wesentlichen Einfluss auf den gesamten Verdunstungsprozess ausübt. Er behindert die bevorzugte Verdunstung der flüchtigeren Komponente aus dem binären Flüssigkeitsgemisch und lässt die Verdunstung in bestimmten Konzentrationsbereichen unselektiv verlaufen. Im Gegensatz dazu kommen andere Autoren ([Sch 7], [Pos 1]) durch Experimente und theoretische Betrachtungen zu der Erkenntnis, dass der Verdunstungsprozess auch bei vermeintlich dominierendem flüssigseitigen Stofftransportwiderstand selektiv verlaufen kann. Dafür werden Mikrokonvektionen innerhalb der flüssigen Grenzschicht verantwortlich gemacht, die als Folge von Instabilitäten an der Phasengrenze während des Stoffüberganges zustande kommen. Denn es setzen mikroskopische Strömungen ein, mit denen das System versucht, die vorhandenen Stabilitätsstörungen auszugleichen. Thermodynamisch gesehen, strebt jede Grenzfläche den Zustand kleinster Energie an und vergrößert dementsprechend ihren Anteil an Stoffen mit niedriger Grenzflächenspannung.

Trotz der Vielzahl von Arbeiten auf dem Gebiet der spontanen Strukturbildung in den verschiedenartigsten realen Systemen ist noch keine befriedigende physikalisch-

thermodynamische Theorie gefunden worden, die in der Lage wäre, diese Phänomene in allen ihren Ausprägungen zu beschreiben. Die Schwierigkeit ist hierbei auf die Komplexität der Effekte zurückzuführen. So müssen neben fluiddynamischen Vorgängen diverse Betriebsparameter sowie Parameter des Stoff- und Wärmetransports in die Problemstellung mit einbezogen werden. Die räumliche Vorstellung über die Form der Temperatur- und Konzentrationsprofile in der flüssigen Grenzschicht sowie die Kenntnis über die Bedingungen, unter denen Phasengrenzkonvektionen auftreten, sind für die Aufstellung eines theoretischen Modells wichtige Voraussetzungen.

Das genaue Ausmaß des Einflusses der Mikrokonvektionen auf den Stofftransport wurde erst vor kurzem von *Post* [*Pos 1*] durch systematische experimentelle und theoretische Untersuchungen der Verdunstung eines binären Gemisches aus ebenen Spalten in ein Inertgas festgestellt. *Post* konnte einen Ansatz zur Korrelierung seiner Ergebnisse angeben, indem er dimensionslose Kennzahlen verwendet, da eine exakte Lösung der gekoppelten Stoff-, Wärme- und Impulstransportgleichungen sehr schwierig wäre. Diese Korrelation geht jedoch von wesentlichen Annahmen aus und ist nur auf eine bestimmte Geometrie (ebene Spalte) beschränkt. Daher stellt sie nur einen ersten, eingeschränkten Versuch zur quantitativen Beschreibung des Einflusses von konvektiven Transportmechanismen auf den flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten dar. In der vorliegenden Arbeit werden die systematischen Analysen von *Post* fortgesetzt, wobei eine andere Geometrie – monodisperse Kugelschüttung – verwendet wird. Diese Wahl der porösen Matrix wurde im Hinblick auf die sehr breite praktische Anwendung von Festbetten in der Verfahrenstechnik (z.B. Füllkörpersäulen, Festbettreaktoren, aus primären Partikeln zusammengesetzte Produkte) getroffen. Somit wird angestrebt, neue quantitative Erkenntnisse über den Einfluss flüssigseitiger Mikrokonvektion auf den Stofftransport für den Fall der Verdunstung aus Schüttungen zu erhalten, weitere Möglichkeiten zur Vorausberechnung dieser Effekte zu finden und die Qualität der formulierten Aussagen gegenüber anderen Ansätzen abzusichern. Konkret wird gezeigt, dass sich Mikrokonvektionen durch entsprechende Wahl bestimmter Betriebsparameter steuern (verstärken oder unterdrücken) lassen und damit die Stoffaustauschprozesse wesentlich beeinflussen.

1.3 Historischer Überblick zur *Marangoni*- bzw. *Bénard*-Konvektion

Die *Marangoni*-Konvektion und die *Bénard*-Konvektion stellen die einfachsten Typen oberflächenspannungs- bzw. dichtegetriebener Konvektionsströmung dar. Ihre Bedeutung

wurde erst Anfang des 19. Jahrhunderts bei materialwissenschaftlichen Experimenten und Siedevorgängen erkannt. Seitdem sind Grenzflächenphänomene Gegenstand zahlreicher Untersuchungen, die zu einem beträchtlichen Fortschritt im Verständnis vieler der bereits genannten Erscheinungen geführt haben.

Ein detaillierter historischer Überblick über experimentelle Befunde, Forschungsergebnisse und Begriffsentwicklungen zum Thema *Marangoni*- bzw. *Bénard*-Konvektion bis zum heutigen Stand der Forschung ist beispielsweise bei *Wolf* [*Wol 1*] (1999) und *Post* [*Pos 1*] (2002) zu finden. Daher soll hier nur auf wesentliche Daten eingegangen werden.

Im Jahr 1854 beobachtete *Weber* [*Web 1*] gesetzmäßige zirkulierende Strömungen, die an der Oberfläche von Luftblasen in Spiritus nach lokaler Zugabe einer harzigen Lösung sowie an der Oberfläche von Tropfen eines Spiritus-Wasser-Gemisches entstehen. Er konnte jedoch keine physikalische Erklärung für das Verhalten der Flüssigkeiten geben. *J. Thomson* [*Tho 1*] war im Jahr 1855 einer der ersten Forscher, der eine Deutung der Phänomene versuchte und sie mit den Oberflächenenergien in Zusammenhang brachte. Zehn Jahre später konnte *C. Marangoni* [*Mar 1*] Grenzflächenbewegungen bei der Ausbreitung eines Ölfilmes auf der Wasseroberfläche experimentell nachweisen. Auf Basis dieser und weiterer Experimente wurde von ihm 1871 eine wichtige Veröffentlichung über das Ausbreiten von Flüssigkeitstropfen auf der Oberfläche einer Trägerflüssigkeit vorgelegt [*Mar 2*]. Darin zog er die Schlussfolgerung, dass sich Flüssigkeiten mit niedriger Oberflächenspannung auf Flüssigkeitsoberflächen mit größerer Oberflächenspannung ausbreiten. Sinngemäß kann er wohl so zitiert werden: „*Wenn durch irgendeine Ursache eine Oberflächenspannungsänderung entlang der freien Oberfläche einer Flüssigkeit auftritt, dann wird diese in Richtung der größeren Oberflächenspannung fließen*“. Die von *Thomson* vorgelegte Erklärung für die von ihm beobachteten Oberflächenströmungen blieb lange Zeit unbeachtet. Daher konnte damals niemand die Behauptung *Marangoni's* widerlegen, als erster die physikalische Ursache für die Strömungen erkannt zu haben. Entsprechend wird heute die Konvektion, die infolge von Grenzflächenspannungsgradienten entlang einer fluiden Phasengrenzfläche entsteht, als *Marangoni*-Effekt bezeichnet.

Grundsätzlich kann die lokale Änderung der Grenzflächenspannung durch Konzentrationsunterschiede einzelner Stoffkomponenten, Temperaturgradienten oder elektrokinetische Kräfte bedingt sein. Dadurch entstehen Tangentialspannungen entlang der Trennfläche, die eine Bewegung der angrenzenden Fluide in Richtung zunehmender Grenzflächenspannung verursa-

chen. Durch die Viskosität des Fluids erfolgt eine Übertragung der Strömung auf die tieferliegenden Flüssigkeitsschichten (s. Abb. 1.1).

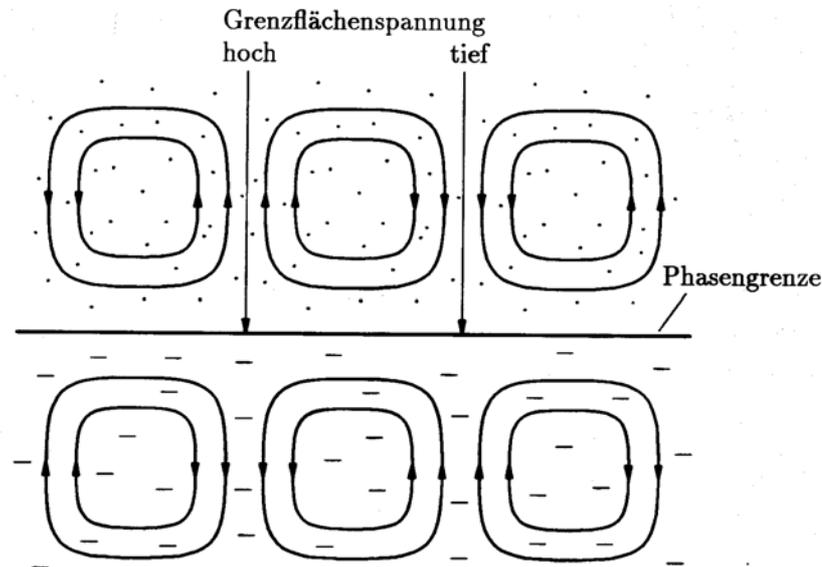


Abbildung 1.1: Schematische Darstellung der Rollzellenausbildung infolge von Grenzflächeninstabilitäten an einer ebenen Phasengrenze.

Bei seinen Experimenten in dünnen Flüssigkeitsschichten, die von unten beheizt wurden, beobachtete *Bénard* [*Bén 1*], [*Bén 2*] im Jahr 1900

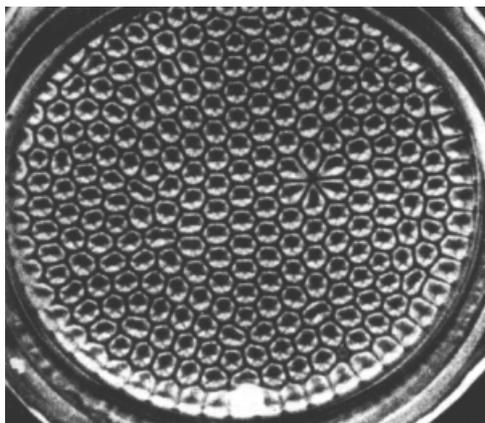


Abbildung 1.2: Konvektionszellen im Experiment von *Bénard* [*Bén 1*].

eine hexagonale Zellenmusterbildung (s. Abb. 1.2), die aufgrund von Konvektionen entstand. 1916 wurde von *Rayleigh* [*Ray 1*] die Konvektion bei Heizung von unten erneut untersucht. Dabei stellte er fest, dass diese durch den Auftrieb infolge eines Dichtegradienten in der flüssigseitigen Grenzschicht verursacht wurde. Durch die Anwendung einer linearen Stabilitätstheorie konnte *Rayleigh* zeigen, dass aufgrund eines Temperaturgradienten eine horizontale Flüssigkeitsschicht mit zwei freien Grenzen aus einem bewegungs-

losen Zustand in Bewegung gesetzt werden kann. Diese Konvektionsart wird in der Literatur als *Bénard*-Effekt bezeichnet.

Generell wird bei einer gleichmäßig von unten beheizten Flüssigkeitsschicht, die an ihrer Oberseite der umgebenden Luft ausgesetzt wird, eine Temperaturdifferenz in der Flüssigkeit ausgelöst. Dabei stellt sich im Gravitationsfeld eine thermisch instabile Dichteschichtung ein. Überschreitet die über der Schichthöhe anliegende Temperaturdifferenz einen kritischen Wert, so wird der wärmeleitende Zustand instabil und es entsteht spontan ein Muster hexagonaler Konvektionsrollen.

Grenzflächenkonvektionen können vielerorts und in verschiedenen Formen (Rollzellen, Wirbel, Eruptionen oder Oszillationen) beobachtet werden und ihr Erscheinungsbild ist oft recht komplex. So vermutete *G. Quincke* [*Qui 1*] im Jahr 1888 sogar, dass die Zellbewegungen in Organismen auf zellstoffwechselbedingte Grenzflächenkonvektionen zurückzuführen seien.

Jebsen-Marwedel [*Jeb 1*], [*Jeb 2*] bezeichnete 1947 den grenzflächenenergetischen Stoffübergang als „Schlierenwirbelphänomen“. Er erkannte die Bedeutung dieser Erscheinung für das Auftreten von Fehlern bei der Glasherstellung. So konnte er feststellen, dass bei nichthomogenen Glasschmelzen Bewegungen, die an der Oberfläche erzeugt wurden, in den Kern der Flüssigkeit eindringen und nach der Erstarrung die Qualität des Glases minderten. *Jebsen-Marwedel* versuchte ein Flüssigkeitspaar zu finden, welches ähnliche Ergebnisse bei Zimmertemperatur liefern würde. Dabei beobachtete er, dass beim Zulauf von Essigsäure auf Wasser ein spontaner Vermischungsprozess mit stark eruptiven Bewegung hervorgerufen wird. Auf Grundlage seiner Untersuchungen fanden *Jettmar* und *Roesler* [*Jet 1*] im Jahr 1948 heraus, dass die von ihm beobachteten Phänomene nur dann eintraten, wenn das Kriterium $(\rho_2 - \rho_1)(\sigma_2 - \sigma_1) < 0$ erfüllt war, wobei ρ_1, ρ_2 die Dichten und σ_1, σ_2 die Grenzflächenspannungen der beiden Flüssigkeiten bedeuten.

Die Untersuchungen von *J. B. Lewis* und *H. R. C. Pratt* [*Lew 1*] haben auf dem Gebiet der Phasengrenzkonvektionen einen neuen Startpunkt für weitere Arbeiten gesetzt. Sie beobachteten, dass sich bei einem hängenden Tropfen nicht nur eine diffusive Grenzschicht, sondern auch eine turbulente und von Eruptionen erfüllte Schicht ausbilden kann. Die Oszillation und die innere Zirkulation im Tropfen führten sie irrtümlicherweise auf die Einflüsse der Lösungswärme auf den Wert der Grenzflächenspannung zurück.

K. Sigwart und *H. Nassenstein* [*Sig 1*], und später *H. Kroepelin* und *H. J. Neumann* [*Kro 1*], beschäftigten sich mit den durch Unterschiede in der Grenzflächenspannung verursachten

freien Konvektionsströmen und ihrem Einfluss auf die Stoffübertragung. Sie führten die Begriffe „Eruption“ und „Irruption“ in der Literatur ein.

Die theoretische Formulierung des physikalischen Mechanismus hinter der Bildung einer geordneten Konvektionszellenstruktur im *Bénard*-Experiment sowie die Berechnung des Bereiches der linearen Stabilität erschien in den Arbeiten von *Pearson* [*Pea 1*] 1958 wie von *Sternling* und *Scriven* [*Ste 2*] 1959. *Pearson* erkannte, dass die zellenartige konvektive Bewegung, die bislang nur der Wirkung von Auftriebskräften zugeschrieben wurde, auch durch Oberflächenspannungskräfte ausgelöst werden kann. *Sternling* und *Scriven* [*Scr 1*], [*Scr 2*] entwickelten ein einfaches analytisches Modell, mit dem sie versuchten, das Auftreten geordneter Instabilitätserscheinungen infolge von Temperatur- und Konzentrationsgradienten zu erklären. Dabei zogen sie die Schlussfolgerung, dass die Grenzflächenkonvektion vom Verhältnis der kinematischen Viskositäten in den beiden angrenzenden Phasen, vom Verhältnis der Diffusionskoeffizienten der transportierten Komponenten sowie von der Größe der Konzentrationsänderung abhängt.

1963 griff *Sawistowski* [*Saw 1*], [*Saw 2*] die selbe Problematik zurück und befasste sich mit Grenzflächenkonvektionen, die durch Oberflächenspannungsunterschiede verursacht werden. Er untersuchte den Einfluss dieser Phänomene auf die Stoffübergangsgeschwindigkeiten bei der Flüssig-Flüssig-Extraktion. 11 Jahre später berichtete er über die neueren Fortschritte auf dem Gebiet [*Saw 4*].

Untersuchungen über das Verhalten eines Flüssigkeitsgemisches, das von der Oberfläche eines porösen Körpers verdunstet, wurden 1987 von *J. Schwarzbach*, *M. Nilles* und *E.-U. Schlünder* [*Sch 7*] durchgeführt. Unter Umständen konnte Selektivität bei dem ursprünglich als unselektiv erwarteten Verdunstungsprozess nachweisen werden. Dieses Verdunstungsverhalten erklären die Autoren mit dem Auftreten von Mikrokonvektionen innerhalb der von ihnen betrachteten porösen Platte. Bei dickeren Platten sei *Bénard*-Effekt der Steuermechanismus für die Verbesserung des Stofftransportes, während in dünneren Platten *Marangoni*-Effekt zur Selektivität führe.

1.4 Struktur der Arbeit

Heutzutage besteht kein Zweifel mehr darüber, dass die *Marangoni*- und *Bénard*-Konvektion eine dominierende Rolle beim Wärme- und Stoffübergang in technischen Prozessen mit Grenzflächen spielen kann. Hieraus ergibt sich nicht nur die Notwendigkeit zur Voraussage der zu erwartenden Intensität und Auswirkung der Grenzflächenkonvektion, sondern auch die Möglichkeit, durch Steuerung derselben aktiv in den Prozessablauf einzugreifen und somit die auftretenden konvektiven Ströme für die optimale Prozessführung nutzbar zu machen.

In diesem Zusammenhang wird in der vorliegenden Arbeit das Verhalten eines Isopropanol-Wasser-Gemisches bei seiner Verdunstung aus einer monodispersen Schüttung in Luft experimentell und theoretisch untersucht. Im betrachteten Fall hätte der Verdunstungsvorgang nach herkömmlicher Auffassung von einem großen flüssigseitigen Stofftransportwiderstand dominiert werden sollen. Ohne zusätzliche konvektive Transportmechanismen ist also ein diffusiver Stofftransport zu erwarten, welcher zu einem unselektiven Prozess führen würde. D.h., aufgrund des beträchtlichen Diffusionsweges, erzeugt durch die Schüttung, würde die bevorzugte Verdunstung der flüchtigeren Komponente verhindert werden. Tritt jedoch Mikrokonvektion auf, so wird die Flüssigkeit in der Nähe der Phasengrenze durchmischt, der Einfluss des künstlich erhöhten flüssigseitigen Stofftransportwiderstandes wird unterdrückt und somit die Selektivität wiederhergestellt. Dementsprechend wird die selektive Verdunstung aus Schüttschichten unter Bedingungen einer intensiven mikrokonvektiven Vermischung erforscht. Aber auch der Grenzfall eines unselektiven Verdunstungsverlaufes kann unter bestimmten Voraussetzungen experimentell verwirklicht werden.

Die Arbeit ist wie folgt aufgebaut:

In der Einleitung wird kurz auf die beiden Konvektionsarten des *Marangoni*- und *Bénard*-Typs eingegangen. Dabei ist es kaum das Anliegen, eine vollständige Literaturübersicht zu geben, vielmehr sollen die Ursachen und die Triebkräfte für die Erscheinung dissipativer Strukturen erläutert werden.

Die physikalischen Mechanismen der Verdunstung binärer Flüssigkeitsgemische und die dazugehörigen Grundgleichungen werden ausführlich in Kapitel 2 beschrieben. Dabei werden nur jene Grundmodelle und Erkenntnisse präsentiert, die für die Auswahl und die Formulierung des Modells zur Verdunstung aus Schüttungen wichtig sind. Im selben Kapitel werden

das Modell und die entsprechenden mathematischen Gleichungen zur Berechnung der Selektivitätsverläufe während der Verdunstung des binären Isopropanol-Wasser-Gemisches aus einer monodispersen Kugelschüttung dargelegt. Dieses Modell berücksichtigt nicht nur den Stofftransport, sondern auch den mit ihm gekoppelten Wärmetransport und greift zugleich auf die *Lewis*-Analogie in der Gas- und Flüssigphase zurück. Es dient zur Bestimmung der Zustandsvariablen an der Phasengrenze ($\tilde{x}_{i,Ph}$, T_{Ph}). Außerdem erlaubt die Anpassung des Modells an die Messungen die Ermittlung des flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten β_l in Anwesenheit von Mikrokonvektion. Hieraus ergibt sich die Möglichkeit, eine Korrelation für den sogenannten *Enhancement*-Faktor anzugeben, in welchem die Verbesserung des Stofftransportes infolge der Grenzflächenkonvektion zusammengefasst werden kann.

Kapitel 3 ist den einzelnen Messtechniken sowie den Methoden gewidmet, die zur Auswertung und Analyse der Experimente verwendet werden. Die Ergebnisse aus dem Experiment und der Berechnung werden im Kapitel 4 dargestellt und analysiert.

Zur Quantifizierung der Verbesserung des Stofftransportes aufgrund der Grenzflächenkonvektion werden im Kapitel 5 dimensionslose Kennzahlen (*Ra*-, *Ma*-, *Sc*-Zahl) verwendet, die die Entwicklung von Ansätzen zur Korrelation des *Enhancement*-Faktors *Eh* ermöglichen. Daraus lassen sich Aussagen zum besseren Verständnis der Mechanismen und dem Wechselspiel der einzelnen Konvektionstypen und -formen formulieren. Diese Ansätze werden im Anschluss mit der Korrelation von *Post* [*Pos 1*] für ebene Spalten verglichen und diskutiert. In Kapitel 6 folgt eine Zusammenfassung mit Diskussion einiger offener Probleme und ein Ausblick auf weitere mögliche Modell- und Korrelationserweiterungen.

Die detaillierten Herleitungen sämtlicher Differentialgleichungen sowie die Messdaten aus den durchgeführten Experimenten sind aus Gründen der Übersichtlichkeit im Anhang niedergelegt.

2 Verdunstung von Flüssigkeitsgemischen

Die Verdunstung von Flüssigkeitsgemischen gehört zu den Prozessen mit direktem Kontakt zwischen Flüssigkeit und Gas, die mit Wärmezufuhr verbunden sind. Wegen der gleichzeitigen Diffusion und relativen Bewegung mehrerer Komponenten in beiden beteiligten Phasen (gasförmig und flüssig) sowie der Kopplung zwischen Wärme- und Stoffübergang ist der Vorgang im allgemeinen komplex. Die zur Verdunstung des Gemisches benötigte Wärme wird entweder einer oder auch beiden Phasen entzogen. Die Phasengrenze wird üblicherweise als zweidimensionale Trennfläche betrachtet [Tok 1], an der sich die beiden angrenzenden Phasen im thermodynamischen Gleichgewicht befinden. Bezüglich des Phasengleichgewichtes unterscheidet man zwischen idealen und nicht idealen Gemischen, wobei im ersteren Fall die Gemischkomponenten ineinander vollständig löslich sind und gleiche Wechselwirkungen zwischen allen Molekülarten aufweisen. Bei realen Gemischen führen ungleiche Wechselwirkungen zwischen den verschiedenen Komponenten zu Abweichungen vom *Raoult'schen* Gesetz, die durch Aktivitätskoeffizienten berücksichtigt werden. Um eine einfache und klare Darstellung der Vorgänge zu gewährleisten, beschränken wir unsere Ausführungen auf flüssige Zweistoffgemische.

2.1 Vorhandene Modelle zur Beschreibung der Verdunstung

Ausgangspunkt für die Beschreibung der Verdunstung aus Schüttungen soll die Analyse der selektiven Verdunstung eines binären, vollständig mischbaren Stoffsystems in Inertgas sein. Diese Problematik ist in der Literatur hinreichend genau untersucht. Dabei gibt es unterschiedliche Modellvarianten, die von der Verdunstung aus einer freien Flüssigkeitsoberfläche (z.B. *Schlünder* [Sch 1]) bis hin zur Verdunstung binärer Flüssigkeiten aus porösen Körpern (*Post* [Pos 1]) reichen.

Eine grundlegende theoretische Problemlösung der Gemischverdunstung in einen trockenen Luftstrom wurde von *Schlünder* [Sch 1] unterbreitet. *Riede* und *Schlünder* [Sch 3] erweiterten diese Theorie, indem die Verdunstung in feuchte, mit den flüchtigen Komponenten teilweise vorbeladene Luft berücksichtigt wurde. Sie entwickelten Modellansätze zur Beschreibung der isothermen Verdunstung eines binären Flüssigkeitsgemisches von der freien Flüssigkeitsoberfläche in Trägergas hinein. Dabei nahmen sie an, dass die Dampfdrücke durch die festgelegte Flüssigkeitstemperatur bestimmt sind, so dass sie den Wärmeübergang nicht haben berücksich-

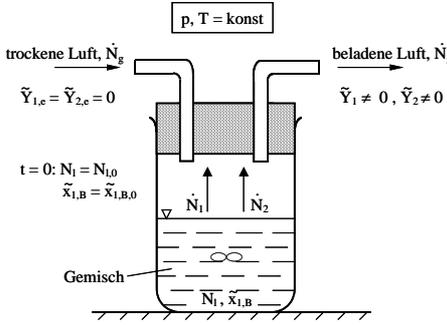
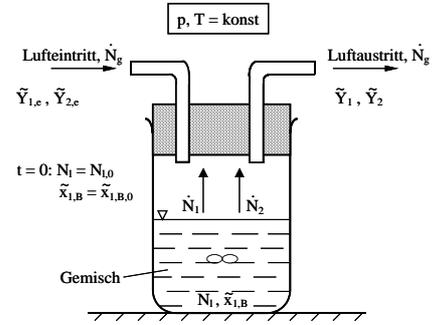
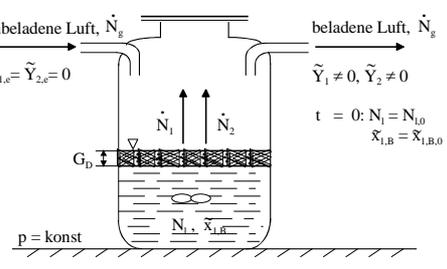
	<p>Dgl.: $d\tilde{x}_{1,B} = (\dot{r}_1 - \tilde{x}_{1,B}) d \ln(N_l / N_{l,0})$</p> <p>Lösung: $N_l / N_{l,0} = \exp \int_{\tilde{x}_{1,B,0}}^{\tilde{x}_{1,B}} d\tilde{x}_{1,B} / (\dot{r}_1 - \tilde{x}_{1,B}), \quad \dot{r}_1 = \dot{r}_1 \langle \tilde{x}_{1,B} \rangle$</p>
 <p>Schläuder [Sch 1], 1984</p>	$\dot{r}_1^2 + p \langle \tilde{x}_{1,B} \rangle \dot{r}_1 + q \langle \tilde{x}_{1,B} \rangle = 0$ $p \langle \tilde{x}_{1,B} \rangle = - \frac{1 + (1 - K_g / \alpha_{12})(\tilde{x}_{1,B} - K_l)}{(1 - K_g / \alpha_{12})(1 - K_l)}$ $q \langle \tilde{x}_{1,B} \rangle = \tilde{x}_{1,B} / (1 - K_g / \alpha_{12})(1 - K_l)$
 <p>Riede und Schläuder [Sch 3], 1990</p>	$\dot{r}_1^2 + p \langle \tilde{x}_{1,B} \rangle \dot{r}_1 + q \langle \tilde{x}_{1,B} \rangle = 0$ $p \langle \tilde{x}_{1,B} \rangle = \frac{1 + (1 - K_g / \alpha_{12})(\tilde{x}_{1,B} - K_l) - K_l (a_1 + a_2 K_g / \alpha_{12})}{(1 - K_g / \alpha_{12})(1 - K_l)}$ $q \langle \tilde{x}_{1,B} \rangle = (\tilde{x}_{1,B} - K_l a_1) / (1 - K_g / \alpha_{12})(1 - K_l)$
 <p>Post [Pos 1], 2002</p>	$\dot{r}_1 = (K_l \tilde{x}_{1,Ph} - \tilde{x}_{1,B}) / (K_l - 1)$ <p>Bestimmungsgleichung für $\tilde{x}_{1,Ph}$:</p> $\frac{(K_l - 1)(\tilde{x}_{1,Ph} - a_1)}{(K_l \tilde{x}_{1,Ph} - \tilde{x}_1)} - \left[\tilde{x}_{1,Ph} - a_1 + \frac{K_g (1 - \tilde{x}_{1,Ph} - a_2)}{\alpha_{12} \langle \tilde{x}_{1,Ph}, T_{Ph} \rangle} \right] = 0$ <p>Bestimmungsgleichung für T_{Ph}:</p> $T_{Ph} = \frac{\left(\frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,l,i}}{\alpha_l A_{Ph}} + 1 \right) T_{l,B} + \frac{\alpha_g}{\alpha_l} T_{g,B} - \frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \Delta \tilde{h}_{v,i} \langle \tilde{x}_{1,Ph}, T_{Ph} \rangle}{\alpha_l A_{Ph}}}{\frac{\alpha_g}{\alpha_l} + \frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,l,i}}{\alpha_l A_{Ph}} + 1}$

Abbildung 2.1: Übersicht ausgewählter Modelle zur Beschreibung der Verdunstung eines binären Flüssigkeitsgemisches in Trägergas.

sichtigen müssen. Unter dieser Annahme und im Grenzfall vernachlässigbar kleinen flüssigseitigen Stofftransportwiderstands, d.h. wenn die Verdunstung nur durch das thermodynamische Gleichgewicht und den gaseitigen Stofftransport bestimmt wird, sind sogar analytische Lösungen möglich.

Eine detaillierte Zusammenfassung über die Verdunstung eines Isopropanol-Wassergemisches von der Oberfläche einer Platte mit ebenen Spalten entstand kürzlich durch die Arbeit von *Post* [*Pos 1*]. Dem Modell von *Post* lag der Wunsch zugrunde, den Verdunstungsvorgang bei dominierendem Transportwiderstand in der flüssigen Phase zu beschreiben. Dabei nahm der Autor aus experimentellen Erfahrungen an, dass innerhalb der Spalte (innerhalb der Flüssigkeitsgrenzschicht) ein Temperaturgradient existiert, der nicht vernachlässigt werden darf. Das von ihm entwickelte Modell berücksichtigte deswegen den gesamten gekoppelten Stoff- und Wärmetransport und griff zugleich auf die Lewis-Analogie in der Gas- und Flüssigphase zurück. Es ermöglichte die Bestimmung der Phasengrenztemperatur T_{ph} und stellte damit eine Erweiterung der bereits bekannten Ansätze zur Beschreibung der Verdunstung dar. In Abb. 2.1 sind die Prinzipskizzen und die Grundgleichungen der diskutierten Modelle zusammengestellt.

2.2 Modellvorstellung zur Verdunstung aus Schüttungen

Auf Basis der Modellansätze von *Schlünder* [*Sch 1*] und *Post* [*Pos 1*] wird im folgenden ein erweitertes Modell zur Beschreibung der physikalischen Mechanismen bei der Verdunstung aus Schüttungen dargestellt. Die theoretischen Ansätze können unter Bezugnahme auf Abb. 2.2 abgeleitet werden. Diese Abbildung gibt eine vereinfachte Darstellung der entsprechenden Bilanzräume einschließlich der übergehenden Stoff- und Wärmeströme während der Verdunstung wieder.

Das im Flüssigkeitsraum vorliegende binäre Gemisch zweier flüchtiger Komponenten (z.B. Isopropanol – Index 1 – und Wasser – Index 2) wird mit Luft des Mengenstroms \dot{N}_g überströmt. In der Flüssigkeit ist eine monodisperse Kugelschüttung der Höhe h eingelegt, an deren Oberfläche das Gemisch verdunstet. Dabei nimmt der Luftstrom die Verdunstungsströme \dot{N}_1 und \dot{N}_2 auf. Dadurch ändern sich im allgemeinen die Flüssigkeitsmenge N_l sowie deren Zusammensetzung $\tilde{x}_{1,B}$ mit der Zeit. Der Umgebungsdruck p und die Temperatur im Kern der Flüssigkeit $T_{l,B}$ bleiben konstant. Das Gemisch im Flüssigkeitsraum soll ideal durchmischt sein.

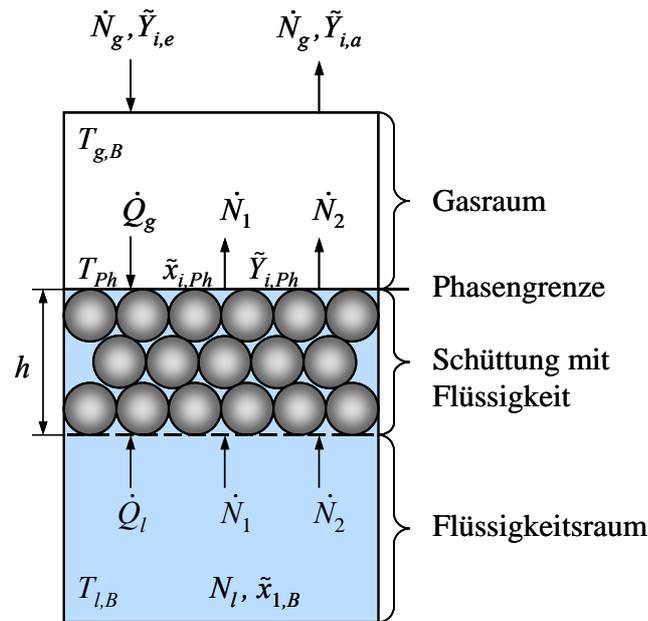


Abbildung 2.2: Skizze der Bilanzräume und der übergehenden Stoff- und Wärmeströme bei der Verdunstung eines binären Gemisches durch eine monodisperse Schüttung aus Kugeln gleicher Größe.

Das in dieser Arbeit verwendete Gemisch Isopropanol/Wasser weist eine sogenannte positive Abweichung vom idealen thermodynamischen Verhalten auf (s. [Mer 1]). Das bedeutet, dass für $\tilde{x}_{1,B} > \tilde{x}_{1,Az}$ die Komponente 2 (Wasser) und für $\tilde{x}_{1,B} < \tilde{x}_{1,Az}$ die Komponente 1 (Alkohol) bevorzugt verdunstet. Der Punkt, an dem die Gemischzusammensetzung während der Verdunstung unverändert bleibt, d.h. $\tilde{x}_{1,B} = \tilde{x}_{1,Az}$, wird als Azeotrop bezeichnet.

Bei der Verdunstung von solchen Zweistoffgemischen in ein Trägergas hängt die Trennwirkung grundsätzlich nicht allein von der relativen Flüchtigkeit, sondern auch von den Diffusionsgeschwindigkeiten der Komponenten im Inertgas ab. Bei kurzen Kontaktzeiten zwischen der Flüssigkeit und dem Gas kann sich in der Abluft die schneller diffundierende Komponente (Wasser) bevorzugt gegenüber dem leichter flüchtigen Isopropanol anreichern, wenn die relative Flüchtigkeit des Alkohols nicht zu groß ist und die größere Diffusionsgeschwindigkeit des Wasserdampfes in der Luft überspielen kann. Neben dem thermodynamischen Trenneffekt zeigt sich der sogenannte kinetische Trenneffekt, der auf den unterschiedlich großen Diffusionsgeschwindigkeiten der beiden Komponenten basiert.

Aus den theoretischen Analysen des Problems nach *Schlünder* [Sch 1] und *Post* [Pos 1] ist festzustellen, dass der Phasenübergang während der Verdunstung eines binären Flüssigkeits-

gemisches und damit die Selektivität des Prozesses

- vom Wärme- und Stofftransport in der Gasphase,
- vom Wärme- und Stofftransport in der Flüssigphase,
- und vom Dampf-Flüssigkeitsgleichgewicht

abhängt. Im folgenden sollen die wirksamen Mechanismen, nämlich Stoffübertragung, Phasengleichgewicht und Wärmeübertragung, nacheinander für den Fall der Verdunstung eines binären Stoffgemisches aus einer monodispersen Kugelschüttung vorgestellt werden.

2.2.1 Stofftransport während der Verdunstung

Selektivität

Wie im Abschnitt 2.1 schon erwähnt wurde, beruht die Modellierung des Stofftransports für den Fall der Verdunstung aus einer monodispersen Kugelschüttung auf dem von *Schlünder* [Sch I] unterbreiteten Modell der isothermen Verdunstung eines binären Gemisches in unbeladene Luft hinein. Sie hat das Ziel, die wichtigste Größe, die den Verdunstungsprozess kennzeichnet, nämlich die Selektivität S_1 , derart zu formulieren, dass sich diese aus den Stoffdaten der Gemischkomponenten und den charakteristischen Größen des Verdunstungssystems berechnen lässt. Die Selektivität gibt die mögliche Abweichung der Zusammensetzung des entstehenden Dampfes von der Flüssigkeitszusammensetzung wieder und ist nach *Schlünder* [Sch I] wie folgt definiert:

$$S_1 = \dot{r}_1 - \tilde{x}_{1,B} \cdot \quad (2.1)$$

Darin werden mit

$$\dot{r}_1 = \frac{\dot{N}_1}{\dot{N}_1 + \dot{N}_2} = \frac{\dot{N}_1}{\dot{N}} \quad (2.2)$$

der relative Stoffstrom und mit $\tilde{x}_{1,B}$ der Molenbruch der Komponente 1 in der Flüssigkeit bezeichnet.

Die Größe \dot{r}_1 beschreibt das Verhältnis des Stoffstroms der Komponente 1 zum Gesamtstoffstrom über die Stoffaustauschfläche. Bei einem positiven Wert der Differenz in Gl. (2.1), d.h. ($S_1 > 0$), verdunstet bevorzugt das Isopropanol, und das Wasser wird im Gemisch angereichert. Im Falle eines negativen Wertes ($S_1 < 0$) kommt es zur bevorzugten Verdunstung des Wassers, und die Konzentration des Alkohols steigt im Laufe des Prozesses im Gemisch an. Bleibt die Gemischzusammensetzung unverändert, d.h. ($S_1 = 0$), dann verläuft die Verdunstung unselektiv.

Stoffbilanzen

Man geht von der Gesamtstoffbilanz in der Flüssigkeit aus

$$-\dot{N} = -\dot{N}_1 - \dot{N}_2 = dN_l / dt, \quad (2.3)$$

wobei \dot{N}_1 und \dot{N}_2 die Verdunstungsströme der beiden Komponenten, N_l die Flüssigkeitsmenge und t die Zeit darstellen.

Die Stoffbilanz für jede einzelne Komponente i ($i = 1, 2$) lautet in der Gasphase

$$\dot{N}_g (\tilde{Y}_{i,e} - \tilde{Y}_{i,a}) + \dot{N}_i = 0 \quad (2.4)$$

und in der Flüssigkeitsphase

$$-\dot{N}_i = d(N_l \tilde{x}_{i,B}) / dt = N_l d\tilde{x}_{i,B} / dt + \tilde{x}_{i,B} dN_l / dt. \quad (2.5)$$

$\tilde{Y}_{i,e}$ und $\tilde{Y}_{i,a}$ sind die molaren Luftbeladungen mit der Komponente i am Eintritt bzw. Austritt.

Kinetik

Mit der Kinetik des Stoffübergangs können weiterhin aus den Konzentrationsgefällen die übergehenden Stoffströme bestimmt werden. Bei sehr kleinen Verdunstungsraten ($\tilde{y}_i \ll 1$), d.h. bei Überschuss der inerten Komponente, gilt $\tilde{y}_i \approx \tilde{Y}_i$. In diesem Fall ist es sinnvoll, statt der allgemeinen Lösung der *Stefan-Maxwell-Gleichungen*, vorgeschlagen von *Krishna* und

Standart [Kri 2], [Kri 3], einen linearisierten kinetischen Ansatz zur Berechnung der Stoffströme zu verwenden. Unter der Annahme idealer Rückvermischung und bei Vernachlässigung der Wechselwirkungen zwischen den Komponenten in der Gasphase lautet der Ansatz

$$\dot{N}_i = n_g A^* \beta_{g,i} (\tilde{Y}_{i,Ph} - \tilde{Y}_{i,a}). \quad (2.6)$$

Hierin sind n_g die molare Gasdichte, A^* die tatsächliche Stoffaustauschfläche für den Fall der Verdunstung aus einer Schüttung, $\beta_{g,i}$ der gaseitige Stoffübergangskoeffizient der Komponente i und $\tilde{Y}_{i,Ph}$ die Luftbeladung mit der Komponente i an der Phasengrenzfläche. Für die Bestimmung der tatsächlichen Stoffaustauschfläche in der Gleichung der Gasphasenkinetik wurde eine Reihe von Reinstoffexperimenten (s. Abschnitt 3.3.1) bei unterschiedlicher Temperatur im Kern der Gasphase mit und ohne Schüttung durchgeführt. Daraus ließ sich diese berechnen zu

$$A^* = A_{Ph} \frac{\psi}{1-\psi}, \quad (2.7)$$

wobei ψ die Porosität der Schüttung und A_{Ph} die Stoffaustauschfläche für den allgemeinen Fall der Verdunstung aus einer freien Flüssigkeitsoberfläche (ohne Schüttung) sind.

Bei höheren Konzentrationen der übergehenden Stoffkomponenten im Trägergas müssen die Wechselwirkungseffekte der Mehrkomponentendiffusion in der Gasphase in Form von Korrekturfaktoren berücksichtigt werden. Dieser Fall wurde ausführlich von *Riede* diskutiert [Rie 1].

Der Stofftransport in der flüssigen Phase lässt sich mit einem logarithmischen Ansatz beschreiben,

$$\dot{N}_i = n_l A_{Ph} \beta_l \dot{r}_i \ln \frac{\dot{r}_i - \tilde{x}_{i,Ph}}{\dot{r}_i - \tilde{x}_{i,B}}. \quad (2.8)$$

n_l ist dabei die molare Dichte des binären Gemisches und $\tilde{x}_{i,Ph}$ der Molenbruch der i -ten Komponente an der Kontaktfläche zwischen beiden Phasen. An dieser Stelle soll zusätzlich erläutert werden, welchen Einfluss die feste Phase auf den Stofftransport in der flüssigen Pha-

se ausübt und wie er in den Modellgleichungen berücksichtigt wird. Der Verdunstungsprozess wird von der festen Phase insofern beeinflusst, dass diese einen Teil des zur Verfügung stehenden Gesamtquerschnittes A_{ph} versperrt und somit die Bewegung der übergehenden Stoffströme behindert (s. Abb. 2.3). Dieser Effekt wird in der Definition des flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten β_l berücksichtigt (s. Gl. (2.15)).

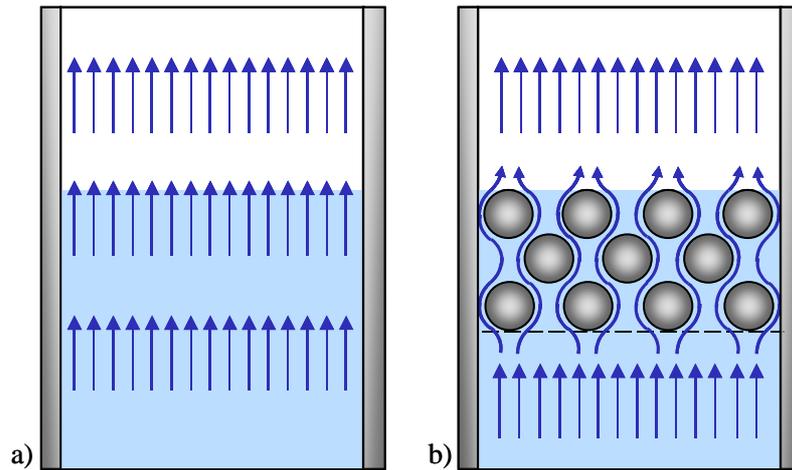


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Stoffströme in einem feststofffreien Flüssigkeitsraum (a) und durch eine Kugelschüttung (b).

Phasengleichgewicht

Unter der Annahme, dass an der Gas-Flüssig-Phasengrenze thermodynamisches Gleichgewicht herrscht, lässt sich die Gleichgewichtskonstante der Komponente i wie folgt definieren

$$K_i = \frac{\tilde{y}_{i,Ph}}{\tilde{x}_{i,Ph}} \approx \frac{\gamma_i \langle \tilde{x}_{i,Ph} \rangle p_i^0}{p}, \quad (2.9)$$

wobei die Aktivitätskoeffizienten γ_i nach der *UNIQUAC*-Methode (s. Anhang A.1) und die Sattdampfdrücke p_i^0 mit der *Antoine*-Gleichung (s. Anhang A.1) berechnet werden. Die getroffene Annahme ist zulässig, solange die Verdunstungsgeschwindigkeiten der beiden Komponenten relativ niedrig sind, da bei diesen Bedingungen der Phasendurchtrittswiderstand vernachlässigt werden kann.

Das Verhältnis zwischen beiden Gleichgewichtskonstanten der Komponenten im Gemisch wird als thermodynamischer Trennfaktor α_{12} formuliert und charakterisiert ebenfalls das Gleichgewicht an der Phasengrenze

$$\alpha_{12} = \frac{K_1}{K_2} = \frac{\tilde{y}_{1,Ph}/\tilde{y}_{2,Ph}}{\tilde{x}_{1,Ph}/\tilde{x}_{2,Ph}}. \quad (2.10)$$

Kopplung

Durch Kopplung von Bilanz-, Kinetik- und Phasengleichgewichtsgleichungen ergibt sich folgende Differentialgleichung, die zur Bestimmung der Zusammensetzungsverlaufskurven verwendet wird. Sie beschreibt den Zusammenhang zwischen dem relativen molaren Flüssigkeitsinhalt und der Konzentration im Kern des Flüssigkeitsgemisches:

$$d\tilde{x}_{1,B} = (\dot{r}_1 - \tilde{x}_{1,B}) \frac{dN_l}{N_l} = S_1 d \ln \left(\frac{N_l}{N_{l,0}} \right). \quad (2.11)$$

Gleichung (2.11) stellt einen Bestimmungsansatz für die Selektivität dar, die als Steigung der logarithmisch aufgetragenen experimentellen Verlaufskurve $\tilde{x}_{1,B} \langle N_l/N_{l,0} \rangle$ interpretiert werden kann. Diese Gleichung wird integrierbar, sobald eine Bestimmungsgleichung für \dot{r}_1 hergeleitet werden kann.

Nach Umformung des kinetischen Ansatzes für die flüssige Phase, Gl. (2.8), ergibt sich der relative Stoffstrom \dot{r}_1 zu

$$\dot{r}_1 = \frac{K_l \tilde{x}_{1,Ph} - \tilde{x}_{1,B}}{K_l - 1}, \quad (2.12)$$

worin die Konzentration an der Phasengrenzfläche $\tilde{x}_{1,Ph}$ als unbekannte Größe vorkommt und für die Lösung von Gl. (2.11) jetzt noch fehlt. Sie ergibt sich durch Kopplung von Gln (2.2), (2.4) und (2.12) aus der Beziehung

$$\frac{(K_l - 1)(\tilde{x}_{1,Ph} - a_1)}{(K_l \tilde{x}_{1,Ph} - \tilde{x}_{1,B})} - \left\{ \tilde{x}_{1,Ph} - a_1 + \left[\frac{K_g}{\alpha_{12}} (1 - \tilde{x}_{1,Ph} - a_2) \right] \right\} = 0, \quad (2.13)$$

so dass schließlich auch die Selektivität S_1 der Verdunstung berechnet werden kann. Um diese recht kompakte Darstellung zu bekommen, wurden K_l , a_i und K_g als nach *Schlünder* [Sch 1], [Sch 3] definierte dimensionslose Kenngrößen eingeführt. Hierbei ist

$$K_l = \exp\left(-\frac{\dot{N}}{n_l A_{ph} \beta_l}\right) = \exp\left(-\frac{u_l}{\beta_l}\right) \quad (2.14)$$

der flüssigseitige kinetische Trennfaktor, der das Verhältnis von Verdunstungsgeschwindigkeit u_l zu flüssigseitigem Stoffübergangskoeffizienten β_l beschreibt. Der exponentielle Zusammenhang ergibt sich aus der Tatsache, dass einseitiger Stofftransport vorliegt. D.h., es werden über die Phasengrenzfläche Stoffströme der beiden Gemischkomponenten in das Gas transportiert, wobei die Phasengrenzfläche für die Luft jedoch undurchlässig ist.

Ausgehend von Gln (2.12) und (2.14) stellt man folgendes fest: Ist der gesamte Verdunstungsstrom \dot{N} gering gegenüber dem Wert $n_l A_{ph} \beta_l$, so strebt K_l gegen eins und der Molenbruch der Komponente 1 an der Phasengrenze $\tilde{x}_{1,ph}$ nimmt den Wert des Molenbruchs derselben im Kern der Flüssigkeit $\tilde{x}_{1,B}$ an, d.h. für diese Bedingungen existiert kein Konzentrationsgradient in der Flüssigkeit und die Verdunstung wird gasseitig kontrolliert. Der andere Grenzfall wird für $\dot{N} \gg n_l A_{ph} \beta_l$ erreicht. In diesem Fall strebt \dot{r}_1 gegen $\tilde{x}_{1,B}$ und das Gemisch verdunstet wie ein Azeotrop. Hierbei dominiert der flüssigseitige Stofftransportwiderstand.

Bei der Bestimmung der Stoffübergangskoeffizienten in der flüssigseitigen Grenzschicht bezieht sich *Post* [Pos 1] auf die Arbeit von *Whitman* und *Lewis* [Whi 1], in welcher der Stofftransport als quasistationäre, molekulare Diffusion in einer dünnen, viskosen Unterschicht nach dem ersten *Fick'schen* Gesetz behandelt wird. Außerhalb dieser laminaren Grenzschicht sorgt eine konvektive Strömung für die vollständige Durchmischung der Kernphase. Diese einfache Modellvorstellung ist gültig, solange die Diffusionskoeffizienten der einzelnen Gemischkomponenten gleich sind. In dieser Arbeit beschränken wir uns auf die Untersuchung binärer Flüssigkeitsgemische. Für diese gilt generell $D_{l,12} = D_{l,21} = D_l$, weshalb das sogenannte Filmmodell hier angewendet werden kann. Unter diesen Voraussetzungen und für den Fall ohne Grenzflächenkonvektion wird analog zu *Post* [Pos 1] die messtechnisch unzugängliche

Grenzschichtdicke in der Flüssigphase durch die Höhe h der Schüttung ersetzt (s. Abb. 2.2). Da die verdunstenden Komponenten die Schüttung in diesem Fall durch molekulare Diffusion überwinden müssen, lässt sich daraus ein minimal möglicher flüssigseitiger Stoffübergangskoeffizient definieren zu

$$\beta_i = \beta_{i,0} = \frac{D_{l,eff}}{h} \quad (2.15)$$

mit

$$D_{l,eff} = D_l \left(1 - \sqrt{1 - \psi}\right). \quad (2.16)$$

Der empirische Ansatz für den effektiven Diffusionskoeffizienten $D_{l,eff}$, der die Hemmung der Diffusion durch die Schüttung berücksichtigt, ist aus der Literatur [Zeh 1] bekannt und gilt für nicht durchströmte Schüttungen. ψ ist die Porosität der Schüttung und h ist die Schüttungshöhe (die artifizielle Grenzschichtdicke der flüssigen Phase). Im Kapitel 3 wird näher auf diese Parameter eingegangen.

Bildet sich während und wegen des Stoff- und Wärmetransports ein Konzentrations- und/oder Temperaturgradient in der flüssigen Grenzschicht aus, dann stellt sich u.U. neben der Diffusion eine Grenzflächenkonvektion mit ihren spezifischen Bewegungen ein. In diesem Fall ist β_i **unbekannt** und wird nach punktueller Anpassung der berechneten und experimentell ermittelten Selektivitätsverläufe bestimmt. Abschnitt 3.3.3 ist der Lösungsmethodik zur Ermittlung von β_i in Anwesenheit von Mikrokonvektion gewidmet.

Die dimensionslose Kenngröße

$$a_i = \frac{\tilde{Y}_{i,e}}{K_i} = \frac{\tilde{Y}_{i,e}}{\tilde{y}_{i,Ph}} \tilde{x}_{i,Ph} \quad (2.17)$$

ist die relative Luftvorbeladung mit der Komponente i . Sie wurde an dieser Stelle für den allgemeinen Fall der Verdunstung in einem Trägergas formuliert, obwohl im Rahmen dieser Arbeit nur die Verdunstung in trockene Luft betrachtet wird. Die Rechnungen werden bei vernachlässigbarer Luftvorbeladung ($a_i = 0$) ausgeführt. K_g stellt den gaseitigen kinetischen

Trennfaktor dar, der die Trennwirkung auf Grund der unterschiedlichen Diffusionsgeschwindigkeiten der beiden Komponenten in der gasseitigen Grenzschicht beschreibt. Für ihn gilt das Verhältnis

$$K_g = \frac{W_{g,2}}{W_{g,1}}, \quad (2.18)$$

wobei $W_{g,1}$ und $W_{g,2}$ die gasseitigen Absättigungswirkungsgrade der beiden Komponenten bezeichnen. Durch Einsetzen der Gasphasenkinetik, Gl. (2.6), in die Bilanzgleichung (2.4) und gleichzeitige Einführung der Anzahl der Übertragungseinheiten $NTU_{g,i}$, lässt sich $W_{g,i}$ für den Fall idealer Rückvermischung der Gasphase bestimmen zu

$$W_{g,i} = \frac{NTU_{g,i}}{1 + NTU_{g,i}} \quad (2.19)$$

mit

$$NTU_{g,i} = \frac{n_g \beta_{g,i} A^*}{\dot{N}_g} = \frac{\beta_{g,i} A^*}{\dot{V}_g}. \quad (2.20)$$

Bei hohem Gasvolumenstrom \dot{V}_g ergibt sich für K_g folgender Grenzwert:

$$\lim_{NTU_{g,i} \rightarrow 0} K_g = \frac{\beta_{g,2}}{\beta_{g,1}} = \left(\frac{D_{g,2}}{D_{g,1}} \right)^n. \quad (2.21)$$

Der Wert des Exponenten n hängt von der Strömungsform im Gasraum ab, und variiert zwischen 0,5 für turbulente Strömung und 1 für eine laminare Grenzschicht konstanter Dicke (s. *Krischer* und *Kast* [Kri 1]). Die gasseitigen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_{g,i}$ werden experimentell aus Vorversuchen mit den reinen Stoffen ermittelt. Die Ergebnisse sind unter der Annahme $\tilde{y}_i \ll 1$ auf Gemischversuche übertragbar und werden in Abschnitt 3.3.1 vorgestellt.

Bei der Ableitung der Gl. (2.13) sind insgesamt fünf dimensionslose Größen definiert, die von der Zusammensetzung an der Phasengrenze $\tilde{x}_{i,ph}$ abhängen und die Selektivität wesentlich beeinflussen. Das sind:

- der gaseitige kinetische Trennfaktor, K_g ,
- der flüssigseitige kinetische Trennfaktor, K_l ,
- der thermodynamische Trennfaktor, α_{12} und
- die beiden relativen molaren Luftvorbelastungen, a_i .

Für die nur iterativ mögliche numerische Berechnung von Gl. (2.13) wurde in dieser Arbeit analog zu *Post* [*Pos 1*] ein Intervallschachtelverfahren (*Runge-Kutta*-Verfahren) in den Grenzen $0 \leq \tilde{x}_{i,ph} \leq 1$ verwendet. Aus rechentechnischen Gründen im Sinne der Stabilität des Rechenprogramms wurde ein von *Blumberg* [*Blu 1*] empfohlener Ausdruck für den kinetischen Trennfaktor verwendet, der lautet

$$K_l = \exp\left(-\frac{Bi_1}{NTU_{g,1}} C (1-A)\right) \quad (2.22)$$

mit der *Biot*-Zahl, angegeben als Verhältnis zwischen „innerem“ flüssigseitigen Stoffübergangswiderstand und „äußerem“ gaseitigen Stoffübergangswiderstand

$$Bi_1 = \frac{n_g \beta_{g,1}}{n_l \beta_l}, \quad (2.23)$$

dem gaseitigen Absättigungskoeffizienten

$$C = W_{g,1} K_1 \left(\tilde{x}_{i,ph} + \frac{K_g}{\alpha_{12}} (1 - \tilde{x}_{i,ph}) \right) \quad (2.24)$$

und dem Vorbelastungskoeffizienten

$$A = \left(a_1 + \frac{K_g}{\alpha_{12}} a_2 \right) \left(\tilde{x}_{1,ph} + \frac{K_g}{\alpha_{12}} (1 - \tilde{x}_{1,ph}) \right)^{-1} \quad (2.25)$$

Grenzfälle der selektiven Verdunstung

Eine ausführliche Diskussion des Einflusses von K_g , K_l , α_{12} und a_i auf die Selektivität während der Verdunstung ist bei *Riede* [Rie I] zu finden. Da in vorliegender Arbeit die Untersuchungen auf die Verdunstung in trockene Luft eingeschränkt sind, richten wir unser Augenmerk auf die ersten drei relevanten Parameter, die ihrerseits detailliert bei *Schlünder* [Sch I] und *Turner* [Thu I] analysiert wurden.

Es ergeben sich folgende Grenzfälle für die Selektivität bei der Verdunstung:

1. $NTU_{g,i} \rightarrow \infty$ ($K_g = 1$) und $K_l \rightarrow 1$ (niedriger Gasdurchsatz, große Austauschfläche)

Hier handelt es sich um einen durch das thermodynamische Gleichgewicht kontrollierten Prozess. Das Inertgas verlässt das System vollständig mit Alkohol- und Wasserdampf gesättigt. Die Geschwindigkeit des Verdunstungsvorganges ist in diesem Fall zum Gasdurchsatz proportional. Dieser Grenzfall ist in Abbn 2.4 und 2.5 als Kurve 1 gezeichnet.

2. $NTU_{g,i} \rightarrow 0$ (z.B. $K_g = 2$) (hoher Gasdurchsatz, kleine Austauschfläche)

- 2.1 $K_l \rightarrow 1$ (kleine Verdunstungsgeschwindigkeit)

In diesem Fall ist der flüssigkeitsseitige Stofftransportwiderstand vernachlässigbar klein. Die Flüssigkeit hat überall die gleiche Zusammensetzung, während die Luft beim Überströmen ihren Zustand kaum ändert. Somit bestimmen thermodynamisches Gleichgewicht und gaseitiger Stofftransport den Prozess. Die Selektivität hängt nur vom Verhältnis K_g/α_{12} ab. Für eine Anfangszusammensetzung von $\tilde{x}_{1,B,0} = 0,3$ verdunstet Isopropanol bevorzugt, da $K_g/\alpha_{12} < 1$ ist. Bei $\tilde{x}_{1,B,0} = 0,7$ ist Wasser die bevorzugt verdunstende Komponente, da es $K_g/\alpha_{12} > 1$ gilt. Dieser Grenzfall ist in Abbn 2.4 und 2.5 mit Kurve 2 dargestellt.

- 2.2 $K_l \rightarrow 0$ (schnelle Verdunstung)

Hier handelt es sich um einen flüssigseitig kontrollierten Prozess. Die Selektivität der Verdunstung wird vom großen flüssigseitigen Stoffübergangswiderstand gehemmt, d.h. die

Verdunstung verläuft unter allen Umständen unselektiv und die Flüssigkeitszusammensetzung bleibt konstant (Kurve 4 in Abbn 2.4 und 2.5).

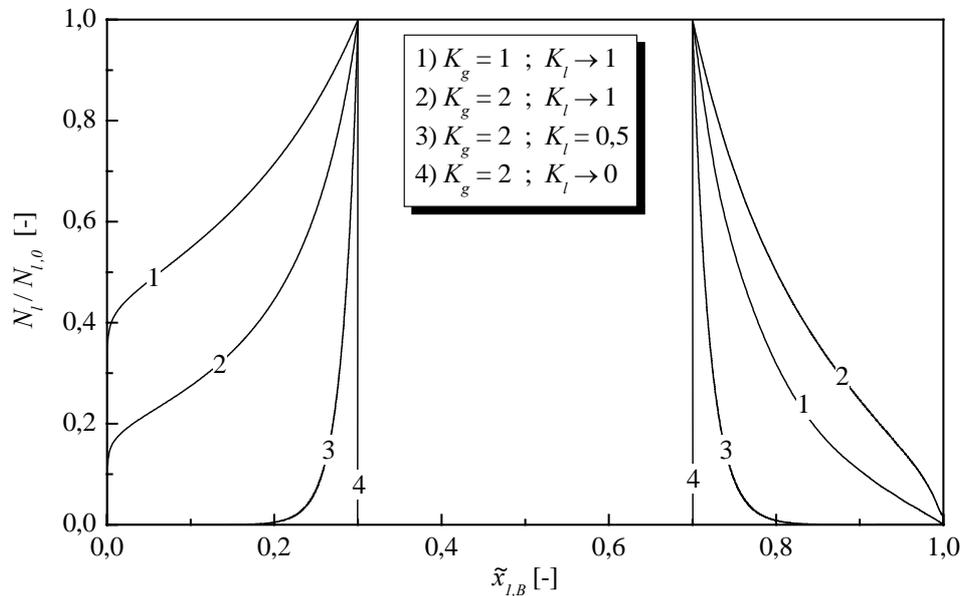


Abbildung 2.4: Der Einfluss von flüssig- und gasseitigem Stofftransport auf den Zusammensetzungsverlauf bei der Verdunstung des binären Gemisches Isopropanol/Wasser; Nach Integration der Gl. (2.11) berechnete Verläufe für zwei unterschiedliche anfängliche Alkoholanteile der Flüssigkeit ($\tilde{x}_{1,B,0} = 0,3$ und $\tilde{x}_{1,B,0} = 0,7$); ($N_l, N_{l,0}$: tatsächliche bzw. anfängliche Flüssigkeitsmolmenge, $\tilde{x}_{1,B}$: Molenbruch von Alkohol im Kern der Flüssigkeit).

Zusammenfassend lässt sich die Schlussfolgerung ziehen, dass die Richtung der Selektivität vom Verhältnis K_g/α_{12} abhängt und die Stärke der Selektivität vom flüssigseitigen kinetischen Trennfaktor K_l bestimmt wird.

Im Gegensatz zur Erwartung nach Grenzfall 2.2 wurde von Post [Pos 1] durch systematische experimentelle und theoretische Untersuchungen der Verdunstung aus ebenen Spalten nachgewiesen, dass der Verdunstungsprozess auch bei vermeintlich dominierendem flüssigseitigen Stofftransportwiderstand selektiv verlaufen kann (s. z.B. Kurve 3 in Abbn (2.4) und (2.5)). Post versuchte, durch eine auf der Flüssigkeitsoberfläche schwimmende Platte mit senkrechten Spalten eine künstliche flüssigseitige Grenzschicht, die den Stofftransport limitiert, zu erzeugen. Er stellte trotzdem Selektivitäten fest, die er auf Instabilitäten hinsichtlich Zusam-

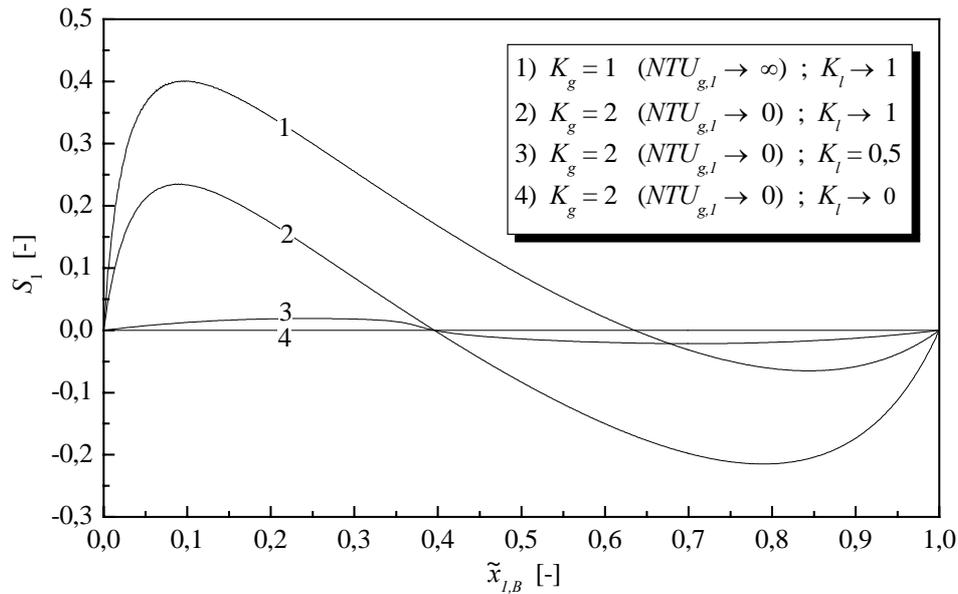


Abbildung 2.5: Der Einfluss von flüssig- und gasseitigem Stofftransport auf die Selektivität bei der Verdunstung des binären Gemisches Isopropanol/Wasser.

mensetzung und Temperatur an der Phasengrenze während des Stoffüberganges und die daraus resultierenden Mikrokonvektionen innerhalb der flüssigen Grenzschicht zurückführte. Im einzelnen gab er folgende Erklärung der Ursachen für das Auftreten mikroskopischer Strömungen in der Flüssigkeitsgrenzschicht bei Mehrstoffgemischen an:

Ausgehend von einem azeotropen Zweistoffgemisch können konvektive Stoffströme unterhalb der azeotropen Zusammensetzung durch das komplexe Zusammenwirken von konzentrationsinstabilen und temperaturinstabilen Zuständen innerhalb der flüssigen Grenzschicht erzeugt werden. D.h., in diesem Bereich (z.B. für $\tilde{x}_{1,B,0} = 0,3$) liegen gleich vier potentielle Ursachen für Grenzflächenkonvektion vor: $\sigma_l(\tilde{x}_{1,Ph}) > \sigma_l(\tilde{x}_{1,B})$, $\rho_l(\tilde{x}_{1,Ph}) > \rho_l(\tilde{x}_{1,B})$, $\sigma_l(T_{Ph}) > \sigma_l(T_{l,B})$, $\rho_l(T_{Ph}) > \rho_l(T_{l,B})$.

Die bevorzugte Verdunstung von Wasser oberhalb des azeotropen Punktes (z.B. für $\tilde{x}_{1,B,0} = 0,7$) und die Anreicherung von Isopropanol im Gemisch führen hingegen zu $\sigma_l(\tilde{x}_{1,Ph}) < \sigma_l(\tilde{x}_{1,B})$, $\rho_l(\tilde{x}_{1,Ph}) < \rho_l(\tilde{x}_{1,B})$ und somit zu einem energetisch stabilen Zustand aufgrund der Konzentration. In diesem Bereich können die Mikrokonvektionen nur thermisch initiiert werden, wenn es $\sigma_l(T_{Ph}) > \sigma_l(T_{l,B})$, $\rho_l(T_{Ph}) > \rho_l(T_{l,B})$ gilt. Dies kann geschehen, da es während der Verdunstung zur Abkühlung der Flüssigkeitsoberfläche aufgrund des Phasen-

überganges der beteiligten Gemischkomponenten kommt. Auf diese Weise entsteht eine thermisch instabile Konfiguration im System. Dabei befinden sich kältere Schichten über Bereichen mit höherer Temperatur. Das kann folglich zu konvektiven Strömungen führen, mit denen das System versucht, das energetische Ungleichgewicht zu nivellieren. Diese Schlussfolgerung macht die Modellierung des Wärmetransportes – neben den Ansätzen für den Stofftransport – zur Beschreibung der Verdunstung aus Schüttungen unerlässlich.

2.2.2 Wärmetransport während der Verdunstung

Wie eben erwähnt, kann das Einsetzen der Grenzflächenkonvektionen sowohl durch Unterschiede in der Zusammensetzung als auch durch Temperaturinhomogenitäten verursacht werden. Diese Problematik wurde näher in [Pos 1], [Pos 3] untersucht und diskutiert. Die Existenz eines Temperaturunterschieds zwischen Phasengrenzfläche und Kern der Flüssigkeit kann entscheidende Auswirkungen auf den Stofftransport haben. Das zusätzlich vorhandene Temperaturprofil stellt neben dem Konzentrationsgradienten ein weiteres Triebkraftpotential für eine selektive Verdunstung dar. Eine natürliche Ursache dieses Temperaturgefälles ist zum einen die auftretende Verdunstungskühlung aufgrund des Phasenüberganges der beteiligten Stoffkomponenten und des daraus resultierenden Energieentzuges an der Phasengrenzfläche. Man kann dieses Temperaturprofil jedoch auch gezielt herbeiführen, wenn die Temperatur im Kern der Gasphase konsequent unterhalb der entsprechenden Temperatur im Kern der Flüssigkeit abgesenkt wird (s. [Pos 3]). In beiden Fällen kommt es zu einem Absinken der Temperatur an der Phasengrenze, T_{ph} , unter der Temperatur im Kern der Flüssigkeit, $T_{l,B}$, das zum Entstehen einer temperaturinstabilen Konfiguration im System und dadurch zur thermisch initiierten Mikrokonvektion führt.

In diesem Zusammenhang schlug Post [Pos 1] für die ausführliche Beschreibung des gesamten Verdunstungsprozesses eine detaillierte Modellierung des Wärmetransports neben dem Stofftransport vor. Diese ist in seiner Arbeit für den Fall der Verdunstung aus einer Platte mit ebenen Spalten entwickelt. Um sie für den Fall der Verdunstung aus Schüttungen anzuwenden, ist es notwendig, den Einfluss der Wärmeleitfähigkeit des festen Stoffes ebenfalls zu berücksichtigen, den Post als vernachlässigbar angesehen hat. Für die Berechnung der Phasengrenztemperatur bei kleinen Konzentrationen der flüchtigen Stoffe im Inertgas kann die Beziehung

$$T_{ph} = \frac{\left(\frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,l,i}}{\alpha_l A_{ph}} + 1 \right) T_{l,B} + \frac{\alpha_g}{\alpha_l} T_{g,B} - \frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \Delta \tilde{h}_{v,i}}{\alpha_l A_{ph}}}{\frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,l,i}}{\alpha_l A_{ph}} + \frac{\alpha_g}{\alpha_l} + 1} \quad (2.26)$$

verwendet werden. Die Ableitung dieser Gleichung ist im Anhang A.2 dargestellt.

Hierbei ist $\Delta \tilde{h}_{v,i}$ die molare Verdampfungsenthalpie der Komponente i , während $\tilde{c}_{p,l,i}$ die molare spezifische Wärmekapazität der Flüssigkeit und $T_{g,B}$ sowie $T_{l,B}$ die Temperaturen im Kern der Gas- bzw. Flüssigphase bezeichnen. Der gaseitige Wärmeübergangskoeffizient α_g lässt sich aus der Analogie der Gesetze der Wärme- und Stoffübertragung berechnen und kann durch die *Lewis*-Beziehung definiert werden zu

$$\frac{\alpha_g}{\beta_{g,i}} = n_g \langle \bar{T}_g \rangle \tilde{c}_{p,g} \langle \bar{T}_g \rangle Le_i^n. \quad (2.27)$$

Der unbekannte flüssigseitige Wärmeübergangskoeffizient α_l lässt sich nach [Pos 1] auch durch Analogieschluss aus dem entsprechenden flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten β_l zu

$$\alpha_l = \frac{\lambda_l \beta_l}{D_{l,eff}} \quad (2.28)$$

bestimmen, unter der Annahme einer gleich großen Ausdehnung der thermischen wie der stofflichen Grenzschicht. Wärme- und Stoffübergangskoeffizient in der flüssigen Phase wären also direkt proportional zueinander. λ_l ist die Wärmeleitfähigkeit des binären Gemisches (s. Anhang A.1.4). In Abwesenheit von Konvektion ergibt sich für eine Schüttung der Höhe h , ganz analog zu $\beta_{l,0}$ (s. Gl. (2.15)), der minimal mögliche flüssigseitige Wärmeübergangskoeffizient zu

$$\alpha_{l,0} = \frac{\lambda_{bed}}{h}. \quad (2.29)$$

Mit λ_{bed} wird die effektive Wärmeleitfähigkeit der nicht durchströmten Schüttung bezeichnet, die für mäßige Temperaturen und gleichförmige Kugeln nach dem Modell von *Zehner* und *Schlünder* [Zeh I] berechnet wird (s. Abschnitt 3.1.1).

Die Bestimmung der Phasengrenztemperatur gemäß Gl. (2.26) erfolgt iterativ, da einige Größen, wie z.B. $\tilde{c}_{p,l,i}$ und α_l , ebenfalls von T_{ph} abhängen. Aufgrund der Kopplung zwischen Stoff- und Wärmeübertragung über verschiedene Parameter (u.a. \dot{N}_i und $\Delta\tilde{h}_{v,i}$ in Gl. (2.26) bzw. α_{l2} und K_l in Gl. (2.13)) werden im Programm zur Berechnung der Zusammensetzungsverlaufskurven außerdem bei jedem numerischen Berechnungsschritt die Konzentration an der Phasengrenze und die Phasengrenztemperatur simultan iteriert. Für die numerische Lösung (s. Abschnitt 2.2.1) wurde ein Intervallschachtelverfahren (*Runge-Kutta-Verfahren*) ausgewählt. Es erlaubt die systematische Variation der beiden Zustandsgrößen an der Phasengrenze, bis sie gleichzeitig im Rahmen einer Fehlerschranke (Fehler: $\tilde{x}_{i,ph} < 10^{-10}$ bzw. $T_{ph} < 10^{-3} K$) stabil sind. Das Programm liefert die vollständig berechneten Konzentrations- bzw. Temperaturverläufe zwischen den Grenzfällen $\beta_l \rightarrow \infty$ und $\beta_l \rightarrow 0$. Zur Kontrolle und Veranschaulichung der numerischen Berechnung dienen die Phasengrenzkonzentrations- und Phasengrenztemperaturverläufe im adiabaten bzw. im isothermen Zustand [Pos 3]. Der isotherme Fall kann bei verschwindendem flüssigseitigen Stoff- bzw. Wärmetransportwiderstand ($\beta_l \rightarrow \infty$, $\alpha_l \rightarrow \infty$), d.h. bei vernachlässigbar kleinem Temperaturgradienten in der flüssigen Phase, erreicht werden. Unter dieser Bedingung erreicht die Temperatur an der Grenzfläche die Temperatur der vollständig durchmischten Kernphase der Flüssigkeit ($T_{ph} = T_{l,B}$). Im Gegensatz dazu wird der Verdunstungsprozess im Falle großer Transportwiderstände innerhalb der flüssigen Grenzschicht ($\beta_l \rightarrow 0$, $\alpha_l \rightarrow 0$) thermisch vom gasseitigen Wärmetransport limitiert. Die Phasengrenztemperatur T_{ph} geht dann in die adiabate Beharrungstemperatur T_{ad} über ($T_{ph} = T_{ad}$). Den Verlauf der Phasengrenztemperatur, aufgetragen über dem Wärmeübergangskoeffizienten α_l , bei drei verschiedenen Gastemperaturen $T_{g,B}$ stellt Abb. 2.6 dar.

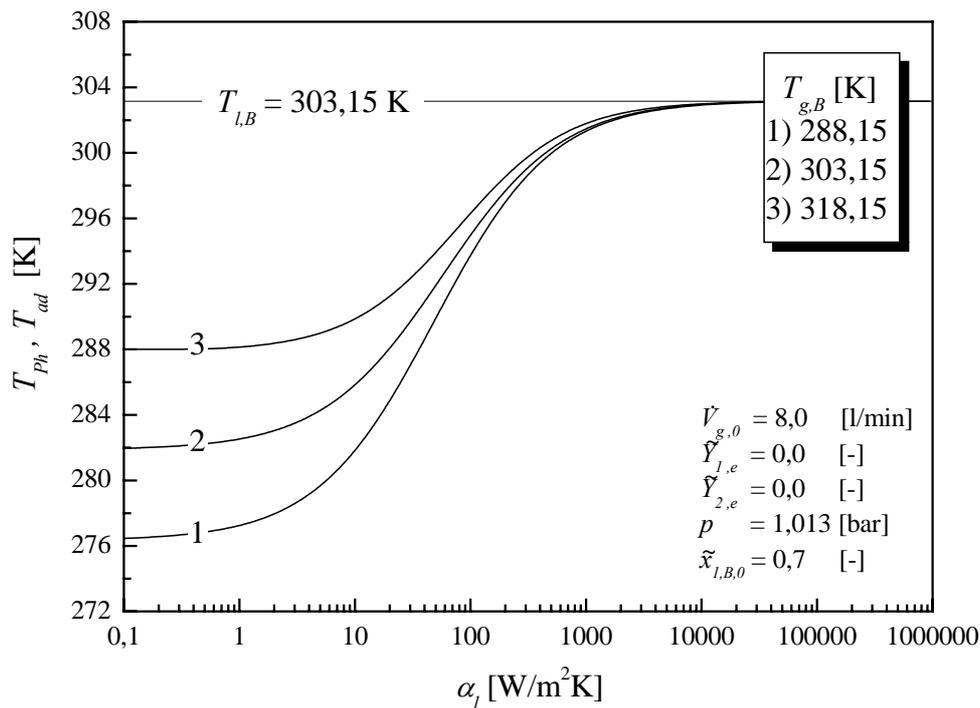


Abbildung 2.6: Berechnete Verläufe der Phasengrenztemperatur für den Fall der Verdunstung aus einer Kugelschüttung in Abhängigkeit vom Wärmeübergangskoeffizienten α_l bei unterschiedlichen Gastemperaturen.

In dieser Abbildung ist zu erkennen, dass sich bei Erhöhung der Gastemperatur (unter sonst gleichen Bedingungen) auch die Phasengrenztemperatur erhöht und damit kleinere Temperaturgradienten in der flüssigen Grenzschicht entstehen. Daher können thermisch erzeugte Grenzflächenkonvektionen durch eine gezielte Erhöhung der Gastemperatur unterdrückt werden, womit sich der Verdunstungsprozess unselektiv gestaltet.

An dieser Stelle nahm *Post* [*Pos 1*] an, dass in den Berechnungen im ungestörten Zustand (nur molekulare Diffusion) wegen der Tiefe der Spalte stets adiabate Bedingungen zu Grunde gelegt werden können. Im Bezug auf Abb. 2.6 würde diese Annahme sehr kleine α_l -Werte bedeuten, bei denen die Phasengrenztemperatur in die adiabate Temperatur übergeht. Jedoch müssen sich derart kleine α_l -Werte und somit adiabate Bedingungen auch nach dem gegenwärtigen Modell (s. Gln (2.15) und (2.29)) beim Einsetzen der entsprechenden Schüttungshöhe im Rechenprogramm tatsächlich ergeben. Im Abschnitt 4.1 der vorliegenden Arbeit ist eine

ausführliche Diskussion der Berechnungen in beiden Fällen – mit und ohne der genannten Annahme – zu finden.

Adiabate Beharrungstemperatur

Für die Ermittlung der nach der Annahme von *Post* erforderlichen adiabaten Beharrungstemperatur kann der Ausdruck

$$T_{ad} = T_{g,B} + \frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \Delta \tilde{h}_{v,i} \langle T_{ad} \rangle}{\alpha_g A_{Ph} \Phi_{ad}} (1 - \exp \Phi_{ad}) \quad (2.30)$$

verwendet werden, der unter der Bedingung

$$\frac{dT_{l,B}}{dt} = 0 \quad \text{und} \quad \dot{Q}_l = 0 \quad (2.31)$$

aus Gln (A2.3) und (A2.6) im Anhang A.2 hergeleitet wurde. Der Substitutionsparameter Φ_{ad} in Gl. (2.30) steht für

$$\Phi_{ad} = \frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,g,i} \langle \bar{T}_g \rangle}{\alpha_g A_{Ph}}, \quad (2.32)$$

wobei \bar{T}_g die mittlere Temperatur in der gaseitigen Grenzschicht ist, definiert unter der Annahme eines linear verlaufenden Temperaturprofils zu

$$\bar{T}_g = \frac{T_{g,B} + T_{Ph}}{2}. \quad (2.33)$$

Abbildung 2.7 zeigt iterativ berechnete (ausgehend von Gl. (2.30)) adiabate Beharrungstemperaturen für das Gemisch Isopropanol/Wasser als Funktion der Zusammensetzung bei verschiedenen Gastemperaturen. Isopropanol und Wasser haben bei konstanten Bedingungen beinahe gleich große Beharrungstemperaturen. Dies ist damit zu erklären [Thu 1], dass Alkohol einen höheren Dampfdruck ($p_1^0 = 7770,37 \text{ Pa}$, $p_2^0 = 4232,03 \text{ Pa}$ bei $T = 303,15 \text{ K}$) und

eine niedrigere Verdampfungsenthalpie ($\Delta h_{v,1} = 730,38 \text{ kJ/kg}$, $\Delta h_{v,2} = 2429,96 \text{ kJ/kg}$ bei $T = 303,15 \text{ K}$) aufweist als Wasser. Die adiabaten Beharrungstemperaturen der Gemische liegen unter denen der reinen Komponenten (Reinstoffwerte in Abb. 2.7 bei $\tilde{x}_{1,B} = 0$ bzw. $\tilde{x}_{1,B} = 1$) bei konstanten Bedingungen ($T_{g,B}$, $\dot{V}_{g,0} = \text{konst.}$), weil es sich beim Gemisch Isopropanol/Wasser um ein System mit Dampfdruckmaximum bzw. Siedepunktminimum handelt. Er-

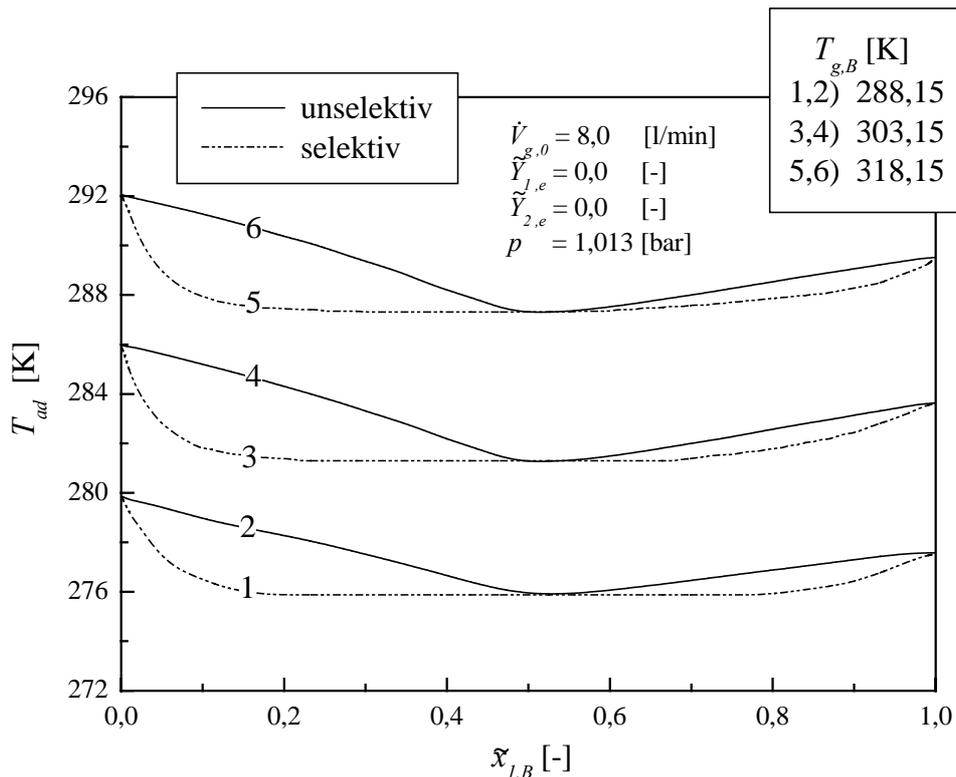


Abbildung 2.7: Berechnete Verläufe der adiabaten Beharrungstemperatur des Gemisches Isopropanol/Wasser bei unterschiedlichen Gastemperaturen für dominierenden (unselektiv) bzw. vernachlässigbaren (selektiv) flüssigseitigen Stofftransportwiderstand.

wartungsgemäß nehmen die Beharrungstemperaturen mit steigender Gastemperatur bei trockenem Lufteintrittsstrom zu. In den eingezeichneten Grenzfällen – maximale bzw. verschwindende Selektivität – zeigen die Verläufe der adiabaten Beharrungstemperaturen einen wesentlichen Unterschied. Während bei vernachlässigbarem flüssigseitigem Stofftransportwiderstand ($\beta_l \rightarrow \infty$) die adiabaten Temperaturen in einem weiten Konzentrationsbereich nahezu konstant bleiben, variieren sie bei einem flüssigseitig kontrollierten Stoffübergang ($\beta_l \rightarrow 0$) über den gesamten Bereich. Am azeotropen Punkt (nach Schlünder [Sch 1]: Pseudo-

azeotrop) nehmen beide Kurven den gleichen Wert an und durchlaufen ein Minimum. Von diesem Punkt aus gesehen, führt jede Änderung der Zusammensetzung zur Steigerung der adiabaten Beharrungstemperatur. Freilich wird bei den Berechnungen von Abb. 2.7 Gl. (2.28) absichtlich verletzt, da auch für $\beta_i \rightarrow \infty$ verschwindend kleine Werte von α_i vorausgesetzt werden.

Einfluss des Wärmetransportes auf die Selektivität bei der Verdunstung

Typische Simulationsergebnisse mit dem beschriebenen theoretischen Modell für den Fall mit bzw. ohne Berücksichtigung des Wärmetransportes und für Temperaturgleichheit im Kern der beiden Phasen ($T_{g,B} = T_{l,B} = 303,15 \text{ K}$) zeigen Abb. 2.8 und 2.9.

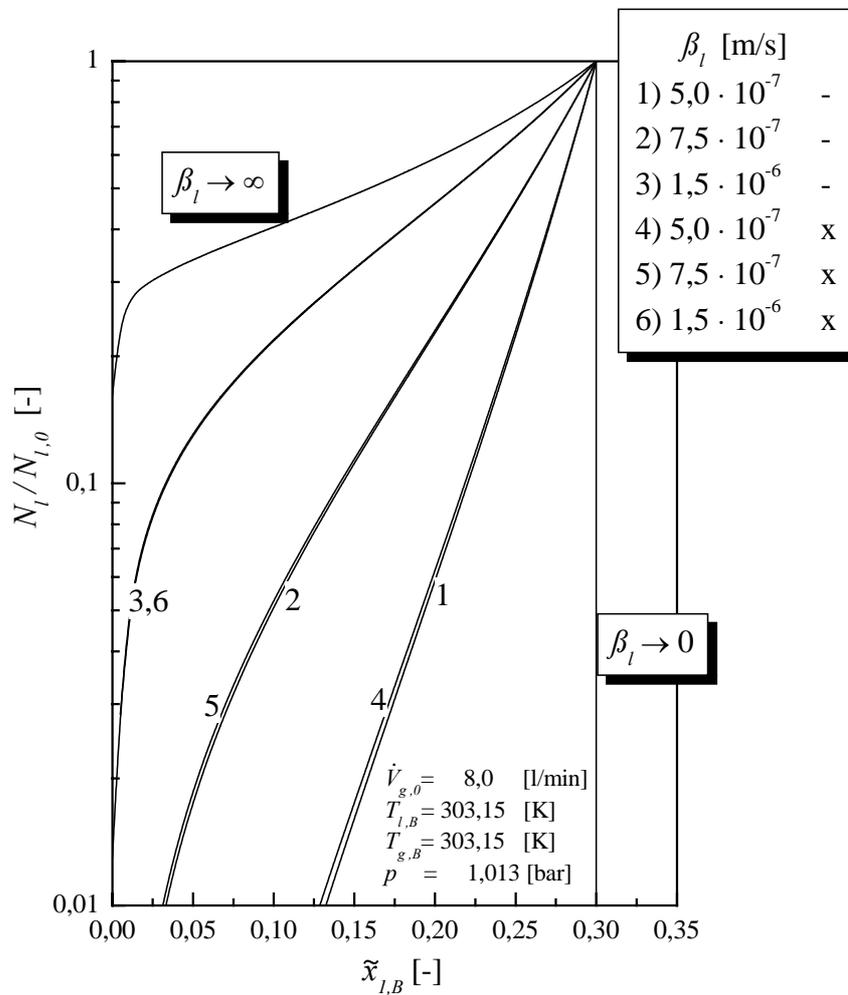


Abbildung 2.8: Berechnete Zusammensetzungsverläufe der Verdunstung eines Isopropanol-Wasser-Gemisches in trockene Luft für unterschiedliche Werte von β_i mit (x) und ohne (-) Berücksichtigung der Wärmeübertragung im instabilen Konzentrationsbereich ($\tilde{x}_{1,B} \leq 0,3$).

Die gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_{g,i}$ wurden bei den Simulationsrechnungen nach den Gln (3.22) und (3.23) bestimmt.

Bei der Berechnung der Kurven 1, 2 und 3 wurde nur die Stoffübertragung berücksichtigt. Im Gegensatz dazu beinhalten die Kurven 4, 5 und 6 zusätzlich den Einfluss der Wärmeübertragung. Bei Berücksichtigung der Wärmeübertragung ist generell eine geringe Zunahme der Selektivität zu beobachten. Es ist weiterhin ersichtlich, dass bei gaseitig kontrolliertem Prozess ($\beta_l \rightarrow \infty$) die Berücksichtigung des Wärmetransportes keinen Unterschied ausmacht, da der flüssigseitige Wärmeübergangskoeffizient α_l proportional zu β_l gesetzt wurde. Es gilt somit in diesem Fall immer: $T_{ph} = T_{l,B} = T_{g,B}$, siehe auch Abb. 2.10, die entsprechenden Kur-

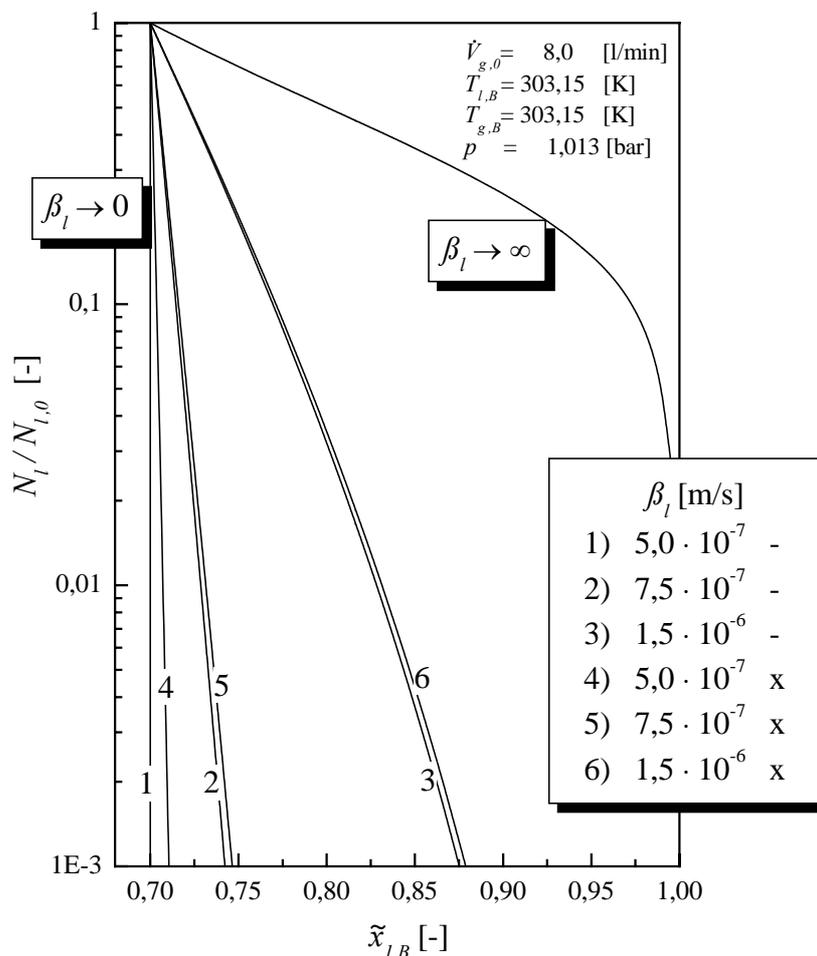


Abbildung 2.9: Berechnete Zusammensetzungsverläufe der Verdunstung eines Isopropanol-Wasser-Gemisches in trockene Luft für unterschiedliche Werte von β_l mit (x) und ohne (-) Berücksichtigung der Wärmeübertragung im stabilen Konzentrationsbereich ($\tilde{x}_{1,B} \geq 0,7$).

ven fallen zusammen. Im zweiten Grenzfall $\beta_l \rightarrow 0$, obwohl T_{ph} dort ein Minimum erreicht, liegen die beiden Kurven erneut übereinander. Die Überlagerung der Verlaufskurven in den beiden Grenzfällen ist damit zu erklären, dass die Wärmeübertragung in der Flüssigkeit entweder im Sinne einer Hemmung zu vernachlässigen ist (isothermer Fall) oder nicht existiert (adiabater Fall). Obschon der Einfluss des Wärmetransports bei festgelegtem β_l i.a. gering ausfällt, können aus den entsprechenden Temperaturprofilen entstehende Instabilitäten sehr wohl zu Mikrokonvektionen und somit zu völlig anderen als die angenommenen Werte von β_l führen. Dies ist auch aus Abb. 2.10 erkennbar, die die Temperatur an der Phasengrenze T_{ph} in Abhängigkeit der Zusammensetzung im Kern der Flüssigkeit für verschiedene flüssigseitige Stofftransportwiderstände unter Berücksichtigung der Wärmeübertragung darstellt.

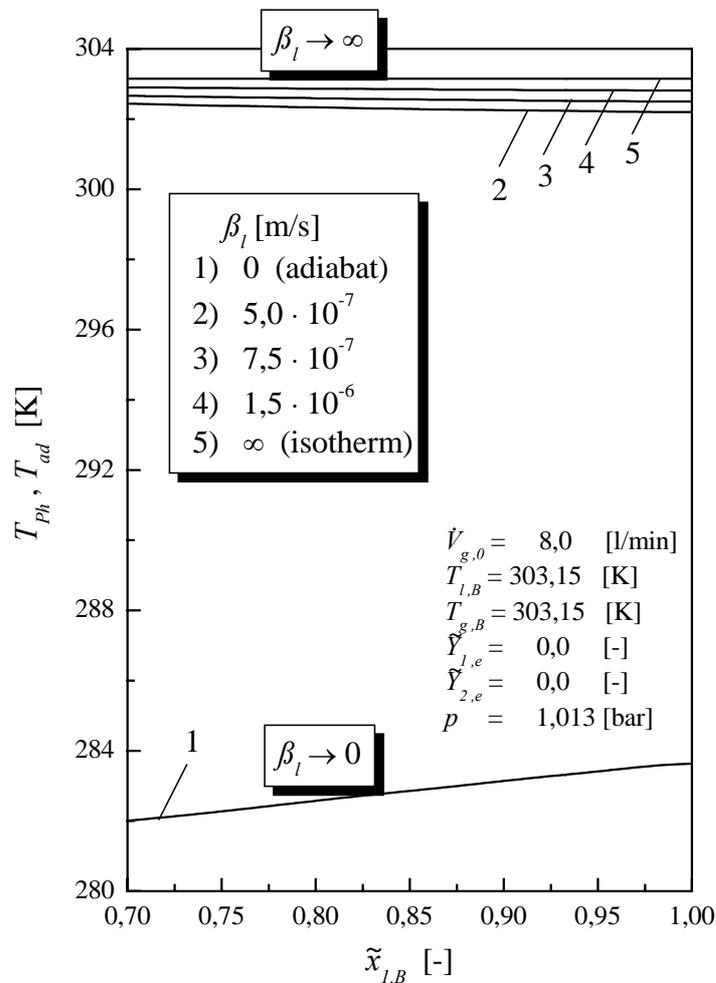


Abbildung 2.10: Berechnete Verläufe der Phasengrenztemperatur in Abhängigkeit der Konzentration im Kern der Flüssigkeit bei Variation des flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten β_l im stabilen Konzentrationsbereich ($\tilde{x}_{l,B} \geq 0,7$).

Die schon diskutierten Grenzfälle der isothermen ($\beta_l \rightarrow \infty$, $\alpha_l \rightarrow \infty$) und der adiabaten ($\beta_l \rightarrow 0$, $\alpha_l \rightarrow 0$) Verdunstung sind hier wieder zu erkennen. Generell ist festzustellen, dass sich die Phasengrenztemperatur mit abnehmendem flüssigseitigen Stofftransportwiderstand immer mehr der Temperatur im Kern der Flüssigkeit (Linien 2, 3 und 4) annähert, und diese bei verschwindendem Flüssigkeitswiderstand erreicht ($\beta_l \rightarrow \infty$: $T_{ph} = T_{l,B}$). Bei steigendem Widerstand in der Flüssigkeit nimmt die Phasengrenztemperatur ab, bis sie bei unendlich großem Widerstand in die adiabate Beharrungstemperatur übergeht ($\beta_l \rightarrow 0$: $T_{ph} = T_{ad}$).

Die nach Gl. (2.28) berechneten flüssigseitigen Wärmeübergangskoeffizienten als Funktion der Flüssigkeitszusammensetzung für verschiedene flüssigseitige Stofftransportwiderstände zeigt Abb. 2.11.

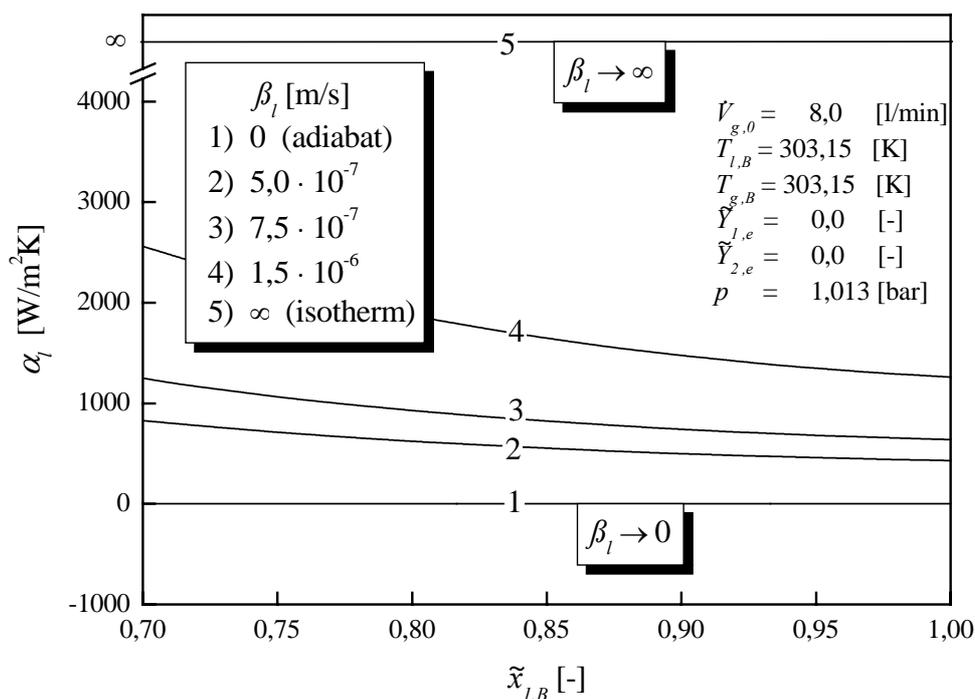


Abbildung 2.11: Berechnete Verläufe des flüssigseitigen Wärmeübergangskoeffizienten in Abhängigkeit von der Konzentration im Kern der Flüssigkeit für verschiedene Werte des flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten β_l im stabilen Konzentrationsbereich ($\tilde{x}_{l,B} \geq 0,7$).

Bei gleichem Stofftransportwiderstand sind die hier berechneten flüssigseitigen Wärmeübergangskoeffizienten um den Faktor 5 größer als die von Post [Pos 1] für die Verdunstung aus

ebenen Spalten berechneten. Die höheren Werte ergeben sich nach Gl. (2.28) aus der gehemmten Diffusion durch die Schüttung ($D_{l,eff} < D_{l,12}$) im Vergleich zum feststofffreien Raum. Sie führen ihrerseits zu kleineren Temperaturgefällen in der flüssigseitigen Grenzschicht bei den Schüttungen gegenüber den ebenen Spalten.

2.3 Einführung dimensionsloser Kennzahlen

Das Hauptinteresse dieser Arbeit besteht in einer allgemeinen Darstellung des Verdunstungsvorganges durch Schüttungen in Anwesenheit von Mikrokonvektion mit dimensionslosen Kennzahlen. Zu diesem Zweck werden die den physikalischen Vorgang beschreibenden Größen (wie z.B. Triebkräfte: Dichte- und Grenzflächenspannungsgradienten, Stoffparameter, Geometrieverhältnisse, äußere und innere Kräfte usw.) derart miteinander verknüpft, dass charakteristische dimensionslose Kennzahlen (Eh , Ra_s und Ma_s) resultieren. Ein besonders hervorzuhebender Vorteil der Entdimensionierung ist die Möglichkeit, Ergebnisse auf physikalisch gleiche oder ähnliche Anordnungen zu übertragen bzw. sie mit ihnen zu vergleichen.

Im Rahmen dieser Arbeit können Dichte- und Grenzflächenspannungsinstabilitäten innerhalb der flüssigen Grenzschicht, die infolge von Konzentrations- und/oder Temperaturgradienten entstehen, den Stofftransport wesentlich intensivieren. Diese treibenden Potentiale werden im anfänglich ungestörten Zustand durch die sogenannte **Darcy-modifizierte Rayleigh-Zahl**

$$Ra_s = \frac{\Delta\rho_l g h \kappa}{\eta_l \langle \bar{T}_l, \bar{x}_1 \rangle D_{l,eff} \langle \bar{T}_l, \bar{x}_1 \rangle} \quad (2.34)$$

und die **Darcy-modifizierte Marangoni-Zahl**

$$Ma_s = \frac{\Delta\sigma_l \kappa}{\eta_l \langle \bar{T}_l, \bar{x}_1 \rangle D_{l,eff} \langle \bar{T}_l, \bar{x}_1 \rangle h} \quad (2.35)$$

ausgedrückt, wobei die *Rayleigh-Zahl* den treibenden Parameter für das Auftreten von *Bénard-Konvektion* und die *Marangoni-Zahl* die Triebkraft für das Auftreten von *Marangoni-Konvektion* darstellt. Hierbei sind $\Delta\rho_l$ die Dichtedifferenz zwischen Phasengrenze und Kern der Flüssigkeit, $\Delta\sigma_l$ die Grenzflächenspannungsdifferenz zwischen Phasengrenze und

Kern der Flüssigkeit, g die Erdbeschleunigung, η_l die dynamische Viskosität, h die Schüttungshöhe und $D_{l,eff}$ der effektive Diffusionskoeffizient. Ra_s und Ma_s unterscheiden sich von den nur für die Flüssigkeit definierten Zahlen insofern, dass der längere Diffusionsweg der Stoffströme durch die Schüttungskanäle mit dem effektiven Diffusionskoeffizienten $D_{l,eff}$ und die Breite der Kanäle (die Durchlässigkeit der Schüttung) mit der Permeabilität κ (s. Abschnitt 3.1.1) berücksichtigt wurde (vgl. mit Gln (2.36) und (2.37)). Die von *Post* [*Pos* 4] nur für die Flüssigkeit verwendeten Definitionen der beiden dimensionslosen Kennzahlen lauten

$$Ra = \frac{\Delta\rho_l g G_D^3}{\eta_l \langle \bar{T}_l, \bar{x}_1 \rangle D_l \langle \bar{T}_l, \bar{x}_1 \rangle}, \quad (2.36)$$

$$Ma = \frac{\Delta\sigma_l G_D}{\eta_l \langle \bar{T}_l, \bar{x}_1 \rangle D_l \langle \bar{T}_l, \bar{x}_1 \rangle}, \quad (2.37)$$

wobei G_D für die Spaltentiefe steht.

Als Maß für die Intensität der zusätzlichen Transportmechanismen, die u.U. neben der Diffusion während der Verdunstung durch Schüttungen auftreten können, dient der sogenannte *Enhancement*-Faktor Eh , definiert nach *Post* [*Pos* 1] zu

$$Eh = \frac{\beta_{l,opt}}{\beta_{l,0}} = \frac{\beta_{l,opt}}{D_{l,eff} \langle \bar{T}_l, \bar{x}_1 \rangle / h} \quad (2.38)$$

mit

$$\bar{T}_l = \frac{T_{l,B} + T_{Ph}}{2} \quad (2.39)$$

und

$$\bar{x}_1 = \frac{\tilde{x}_{1,B} + \tilde{x}_{1,Ph}}{2}. \quad (2.40)$$

Er beschreibt die Erhöhung des Stofftransportes im gestörten Zustand (mit Mikrokonvektion), bezogen auf denselben im ungestörten Zustand (nur molekulare Diffusion). Hier ist $\beta_{l,opt}$ der

angepasste flüssigseitige Stoffübergangskoeffizient, der die Wirkung der konvektiven Ströme beinhaltet, und $\beta_{l,0}$ der kleine flüssigseitige Stoffübergangskoeffizient, der nur die Diffusion in der Flüssigkeit berücksichtigt. Dieser Faktor spiegelt also die Verbesserung des Stofftransports infolge von Mikrokonvektionen wider; je höher sein Wert ist, desto stärker ist der Einfluss dieser Phänomene auf den Stofftransport.

Die Korrelation der in dieser Arbeit ermittelten *Eh*-Faktoren (s. Kapitel 5) ermöglicht Aussagen über die Entstehung dissipativer Strukturen bzw. über ihren Beitrag zur Beschleunigung des Stofftransportes durch Schüttungen.

2.4 Zusammenfassung

Auf Basis der Modellvorstellungen von *Schlünder* [Sch 2] und *Post* [Pos 1] wurde in diesem Kapitel ein erweitertes Modell zur theoretischen Beschreibung der physikalischen Vorgänge bei der Verdunstung aus Schüttungen dargestellt. Es beschreibt den gesamten gekoppelten Stoff- und Wärmeübergang und basiert zugleich auf der Lewis-Analogie in der Gas- und Flüssigphase. Im Modell wurde der Einfluss der Kugelschüttung berücksichtigt, indem anstelle des molekularen binären Diffusionskoeffizienten in der flüssigen Phase (im feststofffreien Raum) die entsprechende effektive Größe betrachtet wurde. Das Modell dient zur Bestimmung der Zustandsvariablen an der Phasengrenze ($\tilde{x}_{i,ph}$, T_{ph}) und ermöglicht damit die Berechnung der Selektivität (s. Gl. (2.11)) in Form einer Zusammensetzungsverlaufskurve $\tilde{x}_{1,B} \langle N_1/N_{1,0} \rangle$, die den Zusammenhang zwischen abnehmender momentaner Flüssigkeitsmenge N_l und Flüssigkeitszusammensetzung $\tilde{x}_{1,B}$ darstellt. Durch Simulation konnte gezeigt werden, dass sich unter Berücksichtigung der Wärmeübertragung etwas größere Werte für die Selektivität und u.U. bedeutende Temperaturunterschiede in der Flüssigkeit ergeben. Diese Feststellung wurde zum ersten Mal von *Post* [Pos 1] bei der Verdunstung aus ebenen Spalten gemacht und hat sich bei der Verdunstung aus Schüttungen bestätigt. Das so beschriebene Modell wird uns weiterhin erlauben, den flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten β_l in Anwesenheit von Mikrokonvektion durch die Anpassung der berechneten an die gemessenen Selektivitätsverläufe zu ermitteln. Auf den ungestörten Zustand angewendet, ermöglicht es außerdem die Berechnung der entsprechenden Triebkräfte.

3 Versuchsmaterialien, -aufbau und Auswertungsmethoden

Im Folgenden werden die Eigenschaften der Schüttung und des eingesetzten Stoffsystems sowie die Kriterien zur Auswahl des binären Gemisches erläutert. Die für die Messung der Selektivitätsverläufe während der Verdunstung konzipierte Versuchsanordnung wird beschrieben. Die Mess- und Auswertungsmethoden werden diskutiert.

3.1 Versuchsmaterialien

3.1.1 Eigenschaften der Schüttung

- Mittlerer Partikeldurchmesser

Als Schüttungsmaterial wurden polierte technische Glaskugeln (Typ-S) der Firma *Sigmund Lindner*[®] /*SiLi*[®]/ verwendet. Ihre besonderen Qualitätsmerkmale liegen in der homogenen und glatten Oberfläche, dem geringen Anteil an Luftblasen, der hohen Rundheit und Elastizität. Sie können als nicht poröse Feststoffe mit ausreichender Festigkeit betrachtet werden. Die Aufbereitung eines einheitlichen, möglichst monodispersen Schüttgutes erfolgte zunächst durch Aussieben enger Fraktionen von diesen Kugeln. Der repräsentative mittlere Partikeldurchmesser \bar{d}_p jeder Fraktion wurde dann durch Korngrößenanalyse bestimmt und in der Berechnung der Permeabilität der Schüttung eingesetzt.

Zu diesem Zweck wurde ein EKG-Korngrößenanalysator der Firma *Meßtechnik Schwartz GmbH* verwendet. Das sind universelle Geräte zur automatischen Messung der Durchmesser fester oder flüssiger Partikel im Bereich von 40 bis 10 000 μm . Die Messung erfolgt kontaktlos mit einer maximalen (theoretischen) Zählrate von 10 000 Partikeln pro Sekunde. Das Gerät besteht aus einem fotoelektrischen Sensor, einer speziellen Auswertelektronik und einem IBM XT/AT-kompatiblen Computer. Im optoelektronischen Block des Sensors findet die Umwandlung der durch die Partikel hervorgerufenen Lichtsignale in elektrische Impulse statt. Das elektronische System analysiert die Form und die Größe des Signals. Signale, die durch Koinzidenz deformiert wurden, werden automatisch herausgefiltert. Aus der Signalamplitude wird dann der Partikeldurchmesser errechnet.

Fünf Glaskugelfractionen wurden nach dieser Methode vermessen. Die entsprechenden Partikelgrößenverteilungen aus jeder Messung des Analysators sind im Anhang A.3 angegeben. Die daraus ermittelten Werte für die mittlere Korngröße jeder Schüttung, die auch als Sauterdurchmesser \bar{d}_p [Sti I] bezeichnet wird, sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst.

Fraktion, mm	0,20 – 0,30	0,40 – 0,60	1,25 – 1,55	2,00 – 2,60	3,00 – 3,60
\bar{d}_p , mm	0,23	0,57	1,30	2,60	3,50

Tabelle 3.1: Mittels Korngrößenanalyse ermittelte Werte für die mittlere Korngröße verschiedener Kugelschüttungen.

- Feststoffdichte

Die Bestimmung der Feststoffdichte ρ_s der Glaskugeln, die für die Berechnung der Porosität der Schüttung von Bedeutung ist, erfolgte mittels eines Helium-Pyknometers 1305 der Firma *Micromeritics*. Nach Herstellerangaben hat das Gerät eine sehr hohe Messgenauigkeit von $\pm 0,1 - 0,2$ %. Das Messprinzip basiert auf der Ermittlung eines Druckabfalls im Zweikammersystem des Geräts, der proportional zum Volumen, V_s , der definierten Feststoffmasse, M , ist. Die Feststoffdichte ergibt sich dann aus der Masse der Probe und deren Volumen zu

$$\rho_s = \frac{M}{V_s}. \quad (3.1)$$

Die nach dieser Methode bestimmten Feststoffdichten sind für die einzelnen Fraktionen in Abb. 3.1 aufgetragen. Da die Partikel kompakt sind, gilt: $\rho_p = \rho_s$, (ρ_p : Partikeldichte).

- Porosität

Das relative Zwischenraumvolumen, kurz Porosität genannt, ist für die Durchströmbarkeit bzw. den Druckverlust bei der Strömung von Flüssigkeiten oder Gasen durch Feststoffschüttungen von Bedeutung. Man definiert die Porosität ψ als

$$\psi = \frac{V_{Hohl}}{V} = \frac{V - V_p}{V}, \quad (3.2)$$

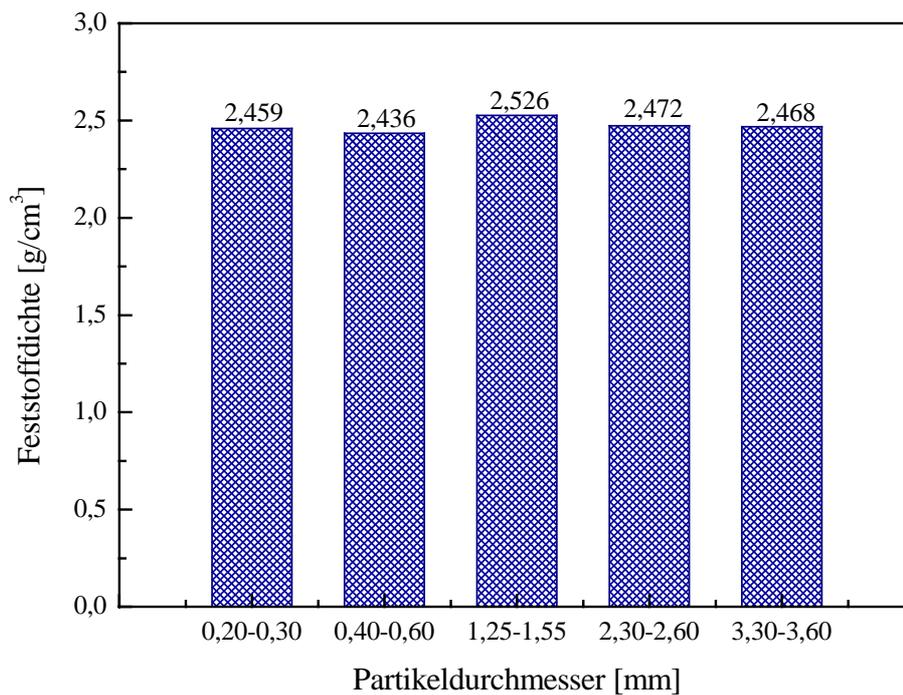


Abbildung 3.1: Feststoffdichte der einzelnen Glaskugelfractionen über den Partikeldurchmesser.

wobei V_{Hohl} das Hohlraumvolumen, V_p das von den Partikeln belegte Volumen und V das Gesamtvolumen des Haufwerkes ist. Durch die bekannte Partikeldichte und die abgewogene Masse der in der Schüttung verwendeten Partikel lässt sich das Partikelvolumen ermitteln zu

$$V_p = \frac{M}{\rho_p} \quad (3.3)$$

Die in dieser Arbeit nach Gl. (3.2) berechneten Porositäten für jeden einzelnen Versuch liegen im Bereich $\psi = 0,35 - 0,38$ (s. Anhang A.6). Diese Werte stimmen gut mit den Daten aus der Literatur überein. Nach [Kri 1], [Sch 5] besitzen regellose Schüttungen aus gleich großen Kugeln eine Porosität von $\psi = 0,36 - 0,42$. Dabei wird der Bereich $\psi = 0,36 - 0,38$ von Schüttungen, die gerüttelt wurden und deshalb etwas dichter sind, abgedeckt.

- Permeabilität

Die Permeabilität ist ein Maß für die Durchlässigkeit einer Schüttung und besitzt die Dimension [m^2]. Für monodisperse Schüttungen kugelförmiger Partikel und kleine Strömungsge-

schwindigkeiten lässt sich die Permeabilität κ nach *Kozeny* [*Koz I*] in Abhängigkeit von Porosität und Partikeldurchmesser berechnen zu

$$\kappa = \frac{1}{150} \frac{\bar{d}_p^2 \psi^3}{(1 - \psi)^2}. \quad (3.4)$$

- Effektive Wärmeleitfähigkeit

Die effektive Wärmeleitfähigkeit der nicht durchströmten Kugelschüttung λ_{bed} wurde für mäßige Temperaturen nach dem Modell von *Zehner* und *Schlünder* [*Zeh I*], [*Tso I*] ermittelt zu

$$\lambda_{bed} = \lambda_l \left(1 - \sqrt{1 - \psi} + k_c \sqrt{1 - \psi} \right) \quad (3.5)$$

mit

$$k_c = \frac{2}{N} \left(\frac{B}{N^2} \frac{k_p - 1}{k_p} \ln \frac{k_p}{B} - \frac{B+1}{2} - \frac{B-1}{N} \right), \quad (3.6)$$

$$N = 1 - (B/k_p), \quad (3.7)$$

$$k_p = \lambda_p / \lambda_l, \quad (3.8)$$

$$B = C_f \left(\frac{1 - \psi}{\psi} \right)^{10/9}. \quad (3.9)$$

Hierbei sind λ_l die Wärmeleitfähigkeit des binären Isopropanol-Wasser-Gemisches (s. Anhang A.1.4) und λ_p die Wärmeleitfähigkeit des Glases, die nach Herstellerangaben 0,8 W/(mK) beträgt. Der in Gl. (3.9) vorkommende Formfaktor C_f beschreibt den Einfluss der Partikelform. In dieser Arbeit wird der für monodisperse Kugelschüttungen aus der Literatur bekannte (empirisch ermittelte) Wert $C_f = 1,25$ verwendet [*Tso I*].

3.1.2 Eigenschaften des binären Stoffsystems Isopropanol/Wasser

- Wahl des Stoffsystems

Die Wahl des binären Stoffsystems für die experimentellen Untersuchungen fiel auf das Gemisch Isopropanol/Wasser. Dies hat mehrere Gründe: Zum einen liegen zu diesem Gemisch zahlreiche experimentelle und theoretische Untersuchungen (z.B. [Sch 3], [Rie 1] und [Blu 1]) vor, so dass seine Stoffwerte und Eigenschaften sehr gut bekannt sind. Zum anderen erfordert die Entstehung von Mikrokonvektion nicht nur genügend große Temperatur- bzw. Konzentrationsgefälle, sondern auch einen geeigneten Bereich der Stoffwerte ($\rho_{l,i}$, $\sigma_{l,i}$, $\nu_{l,i}$, u.a.) der beteiligten Gemischkomponenten, was bei Isopropanol und Wasser der Fall ist.

Bei Isopropanol/Wasser handelt es sich um ein azeotropes Gemisch, bei dem die beiden Komponenten im ganzen Konzentrationsbereich vollständig mischbar sind. Der azeotrope Punkt liegt bei einem Isopropanolmolenbruch von ca. $\tilde{x}_{1,B} = 0,67$. Durch Änderung der gaseitigen Bedingungen (der Strömungsform und des gaseitigen kinetischen Trennfaktors K_g) kann dieser Punkt zu kleineren Werten von $\tilde{x}_{1,B}$ verschoben werden. Man erhält auf diese Weise einen azeotropen Bereich zwischen $0,33 \leq \tilde{x}_{1,B} \leq 0,67$. Wenn die Anfangszusammensetzung des Gemisches in diesem Bereich liegt, lassen sich die beiden Komponenten u.U., d.h. für einen jeweils bestimmten Wert von K_g , nicht trennen, die Verdunstung würde dann unselektiv verlaufen. Da wir aber den Einfluss der Mikrokonvektion auf die Selektivität untersuchen möchten, wurden hier die Versuche außerhalb des azeotropen Bereichs durchgeführt.

- Oberflächenspannung und Dichte des Gemisches

Isopropanol ist die leichterflüchtige Komponente und weist sowohl eine geringere Oberflächenspannung als auch eine geringere Dichte auf als Wasser. Die Oberflächenspannung des Flüssigkeitsgemisches wurde nach einer Korrelation von Blumberg [Blu 1], angepasst an Daten von Stephan und Hildwein [Ste 1], bestimmt (s. Anhang A.1.4) und die Dichte wurde aus Stoffdaten der reinen Komponenten [Lie 1], [Str 1] nach der Gleichung

$$\rho_l = (\tilde{x}_1 \tilde{M}_1 + \tilde{x}_2 \tilde{M}_2) \left[\tilde{x}_1 \frac{\tilde{M}_1}{\rho_{l,1}} + \tilde{x}_2 \frac{\tilde{M}_2}{\rho_{l,2}} \right]^{-1} \quad (3.10)$$

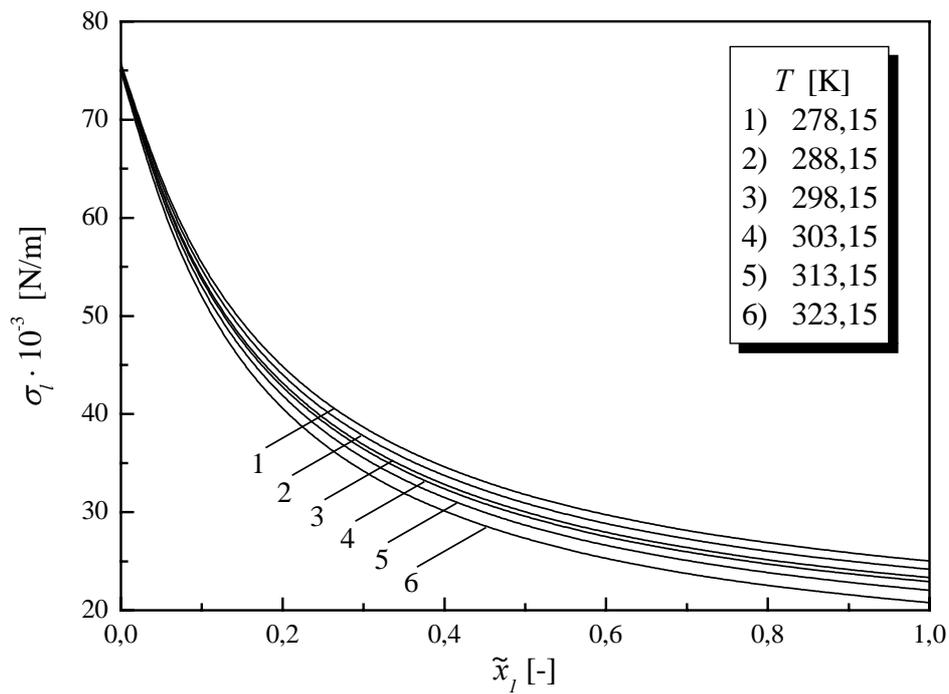


Abbildung 3.2: Oberflächenspannung des Isopropanol-Wasser-Gemisches in Abhängigkeit von der Zusammensetzung bei unterschiedlichen Temperaturen.

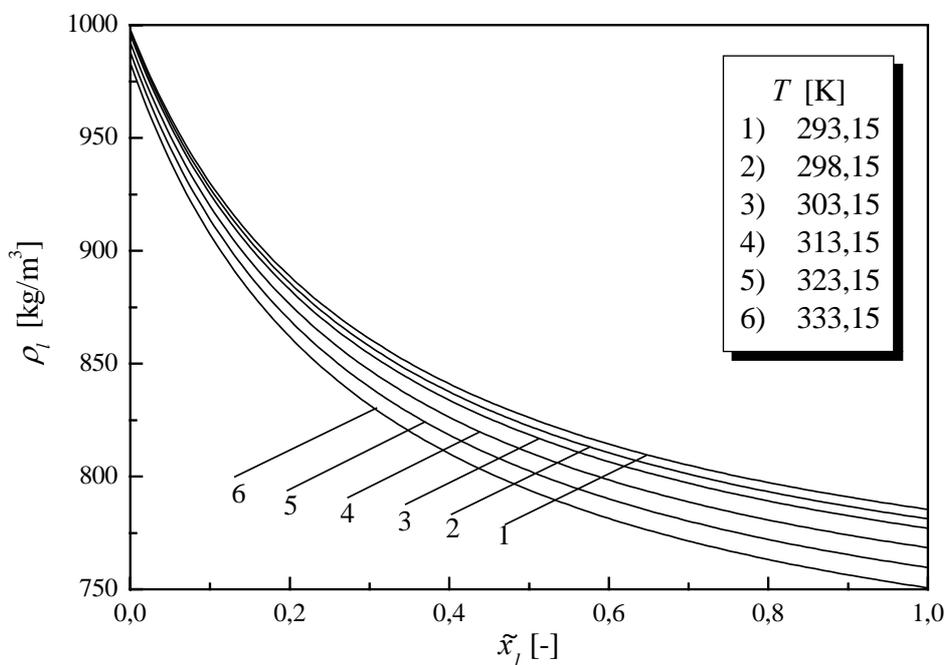


Abbildung 3.3: Dichte des flüssigen Isopropanol-Wasser-Gemisches in Abhängigkeit von der Zusammensetzung bei unterschiedlichen Temperaturen.

erhalten, wobei \tilde{M}_i die molare Masse der Komponente i im Gemisch ist.

Abbildungen 3.2 und 3.3 zeigen die Verläufe der Oberflächenspannung bzw. der Dichte des Gemisches in Abhängigkeit von der Flüssigkeitszusammensetzung bei unterschiedlichen Temperaturen. Man stellt fest, dass mit zunehmender Temperatur die Werte von σ_i bzw. ρ_i abfallen. D.h., beide Gemischeigenschaften weisen eine gegenläufige Abhängigkeit von der Temperatur auf.

Bei der Berechnung der Selektivität der Verdunstung spielt das thermodynamische Gleichgewicht des Systems eine wesentliche Rolle. Es soll deshalb kurz erläutert werden.

- Phasengleichgewicht

Unter der Annahme, dass an der Phasengrenze Gleichgewicht zwischen Dampf und Flüssigkeit herrscht, ist die Gaszusammensetzung $\tilde{y}_{i,Ph}$ an die Flüssigkeitszusammensetzung $\tilde{x}_{i,Ph}$ gekoppelt. Die Kombination zwischen erweitertem *Raoult'schen* Gesetz in der realen flüssigen Phase und dem *Dalton'schen* Gesetz in der idealen Gasphase führt zur Beziehung

$$\tilde{y}_{i,Ph} = \tilde{x}_{i,Ph} \gamma_i(\tilde{x}_{i,Ph}) \frac{p_i^0}{p} \quad (3.11)$$

für das thermodynamische Gleichgewicht an der Phasengrenze. Dabei werden die Dampfdrücke der reinen Komponenten p_i^0 mit *Antoine*-Gleichungen und die Aktivitätskoeffizienten γ_i , die die Abweichung vom idealen Verhalten des Gemisches berücksichtigen, nach der *UNIQUAC*-Methode berechnet (s. Anhang A.1). Das so ermittelte Phasengleichgewicht des Isopropanol-Wasser-Gemisches ist in Abb. 3.4 dargestellt. Der Punkt, an dem die Gleichgewichtskurve die Diagonale schneidet, ist der bereits erwähnte thermodynamische azeotrope Punkt. Abbildung 3.5 zeigt das Siedediagramm des Gemisches Isopropanol/Wasser bei einem Druck von $p = 1,013 \text{ bar}$. Es ist zu sehen, dass sich das binäre Stoffsystem durch ein Siedetemperaturminimum bzw. ein Dampfdruckmaximum charakterisiert.

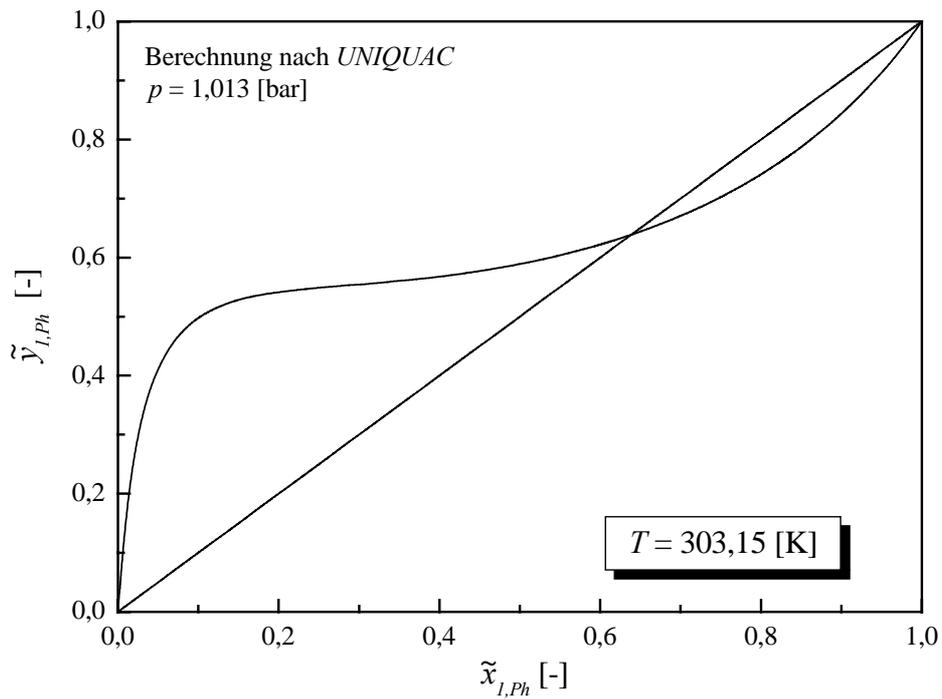


Abbildung 3.4: Zusammensetzungsdiagramm beim thermodynamischen Gleichgewicht des binären Stoffsystems Isopropanol/Wasser.

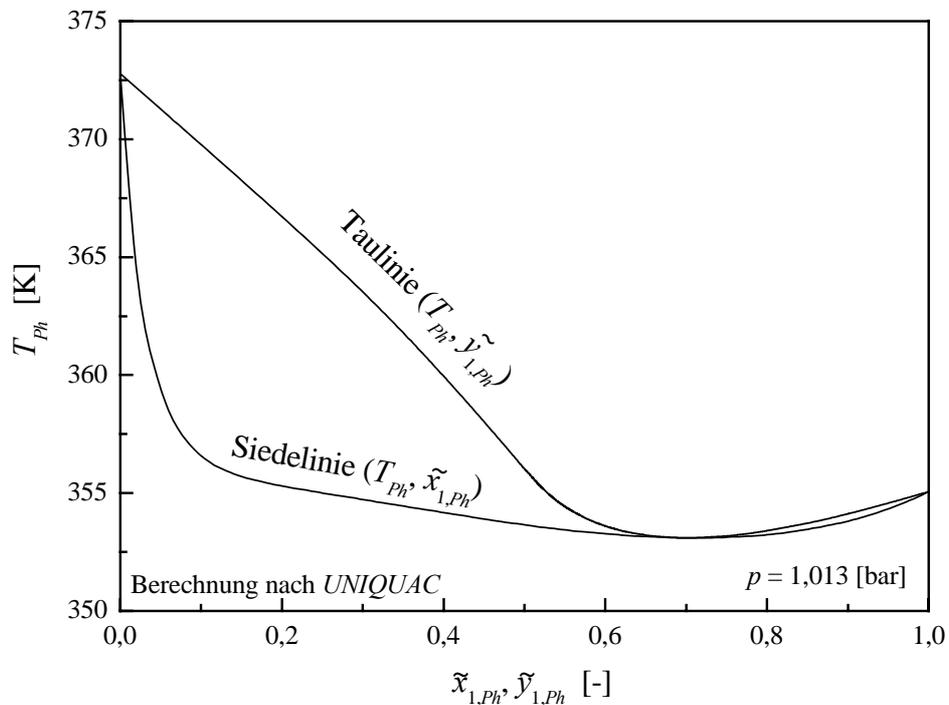


Abbildung 3.5: Siedediagramm des binären Stoffsystems Isopropanol/Wasser.

- Diffusionskoeffizient

Als Bezugsgröße, aber auch zur Berechnung der durch Mikrokonvektion ungestörten Verdunstung ist die Kenntnis des Diffusionskoeffizienten in der flüssigen Phase notwendig. In Abb. 3.6 sind der molekulare binäre (s. Anhang A.1.4) bzw. der effektive Diffusionskoeffizient (Gl. (2.16)) in Abhängigkeit von der Zusammensetzung dargestellt. Infolge der behinderten Bewegung der diffundierenden Moleküle durch die Schüttung (feste Phase) ist $D_{l,eff}$ immer kleiner als D_l .

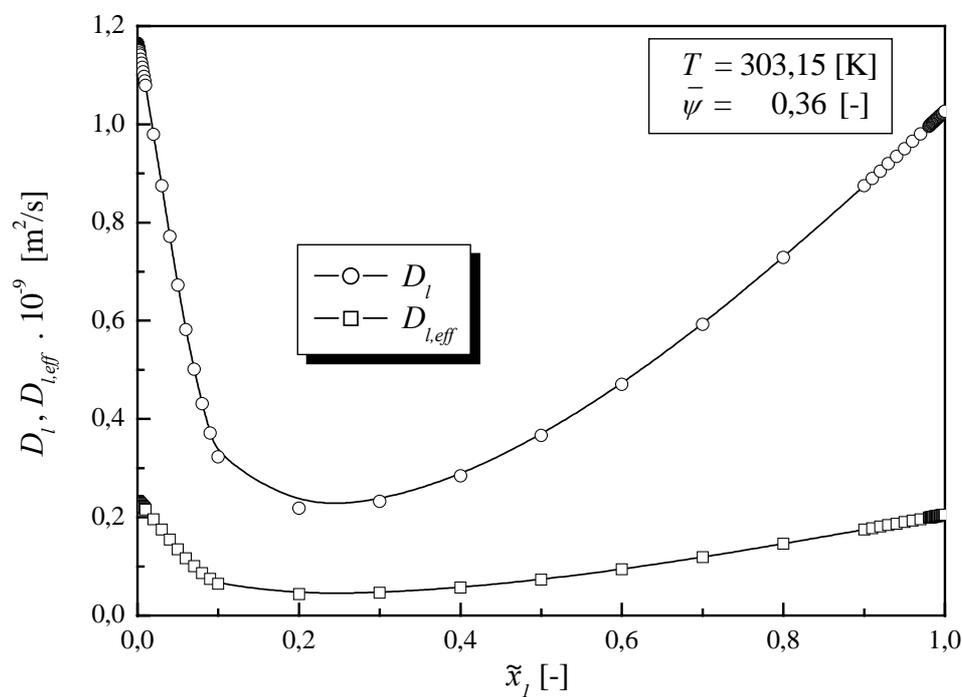


Abbildung 3.6: Molekularer binärer bzw. effektiver flüssigseitiger Diffusionskoeffizient für das Gemisch Isopropanol/Wasser in Abhängigkeit von der Zusammensetzung, ($\bar{\psi}$: mittlere Schüttungsporosität).

Die weiteren Stoffwerte der reinen Komponenten sowie des Gemisches sind im Anhang A.1 zu finden.

3.2 Versuchsaufbau

3.2.1 Beschreibung der Versuchsanlage

Für die experimentellen Untersuchungen der Verdunstung eines binären Flüssigkeitsgemisches aus Schüttungen in Trägergas wurde eine neuartige Versuchsanlage konstruiert, die folgenden Anforderungen genügen sollte:

- Aufprägen eines definierten und kontrollierbaren flüssigseitigen Stofftransportwiderstandes;
- Vollständige, erzwungene konvektive Durchmischung im Kern der beiden Phasen, aber keine derartige Durchmischung in der Schüttung;
- Einstellung und kontinuierliche Messung der Temperatur in der Gas- und Flüssigkeitsphase sowie des Gasvolumenstromes;
- Experimentelle Ermittlung von Zusammensetzungsverläufen während der Verdunstung; Quantifizierung des Einflusses verschiedener Betriebs- und Geometrieparameter auf den Verdunstungsverlauf.

Basis der Versuchsanordnung war die von *Post* [*Pos* 2] entworfene Laborapparatur zur Messung von Selektivitätsverläufen während der Verdunstung aus ebenen, parallelen Spalten. Die konstruktiven Unterschiede bei der neugebauten Anlage liegen in der Art der verwendeten Geometrie, die den flüssigseitigen Stofftransportwiderstand erzeugt, nämlich monodisperse Kugelschüttung statt Platte mit ebenen Spalten, in der Messmethode zur Erfassung der verdunsteten Stoffmengen im Laufe des Prozesses sowie in der zuverlässigen Isolierung des Prozessraumes und damit realisierten Vermeidung eines Einflusses von der Umgebung. Als poröse Matrix wurde die monodisperse Kugelschüttung ausgewählt, denn sie hat eine große praktische Anwendung in der Prozesstechnik (z.B. Festbettreaktor) sowie in der Produktgestaltung. Mit Hilfe eines optischen Messverfahrens wurde in der Apparatur von *Post* die Lage des Floaters kontinuierlich abgetastet und dadurch den Füllstand des Gemisches gemessen. Die verdunsteten Mengen ließen sich aus der Änderung der Füllstandshöhe ermitteln. Im neukonzipierten Versuchsstand wurden mittels eines IR-Spektrometers die Volumenprozent der beiden Komponenten im Trägergas gemessen und mittelbar aus denen die Verdunstungsmengen bestimmt. Bei dem von *Post* verwendeten optischen Verfahren hängt die Messgenauigkeit nicht nur von der Genauigkeit des benutzten Laser-Wegmesssystems, sondern auch von der

genauen Position der Oberkante der Floaterplatte ab. Bei der hier angewendeten Messmethode spielt nur der Messfehler des Gasanalysators eine Rolle für die Messgenauigkeit. Für die Beobachtung der Position des Floaters wurde in der Apparatur von *Post* absichtlich die Vorderwand des Prozessraumes unisoliert gelassen, annehmend, dass eine schiefe Lage der Platte einen größeren Einfluss auf die Messung als die Umgebung ausübt. Um diese Beeinflussung von den Umgebungsbedingungen zu minimieren, wurde die Messkammer bei der neu aufgebauten Versuchsanlage in einem Heizschrank hineingelegt.

In Abb. 3.7 ist ein Fließbild der neuen Versuchsanlage mit den wichtigsten Mess-, Steuer- und Regeleinrichtungen zu sehen.

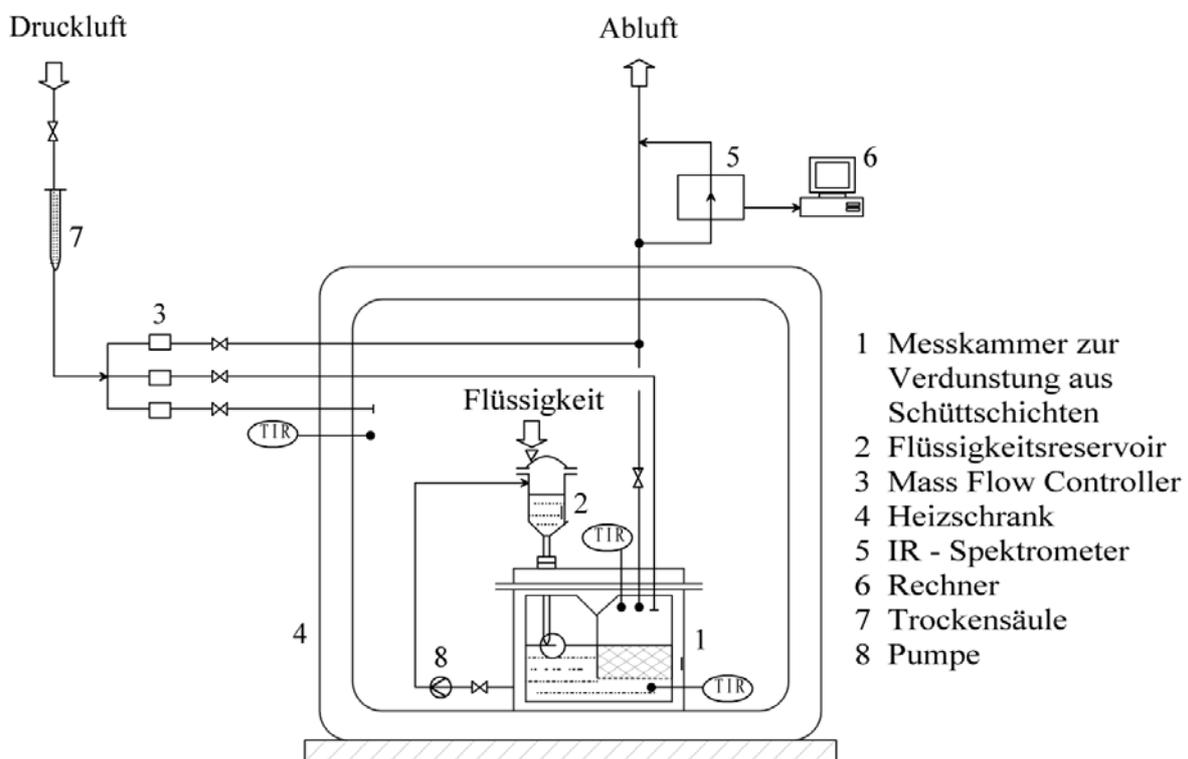


Abbildung 3.7: Verfahrensfließbild der Versuchsanlage zur Verdunstung aus Schüttungen.

Die in die Messkammer (1) einzuführende Luft wird zuerst in einer Trockensäule (7) vorge-trocknet, damit sie vernachlässigbar kleinen Wasseranteil enthält. Als Adsorbent dient eine Zeolithschüttung aus Molekularsieb UOP Typ 4A (4 \AA) der Firma *Fluka Chemie AG*, die eine hohe Aufnahmekapazität besitzt. Die Luft strömt danach durch einen von den drei der Apparatur angeschlossenen Mass Flow Controller (MFC) der Firma *Aera GmbH*, der den Gasstrom auf einem individuell einstellbaren Wert konstant hält. Die anderen zwei Mass

Flow Controller werden am Ende jedes Versuches für die Trocknung der Messkammer bzw. des IR-Spektrometers verwendet. Die exakte Bestimmung der Gasmenge beruht auf der Erfassung der vom jeweiligen Gasfluss (Massenstrom) abhängigen Wärmeausbreitung mittels integrierter Durchflusssensoren und ist von der Umgebungstemperatur, dem Gasdruck und der Einbaulage weitgehend unabhängig. Selbst Ströme „nicht idealer“ Gase können damit gemessen und geregelt werden. Das Gerät wurde für die Verwendung von Luft eingestellt (Fa. *Aera GmbH*: $T_{g,0} = 273,15 \text{ K}$, Umgebungsdruck p), und die Massenströme werden direkt in Volumenströme umgerechnet. Der Messbereich liegt bei $1 - 12 \text{ l/min}$, die Messgenauigkeit beträgt nach Herstellerangaben 2% des Anzeigewertes.

In der Messkammer (1) wird die Temperatur des Inertgases mit einem am Deckel platzierten Temperaturfühler (Pt 100) gemessen. Mit einer dazugehörigen äußeren Thermostatisierungseinrichtung wird die Temperatur des Gases konstant gehalten (Genauigkeit: $\pm 0,1 \text{ K}$). Durch die Erwärmung des eintretenden Gasstromes mittels einer regelbaren elektrischen Heizeinrichtung, wird eine schnelle Ansprechzeit und somit eine bessere Temperaturangleichung beim Anfahren erreicht. Es wurde überprüft, dass die Temperatur im gesamten Gasraum nahezu konstant ist, der Temperatur $T_{g,B}$ entsprechend und in Übereinstimmung mit der Annahme idealerer Rückvermischung.

Im Gasraum nimmt die Luft einen bestimmten Anteil an Isopropanol bzw. Wasser auf. Die Abluftanalyse wird mittels eines Gasanalysators BINOS[®] 1000 (5) von *Rosemount GmbH & Co.* durchgeführt. Das Gerät ist mikroprozessorgesteuert und kann durch entsprechende Programmiermöglichkeiten vollautomatisch betrieben werden. Es nutzt das von der Gasart abhängige Absorptionsspektrum (IR- bis UV-Bereich), um die Konzentrationen im Abgas zu bestimmen. Das verwendete IR-Spektrometer zeigt einen Messfehler von $< 2\%$ des Messbereichswertes, eine Linearitätsabweichung von $< 1\%$, und der Nullpunkt verschiebt sich um weniger als 2% pro Woche. In diesem Zusammenhang wurde vor jedem Versuchsstart ein Nullabgleich durchgeführt. Übrigens lieferte das vorhandene Gerät nur für Ethanol einen realen Wasserwert, deshalb wurde es auf die im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Reinkomponenten Isopropanol bzw. Wasser umlinearisiert (s. Anhang A.4). Nach Herstellerangaben muss der Messgasstrom im Gasanalysator im Bereich $0,5 - 1,5 \text{ l/min}$ liegen. Durch einen Kollektor-Gleichstrommotor Typ GR 42x25 der Fa. *Dunkermotoren*, angeschlossen an einen Gleichspannungsregler Typ 3224 (Fa. *Statron*), wurde ein konstanter Abluftdurchfluss von $1,0 \text{ l/min}$ im Gasanalysator gewährleistet. Der Anschluss des IR-Spektrometers an einen Computer (6) ermöglicht mit Hilfe einer speziellen Kommunikationssoftware die vollautomatische Datenerfassung. Die Kenntnis der Konzentration der beiden verdunstenden Kompen-

ten in der Luft erlaubt die Rückrechnung auf die Flüssigkeitszusammensetzung und dadurch die Ermittlung der Selektivität.

Der Flüssigkeitsstand in der Messkammer (1) wird durch ein Schwimmersystem und ein Flüssigkeitsreservoir (2) konstant an der Oberkante der Schüttung gehalten (s. Abbn 3.8 und 3.10). Die verdunstete Flüssigkeit wird in bestimmten Zeiträumen (2-3 mal pro Tag) durch Nachschub ersetzt. In diesem Zusammenhang werden diskontinuierlich Proben mittels einer Spritze aus der Flüssigkeit gezogen, welche mit Hilfe eines digitalen Dichtemessgeräts DMA 58 (Fa. Chempro-Paar) analysiert werden. Dabei wird die momentane Dichte des Isopropyl-Wasser-Gemisches bestimmt (s. Anhang A.5). Mittels einer von Post [Pos 1] aufgenommenen Eichkurve wird diese Dichte in entsprechende Molanteile $\tilde{x}_{i,B}$ umgerechnet (s. Anhang A.5). Mit dieser aktuellen Zusammensetzung wird Flüssigkeit ins Reservoir nachgefüllt. Die Genauigkeit des Dichtemessgeräts von $\pm 1,0 \cdot 10^{-5} \text{ g/cm}^3$ ist durch wiederholte Messungen überprüft und bestätigt worden.

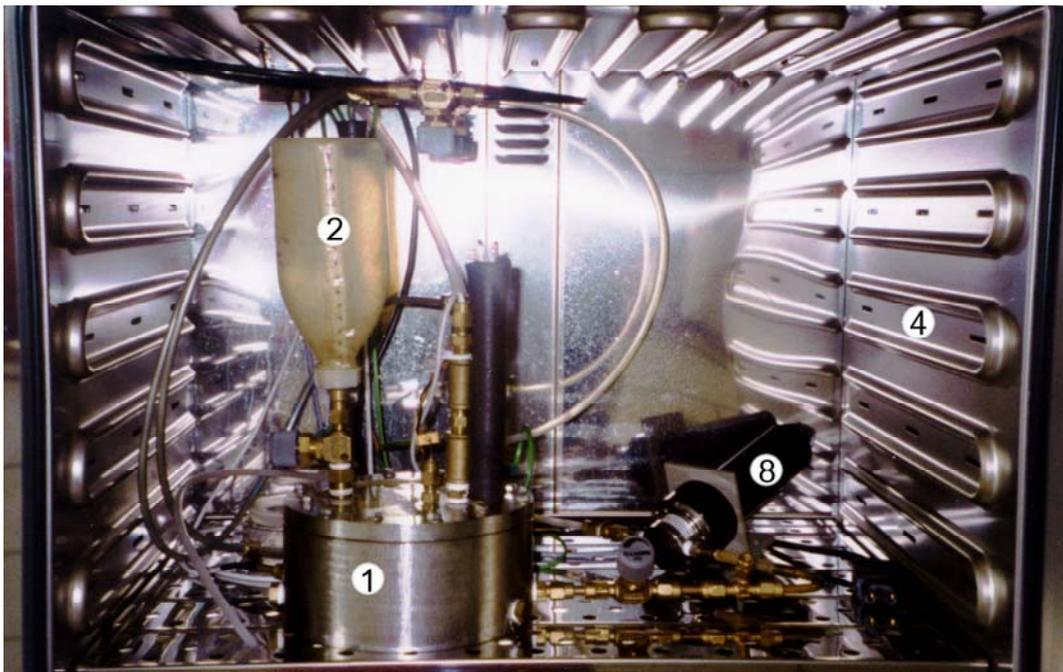


Abbildung 3.8: Anordnung der Versuchseinrichtungen im Heizschrank.

Durch den verwendeten Heizschrank Typ ULE 500 (4) der Firma *Memmert GmbH & Co. KG* wird die Temperatur im Flüssigkeitsgemisch konstant gehalten (kein Einfluss der Umgebungstemperatur). Die maximale Temperaturabweichung beträgt nach Herstellerangaben ± 1 °C. Dieser Heizschrank zeigt hohe Regelgenauigkeit sowie kurze Aufheiz- und Erholzeiten.

Mit einer elektrisch steuerbaren magnetgekuppelten Zahnradpumpe MS-Z (8) der Fa. *Ismatec SA* wird ein kontinuierlich einstellbarer Volumenstrom aus dem Kern der Flüssigkeit abgesaugt und in das Flüssigkeitsreservoir (2) gefördert. Dadurch wird eine vollständige Durchmischung im Kern der Flüssigkeit und damit eine einheitliche und messbare Kernzusammensetzung gewährleistet. Diese Art Pumpen sind auch für sehr hohe oder tiefe Medientemperaturen und hohe Drücke geeignet. Die Magnetkupplung gewährleistet einen verschmutzungs- und leckfreien Betrieb (Förderbereich: 2 – 210 ml/min). Bei der verwendeten Pumpe sind Antrieb und Steuereinheit voneinander getrennt (2 m Kabel).

Der Einfluss der Pumpenleistung auf die Durchmischung im Kern der Flüssigkeit bzw. in der Schüttung wurde experimentell bei unterschiedlichen Fließraten überprüft. Als Ergebnis der Messungen konnte nachgewiesen werden (s. Abb. 3.9), dass für Durchflussmengen von $\dot{V}_l = 45 - 62 \text{ ml/min}$ eine gute Durchmischung im Kern der Flüssigkeit aber keine Vermischung in der Schüttung erreicht wird. D.h., in diesem Förderbereich der Pumpe wird die selektive Verdunstung, wenn überhaupt, nur von den gewünschten Grenzflächenkonvektionen begleitet. Markierungsversuche für die Einschätzung der Eindringtiefe der von der Pumpe erzeugten Konvektion in die Schüttung bei unterschiedlichen Durchflussmengen konnten aus apparativen Gründen nicht durchgeführt werden, da die Messkammer aus Stahl angefertigt war. Möglich war jedoch ein Vergleich zwischen den Permeabilitäten der von *Post [Pos I]* verwendeten Platten bzw. der hier angewendeten Schüttungen. Dabei wurde festgestellt, dass die Durchlässigkeit der Platten um einige Größenordnungen höher als jene der Schüttungen liegt (κ der Platten: $2,08 \cdot 10^{-8} - 1,87 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2$, κ der Schüttungen: $4,02 \cdot 10^{-11} - 9,30 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$). Daraus kann geschlossen werden, dass die Pumpe, die im Spalt nachweislich keine Vermischung auslöst (s. [*Pos I*]), auch keine Vermischung in der Schüttung erzeugt. Aufgrund der beiden Befunde wurde bei allen hier durchgeführten Experimenten mit der Durchflussmenge von $\dot{V}_l = 50 \text{ ml/min}$ gearbeitet.

Durch den im Vergleich zum kleinen Gasraum hohen Eintrittsgasvolumenstrom ($\dot{V}_g = 8,0 \text{ l/min}$) wurde eine vollständige Durchmischung im Kern der Gasphase erreicht. Sie ist nötig, damit eine einheitliche und messbare Kernzusammensetzung sowie eine kontinuierliche Erfassung derselben außerhalb der Apparatur geschaffen werden. Der Gasstrom wurde durch einen seitlich gebogenen Stutzen in den Gasraum eingedüst (s. Abb. 3.10), damit er in der Schüttung keine erzwungene Konvektion bewirkt. Zugleich wird durch entstehende Gaswirbel im Kern der Gasphase eine ideale Durchmischung gewährleistet.

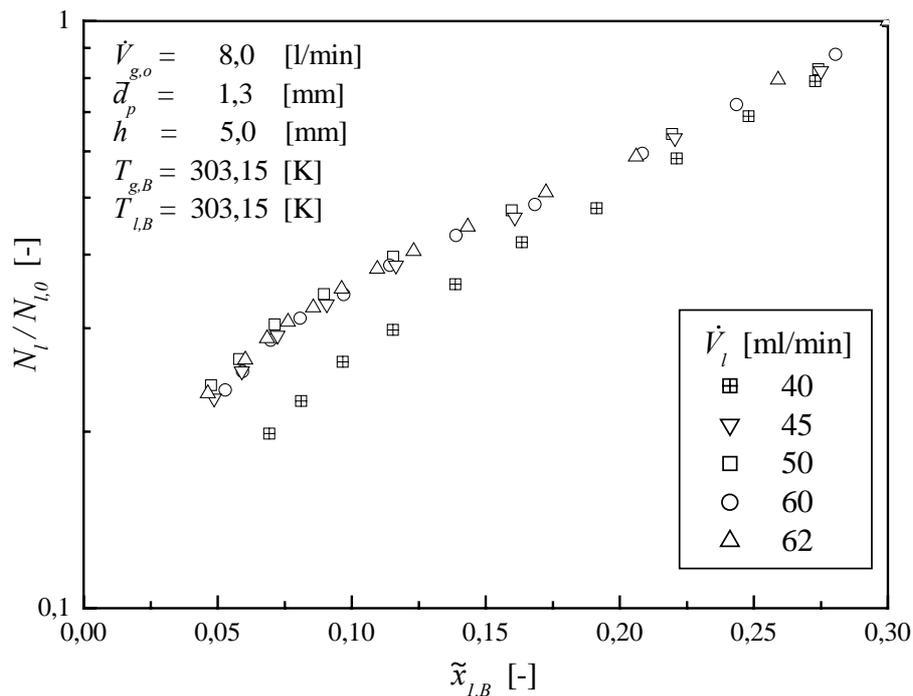


Abbildung 3.9: Zusammensetzungsverlaufskurven bei unterschiedlichen Durchflussmengen.

Die Messkammer (1) besteht aus einem äußeren Edelstahlzylinder, in dem ein herausnehmbarer Edelstahlinsert mit zwei gebohrten zylindrischen Hohlräumen eingebettet ist. Der im Vergleich mit dem Außenzylinder kürzere Insert ist derart platziert, dass sich im unteren Teil des Außenzylinders eine durchgängige Flüssigkeitsschicht bildet. Der Prozessraum (rechts in Abb. 3.10) hat eine Höhe H und einen Innendurchmesser D von 60 mm .

Kernstück der Apparatur ist die monodisperse Kugelschüttung, die vollständig mit Flüssigkeit bedeckt ist (s. Abb. 3.10). Durch das am unteren Rand des Prozessraumes befestigte Sieb werden die Partikel gehalten. Die Maschenweite des jeweils verwendeten Edelstahlsiebes von Fa. *Filtertechnik GmbH Willy Spee* ist der Größe der Partikeln angepasst ($0,2 \text{ mm}$, $0,4 \text{ mm}$, $1,0 \text{ mm}$, $2,0 \text{ mm}$ bzw. $3,0 \text{ mm}$), damit der Einfluss des Siebes auf die Durchgängigkeit der Stoffströme vernachlässigbar klein bleibt. Die auf diese Weise im Gemisch gelagerte Kugelschüttung erzeugt in der Flüssigphase eine künstliche Grenzschicht, die den Stofftransport limitieren sollte. Die Schüttungshöhe h und der Partikeldurchmesser \bar{d}_p sind variierbar, daher kann der künstlich initiierte flüssigseitige Stofftransportwiderstand kontrolliert eingestellt werden.

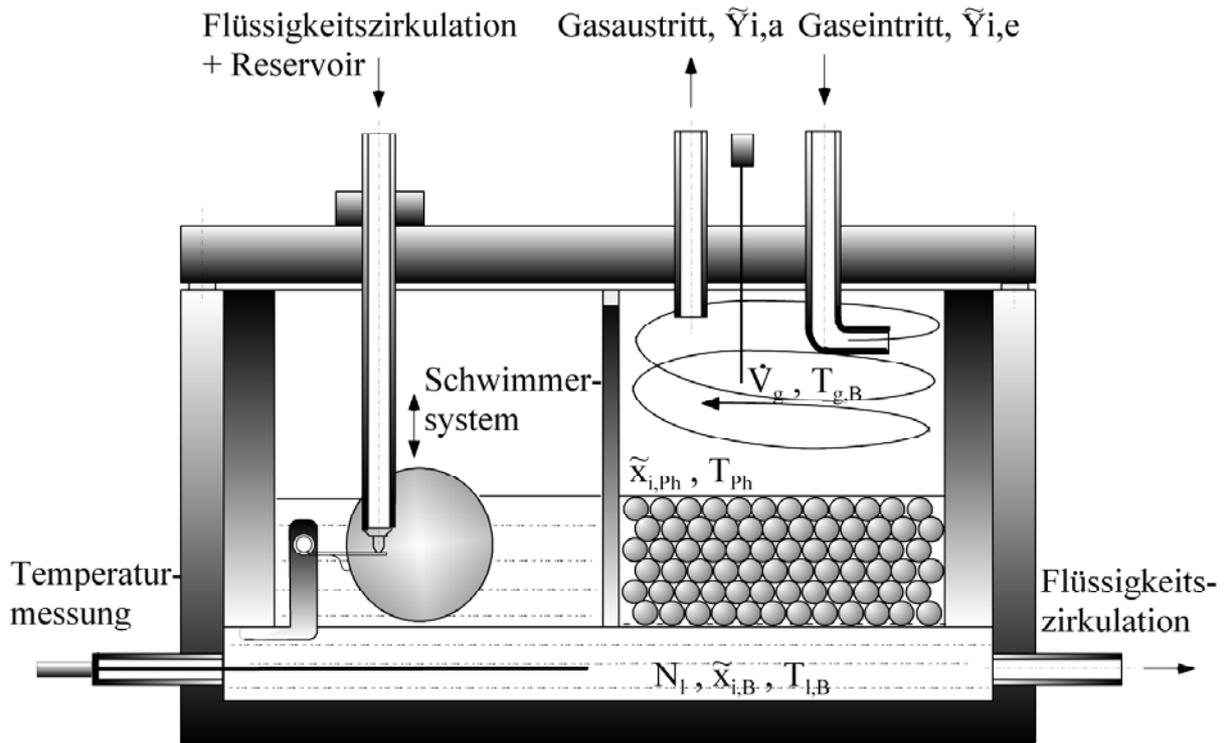


Abbildung 3.10: Querschnitt durch die Messkammer (1) zur Verdunstung des binären Gemisches Isopropanol/Wasser aus einer monodispersen Kugelschüttung in trockene Luft.

3.2.2 Versuchsdurchführung

Vor dem Start eines neuen Versuches werden die beiden Gemischkomponenten einzeln abgewogen ($M_{l,i,0}$), miteinander vermischt und in das Flüssigkeitsreservoir eingefüllt. Nachdem der Deckel der Apparatur aufgesetzt und luftdicht mit dem unteren Teil verbunden wurde, und sich konstante Bedingungen im Versuchsraum eingestellt haben, erfolgt der Beginn des Versuches. Um zu erfassen, wie sich mit der Zeit das System verhält, ist eine kontinuierliche und störungsfreie Analyse aller entsprechenden Größen über einen längeren Zeitraum (5-7 Tage) notwendig. Da es unmöglich ist, die Flüssigkeit bis zu einem notwendigen, niedrigen Niveau verdunsten zu lassen, wurden stets mehrere Teilversuche durchgeführt. Als Anfangswert der neuen Messung wird dabei der Molanteil der vorherigen gesetzt. Zur Auswertung eines gesamten Versuches ist die Kopplung der Einzelexperimente erforderlich.

Das Verhältnis zwischen der vorhandenen, N_l , und am Anfang eingesetzten Flüssigkeitsmenge, $N_{l,0}$, kann in Form einer Reihe formuliert werden zu

$$\frac{N_l}{N_{l,0}} = \frac{N_{l,1}}{N_{l,0}} \frac{N_{l,2}}{(N_{l,1} + \Delta N_l)} \cdots \frac{N_{l,n+1}}{(N_{l,n} + \Delta N_l)}, \quad (3.12)$$

wobei $N_{l,n}$ die molare Stoffmenge im Apparat, bevor eine bestimmte erforderliche Flüssigkeitsmenge ΔN_l in das Reservoir nachgefüllt wird, angibt. Die Summe aus den beiden Werten ergibt die gesamte Stoffmenge zu Beginn des neuen Teilexperimentes.

In Abhängigkeit von der Verdunstungsrate wird normalerweise 2 bis 3 Mal pro Tag ein neues Teilexperiment gestartet. Zu diesem Zeitpunkt werden die erforderlichen Daten (Dichte des Gemisches und Abluftbelastungen des Inertgases mit den beiden Komponenten) aufgenommen. Ein Versuch wird beendet, wenn bei der Analyse des Abgases keine Isopropanol- bzw. Wasserbelastung mehr nachweisbar ist. Die Reproduzierbarkeit der Versuche wurde überprüft (s. Tabellen A6.3 und A6.8 im Anhang A.6). Sie war stets gut.

3.3 Auswertungsmethoden

3.3.1 Bestimmung der gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten

Die Berechnung der Anzahl der gaseitigen Stoffübergangseinheiten $NTU_{g,i}$ (s. Gl. (2.20) im Abschnitt 2.2.1), die ein wichtiger Parameter im entwickelten Modell ist, beruht auf der Kenntnis der gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_{g,i}$. In diesem Zusammenhang wurden Vorversuche mit den beiden Reinkomponenten Isopropanol bzw. Wasser durchgeführt. Unter der Annahme geringer Konzentrationen der übergehenden Stoffkomponenten im Trägergas ($\tilde{y}_i \ll 1$) lassen sich die Ergebnisse auf Gemischversuche übertragen. Mit der Abnahme des Flüssigkeitsvolumens im Apparat für ein bestimmtes Zeitintervall wurde der Verdunstungsstrom ermittelt zu

$$\dot{N}_i = \frac{N_{l,i} \langle t_{n-1} \rangle - N_{l,i} \langle t_n \rangle}{t_n - t_{n-1}} = \frac{n_{l,i} (V_{l,i} \langle t_{n-1} \rangle - V_{l,i} \langle t_n \rangle)}{t_n - t_{n-1}}. \quad (3.13)$$

Die Einzelexperimente wurden mit einer Schüttung der Höhe $h = 5 \text{ mm}$ und des Partikeldurchmessers $\bar{d}_p = 1,3 \text{ mm}$, sowie auch ohne Schüttung bei konstanten Betriebsparametern

($T_{l,B} = 303,15 \text{ K}$, $\tilde{Y}_{i,e} = 0$ und $\dot{V}_{g,0} = 8,0 \text{ l/min}$) und unterschiedlichen Werten von $T_{g,B}$ durchgeführt. Die Molbeladung in der Abluft lässt sich aus \dot{N}_i bestimmen gemäß

$$\tilde{Y}_{i,a} = \frac{\dot{N}_i}{\dot{N}_g}, \quad (3.14)$$

wobei sich der Molenstrom der trockenen Luft \dot{N}_g aus dem Produkt der molaren Gasdichte und dem Gasvolumenstrom \dot{V}_g ergibt zu

$$\dot{N}_g = n_g \dot{V}_g. \quad (3.15)$$

Die nach Gl. (3.14) berechneten Molbeladungswerte wurden mit den vom IR-Spektrometer angezeigten Werten verglichen. Sie stimmten stets überein. Die Werte von Isopropanol wiesen Abweichungen $< \pm 6,0 \cdot 10^{-4}$ und diese von Wasser $< \pm 7,0 \cdot 10^{-5}$ auf.

Außerdem ist an dieser Stelle zu berücksichtigen, dass der im Apparat eingeführte Gasvolumenstrom \dot{V}_g aufgrund des Temperaturunterschieds zwischen dem Kern der Gasphase und der Referenztemperatur am Mass Flow Controller (s. Abschnitt 3.2.1) unter der Annahme idealer Gasbedingungen korrigiert werden muss. Nach dem idealen Gasgesetz gilt

$$\frac{p}{\tilde{R} T_{g,B}} \dot{V}_g = \frac{p}{\tilde{R} T_{g,0}} \dot{V}_{g,0}, \quad (3.16)$$

wobei die Referenztemperatur $T_{g,0}$ nach Herstellerangaben (Fa. *Aera GmbH*) $273,15 \text{ K}$ beträgt. Die molare Gasdichte wird aus

$$n_g = \frac{p}{\tilde{R} T_{g,B}} \quad (3.17)$$

ermittelt, worin p der Umgebungsdruck, $T_{g,B}$ die Temperatur im Kern der Gasphase und \tilde{R} die universelle Gaskonstante sind. Die Molbeladung an der Phasengrenze lässt sich unter dem angenommenen Dampf-Flüssigkeitsgleichgewicht (Abschnitt 2.2.1) berechnen zu

$$\tilde{Y}_{i,Ph} = \frac{p_i^0 \langle T_{l,B} \rangle}{p - p_i^0 \langle T_{l,B} \rangle}. \quad (3.18)$$

Da hier die kleinste Schüttungshöhe ($h = 5 \text{ mm}$) verwendet wurde, ist der flüssigseitige Wärmeübergangskoeffizient α_l relativ groß und wird durch die in vergleichbaren Experimenten mit Gemischen eindeutig nachgewiesene (s. Kapitel 4), thermisch angetriebene Mikrokonvektion noch viel größer. Dass es mit der zur Auswertung der Reinstoffexperimente nötigen Genauigkeit $T_{Ph} = T_{l,B}$ gilt, wurde durch Messung der Temperatur an der Schüttungsoberfläche überprüft.

Beim Einsetzen von Gl. (3.14) in dem nach Gl. (2.6) definierten kinetischen Ansatz in der Gasphase für den Fall idealer Rückvermischung lassen sich die gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_{g,i}$ ausdrücken gemäß

$$\beta_{g,i} = \frac{\dot{N}_g}{n_g A^*} \frac{\tilde{Y}_{i,a}}{(\tilde{Y}_{i,Ph} - \tilde{Y}_{i,a})}. \quad (3.19)$$

Die auf diese Weise aus den Reinstoffexperimenten ermittelten gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_{g,i}$ werden in Abb. 3.11 als Funktionen der Temperatur im Kern der Gasphase für die beiden Fälle ohne bzw. mit Schüttung gezeigt. Die bei der Berechnung verwendeten Austauschflächen sind folgendermaßen definiert:

$$A^* = A_{Ph} = \frac{\pi D^2}{4} \text{ (freie Oberfläche) bzw.} \quad (3.20)$$

$$A^* = A_{Ph} \frac{\psi}{1 - \psi} \text{ (stoffaustauschende Schüttungsoberfläche),} \quad (3.21)$$

wobei D der Innendurchmesser des Prozessraumes ist. Ein Beleg für die Anwendbarkeit dieser Stoffaustauschflächen ist die Tatsache, dass die entsprechend abgeleiteten Werte von $\beta_{g,i}$ mit bzw. ohne Schüttung praktisch zusammenfallen (Abb. 3.11).

Die Anpassung der gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten aus den Reinstoffmessdaten in Abhängigkeit der Temperatur im Kern der Gasphase kann in den quadratischen Ausdrücken

$$\beta_{g,1}/m/s = -6,62273 \cdot 10^{-7} (T_{g,B} / ^\circ C)^2 + 1,53572 \cdot 10^{-4} (T_{g,B} / ^\circ C) + 6,76 \cdot 10^{-3}, \quad (3.22)$$

$$\beta_{g,2}/m/s = -7,10884 \cdot 10^{-6} (T_{g,B} / ^\circ C)^2 + 7,745 \cdot 10^{-4} (T_{g,B} / ^\circ C) + 1,9092 \cdot 10^{-3} \quad (3.23)$$

zusammengefasst werden.

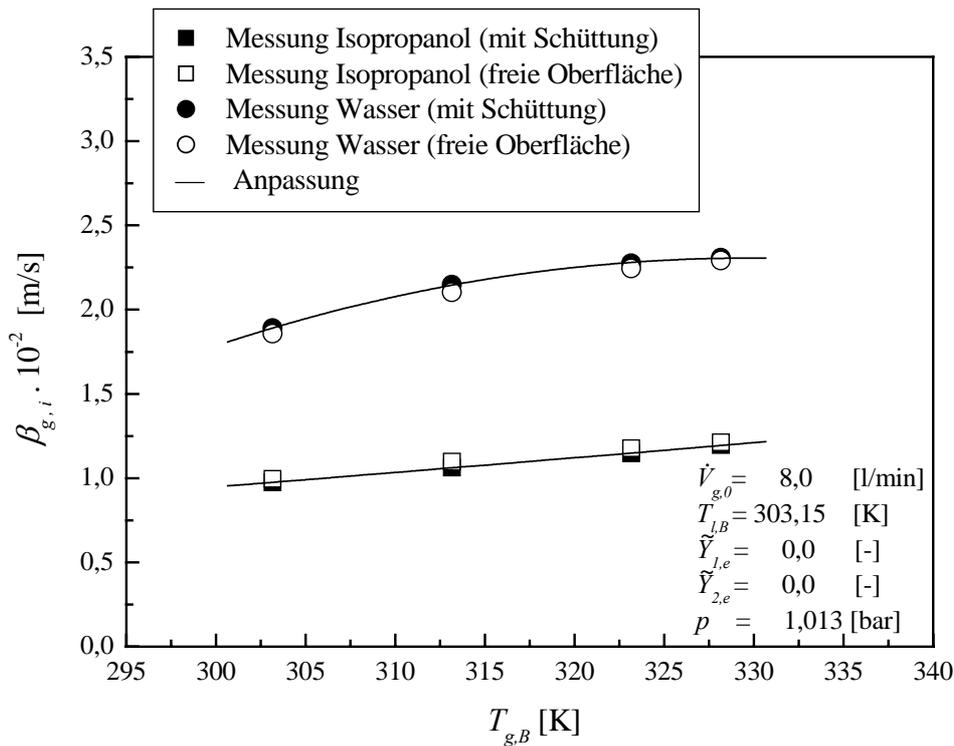


Abbildung 3.11: Abhängigkeit der gaseitigen Stoffübergangskoeffizienten der reinen Gemischkomponenten von der Gastemperatur für den Fall ohne bzw. mit einer Schüttung der Parameter $h = 5 \text{ mm}$ und $\bar{d}_p = 1,3 \text{ mm}$.

Abbildung 3.12 stellt die nach Gl. (2.21) berechneten Lewis-Exponenten n dar, die völlig zufriedenstellend mit Daten aus der Literatur ([Rie I], [Pos I]) übereinstimmen.

Die Anpassung von $\beta_{g,i}$ als Funktion der Gastemperatur ist erforderlich aufgrund der Abhängigkeit der gaseitigen Diffusionskoeffizienten $D_{g,i}$ von der selben. In der vorliegenden Arbeit werden diese nach den von Gilliland [Gil I] und von Thurner [Thu I] aufgestellten Korrelationen (s. Anhang A.1.5 und A.1.6) berechnet und in Abb. 3.13 dargestellt. Man stellt außerdem fest, dass eine Steigerung der Gastemperatur nicht nur zu einer Zunahme der Diffusi-

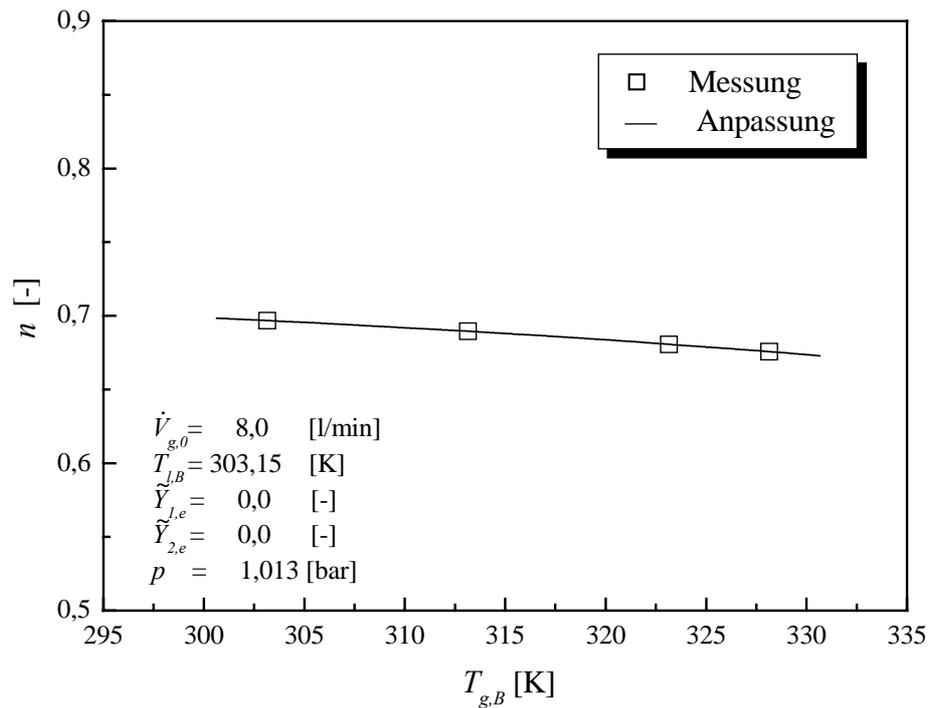


Abbildung 3.12: Der gemessene und angepasste Lewis-Exponent in Abhängigkeit von der Temperatur im Kern der Gasphase.

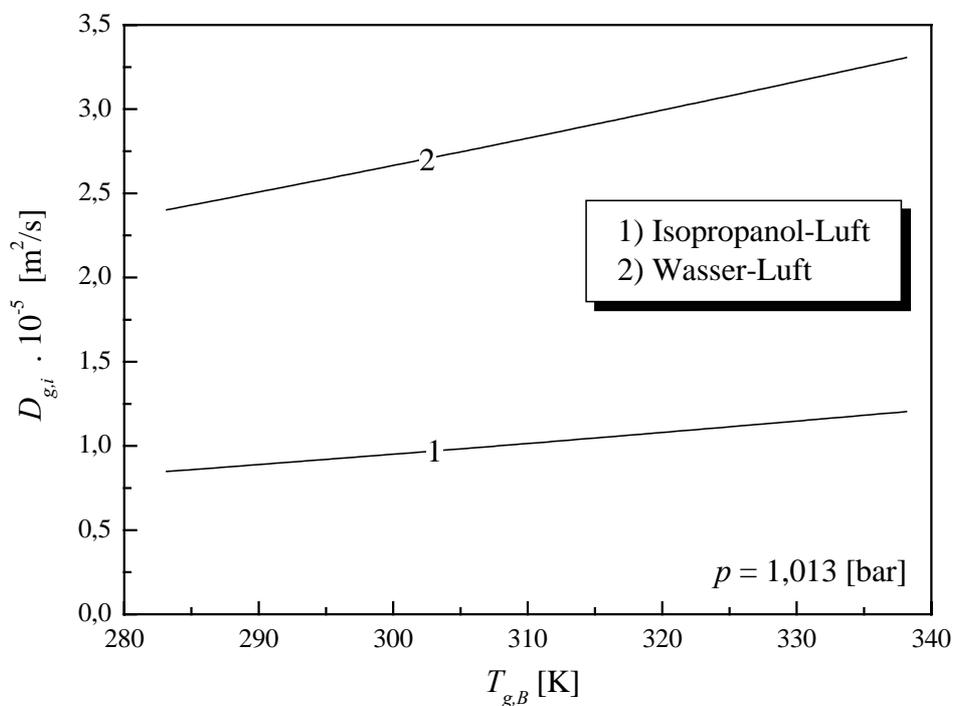


Abbildung 3.13: Gasseitige Diffusionskoeffizienten von Isopropanol (Index: 1) und Wasser (Index: 2) in Luft, in Abhängigkeit von der Temperatur.

onskoeffizienten der beiden Gemischkomponenten, sondern auch zur Erhöhung des Gasdurchsatzes nach Gl. (3.16) führt. Das hat größere Geschwindigkeiten u in der Messzelle und damit kleinere gaseitige Stofftransportwiderstände zur Folge [Pos 1]. Die Kombination beider Effekte wird von Gln (3.22), (3.23) empirisch erfasst.

3.3.2 Ermittlung der Selektivitätsverlaufskurven

Zur Ermittlung der Selektivitätsverläufe während der Verdunstung aus Schüttungen werden die Volumenprozent von Isopropanol und Wasser im Trägergas gemessen. Die automatische Datenerfassung der vom IR-Spektrometer BINOS[®] 1000 (s. Abschnitt 3.2.1) angezeigten Volumenprozent der beiden Komponenten erfolgt im regelmäßigen zeitlichen Abstand im Zusammenhang mit den vorgenommenen Einstellungen im Softwareprogramm beim Start jedes neuen Versuches. Die Messdaten werden über die serielle Schnittstelle des BINOS[®] 1000 an einen PC übertragen und in Dateiform unter der Versuchskennung auf dem Datenträger (Festplatte) abgelegt. Die BINOS[®] 1000 Kommunikationssoftware bietet die Möglichkeit zur Auswahl des BINOS Messkanals, von welchem die Zusammensetzungsdaten abgespeichert werden. Dies ermöglicht die separate Messdatenaufnahme von den einzelnen Kanälen bei den Reinstoffexperimenten und die kombinierte Datenabspeicherung von beiden Kanälen bei der Gemischverdunstung. Die Anzahl der aufzunehmenden Messwerte kann im Bereich 1 bis 1200 frei gewählt werden. Die weitere Datenauswertung beruht auf der Umrechnung der unmittelbaren Messgrößen, d.h. der Volumenprozent, in die den Verdunstungsverlauf beschreibenden Größen.

Die angezeigten Volumenprozent am Alkohol-Messkanal entsprechen dem realen Alkoholwert, während die Volumenprozent am Wasser-Messkanal aufgrund der Querempfindlichkeit Abweichungen vom realen Wasserwert aufweisen. Dies bedeutet, dass das Wasser keinen Einfluss auf den Alkoholwert hat. Durch die experimentell aufgestellte Umlinearisierungskurve (s. Anhang A.4) wurde der Einfluss von Isopropanol auf den Wasser-Wert (Querempfindlichkeit) berücksichtigt.

Die vom IR-Spektrometer aufgenommenen Messwerte (Vol % von Isopropanol bzw. Wasser) werden nach der angesprochenen Umlinearisierung mit Erfassung der Querempfindlichkeit in momentane Molenbrüche $\tilde{y}_{i,a}(t)$ umgewandelt. Der momentane Beladungszustand ist über die molaren Luftbeladungen der beiden Gemischkomponenten

$$\tilde{Y}_{i,a}(t) = \frac{\tilde{y}_{i,a}(t)}{1 - \tilde{y}_{1,a}(t) - \tilde{y}_{2,a}(t)} \quad (3.24)$$

zugänglich.

Der Zusammenhang zwischen der Abluftmolbeladung und der zeitlichen Abnahme der im Gemisch enthaltenen Molmenge der Komponente i lautet

$$\frac{dN_{l,i}}{dt} = - \dot{N}_g \tilde{Y}_{i,a}, \quad (\tilde{Y}_{i,e} = 0). \quad (3.25)$$

Durch Kopplung von Gln (3.15) und (3.17) lässt sich der Molenstrom der vorgetrockneten Luft aus dem Signal des individuell einstellbaren Mass Flow Controller (MFC) sowie dem dort herrschenden Druck und der Gastemperatur ermitteln zu

$$\dot{N}_g = \frac{p \dot{V}_g}{\tilde{R} T_{g,B}}, \quad (3.26)$$

wobei \dot{V}_g den korrigierten Gasvolumenstrom bezeichnet, für den nach Vereinfachung von Gl. (3.16) gilt

$$\dot{V}_g = \dot{V}_{g,0} \left(\frac{T_{g,B}}{273,15} \right). \quad (3.27)$$

Die verdunsteten Flüssigkeitsmengen der beiden Komponenten werden durch Integration von Gl. (3.25), für die man in diesem Fall zweckmäßigerweise die Trapezregel anwenden kann, berechnet:

$$N_{Ver,i} = \dot{N}_g \int_0^t \tilde{Y}_{i,a}(t) dt \approx \dot{N}_g \sum_{j=0}^{N-1} 0,5 (\tilde{Y}_{i,a}^j + \tilde{Y}_{i,a}^{j+1}) \Delta t_j. \quad (3.28)$$

Durch ihre Aufsummierung für die beiden Komponenten ergibt sich die insgesamt verdunstete Molmenge zu

$$N_{l,Ver} = \sum_{i=1}^2 N_{Ver,i} \quad (3.29)$$

Die aktuelle Stoffmenge im Apparat lässt sich somit als Differenz der anfänglichen und der verdunsteten Flüssigkeitsmenge berechnen:

$$N_l = N_{l,0} - N_{l,Ver} \quad (3.30)$$

Die aktuellen Stoffmengen der einzelnen Komponenten ergeben sich analog der Gl. (3.30) zu

$$N_{l,i} = N_{l,i,0} - N_{Ver,i} \quad (3.31)$$

Hierbei ist $N_{l,i,0}$ die molare Stoffmenge der Komponente i im Gemisch beim Start jedes Versuches. Sie kann aus der abgewogenen Masse dieser Komponente (s. Abschnitt 3.2.2) und ihrer Molmasse ermittelt werden zu

$$N_{l,i,0} = \frac{M_{l,i,0}}{\tilde{M}_i} \quad (3.32)$$

Aus den nach Gl. (3.31) berechneten Molmengen der beiden Stoffe lässt sich schließlich die aktuelle Flüssigkeitszusammensetzung bestimmen gemäß

$$\tilde{x}_{i,B} = \frac{N_{l,i}}{N_{l,1} + N_{l,2}}, \quad (3.33)$$

d.h. in Form eines Molenbruches.

Zur Überprüfung der Zuverlässigkeit der Versuchsauswertung wird eine zusätzliche experimentelle Bestimmung der Zusammensetzung im Kern der Flüssigkeit $\tilde{x}_{1,B}$ durchgeführt. Dies erfolgt indirekt über die Dichte des Gemisches mittels aufgenommener Eichkurve (s. Abschnitt 3.2.1). Am Ende jedes Teilversuches wurde eine Probe aus dem Gemisch gezogen und mit einer Spritze sehr langsam in die Messzelle des verwendeten Dichtemessgerätes DMA 58 gefüllt. Der U-förmige Hohlkörper muss dabei völlig frei von Gasbläschen bleiben, da selbst

die kleinsten Bläschen die Ergebnisse verfälschen. Aus der auf diese Weise gemessenen Dichte des Gemisches wird die aktuelle Flüssigkeitszusammensetzung $\tilde{x}_{1,B}$ bestimmt (s. Anhang A.5, Gl. (A5.6)). Mit dem gleichen Wert wird sie dann beim Anfang des nachfolgenden Einzelversuches gesetzt. Bei der Versuchsauswertung wurde immer der über die Dichte ermittelte mit dem nach Gl. (3.33) berechneten Wert für die Zusammensetzung der flüssigen Phase verglichen. Dabei betrug die relative Abweichung zwischen den beiden Werten im allgemeinen weniger als $\pm 0,7\%$, was auch als Beleg für die Genauigkeit der durchgeführten Versuche gelten kann.

Aus den beiden Parametern N_l und $\tilde{x}_{1,B}$ mit der Kopplungsbedingung nach Gl. (3.12) lassen sich die gemessenen Selektivitätsverläufe aufstellen.

Prinzipiell zeigt die verwendete Messmethode eine hohe Genauigkeit. Ihre Qualitäten liegen in der kontinuierlichen Datenaufnahme der sich ständig ändernden Luftbeladung und der einfachen Umrechnung der Spannungssignale des Gasanalysators in die erforderlichen Verdunstungsraten. Damit ist die Messung der realen Zusammensetzungsverläufe, bei denen neben der reinen Diffusion auch freie Konvektionsströmungen auftreten, zugänglich.

3.3.3 Ermittlung der optimierten flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten

Wie schon im Abschnitt 2.2.1 erläutert, ist der flüssigseitige Stoffübergangskoeffizient in Anwesenheit von Mikrokonvektion zunächst unbekannt. Die Schwierigkeit seiner theoretischen Berechnung liegt in der Ungewissheit über Art und Eindringtiefe der sich in der Flüssigkeit ausbildenden Zusammensetzungsprofile bei einem zusätzlichen konvektiven Stofftransport.

Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Auswertungsverfahren zur Bestimmung von β_l im gestörten Zustand (in Anwesenheit von Grenzflächenkonvektion) passt das theoretisch entwickelte Modell punktuell an die experimentellen Ergebnisse (die Zusammensetzungsverläufe) an. Für ein solches Vorgehen wurde der numerische Gleichungslöser um ein, nach dem Verfahren von Brent („Brent's Method“) [Pre 1] arbeitendes, Optimierungsprogramm erweitert, das eine einparametrische Minimierung der Abweichungen zwischen der Lösung des mathematischen Modells und den Messdaten (Parameterschätzung) erlaubt. Als Optimie-

rungsgröße dient die Fehlerquadratsumme zwischen Messung und Rechnung, bezogen auf das Verhältnis zwischen der jeweiligen und der anfänglichen Flüssigkeitsmenge ($N_l/N_{l,0}$),

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N \left[\left(\frac{N_l}{N_{l,0}} \right)_{Exp,i} - \left(\frac{N_l}{N_{l,0}} \right)_{Rech,i} \right]^2, \quad (3.34)$$

wobei N die Anzahl der Messpunkte ist.

Beim verwendeten Verfahren von *Brent* geschieht die Minimierung der Funktion durch inverse parabolische Interpolation. Dabei kann das langsam konvergierende Verfahren nur dann keine Lösung, d.h. keinen passenden Wert von β_l , finden, wenn die eingesetzten Eingabeparameter (Startwert, obere bzw. untere Grenze) nicht das Ergebnis einschließen. In so einem Fall würde man von kolinearen Werten sprechen. Als Abbruchkriterium (Genauigkeit) der Konvergenz wurde festgelegt:

$$\delta = 2,0 \cdot XMIN \cdot \pm Tol, \quad (3.35)$$

wobei Tol die gewählte Toleranz, die hier 10^{-3} beträgt, und $XMIN$ die Abszisse des besten Minimums der Funktion sind.

Der äquidistante Abstand auf der Abszisse im Zusammensetzungsdiagramm, nach dem die punktuelle Anpassung erfolgt, beträgt 0,01. Auf diese Weise abgeleitete Verläufe von β_l ermöglichen Aussagen über die Entstehung und die Wirkung konvektiver Phänomene an der Phasengrenze.

4 Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Untersuchungen zur Verdunstung eines binären Isopropanol-Wasser-Gemisches aus Schüttungen vorgestellt und diskutiert. Konkret soll die Frage beantwortet werden, ob und wie stark durch gezielte Änderung der Betriebsparameter

- Temperatur der Gasphase,
- Anfangszusammensetzung der Flüssigkeit,
- Schüttungshöhe und
- Partikelgröße

die einsetzende Mikrokonvektion den flüssigseitigen Stofftransport beeinflusst, wobei die Temperatur im Kern der Flüssigkeit und der Gasvolumenstrom zunächst konstant bleiben.

Darüber hinaus sollen Vergleichsrechnungen mit den nach *Post* [*Pos I*] definierten *Ra*- und *Ma*-Zahlen (s. Gln (2.36) und (2.37)) durchgeführt werden, um die Güte der neuen Definition nach Gln (2.34), (2.35) beurteilen zu können.

4.1 Einfluss der Gastemperatur

4.1.1 Ergebnisse der Versuche mit unterschiedlicher Gastemperatur für Konzentrationen oberhalb des azeotropen Punktes ($\tilde{x}_{1,B,0} = 0,7$)

In Abb. 4.1 sind die experimentell ermittelten Zusammensetzungsverläufe jeweils durch Symbole und die zugehörigen Berechnungen als Linien bei konstanter Temperatur im Kern der flüssigen Phase ($T_{l,B} = 303,15 \text{ K}$) und verschiedenen Gastemperaturen dargestellt. Die Anfangszusammensetzung der Flüssigkeit zu Beginn aller Versuche ist $\tilde{x}_{1,B,0} = 0,7$. Alle anderen Prozessbedingungen sind gleichgestellt ($h = 15 \text{ mm}$, $\bar{d}_p = 3,5 \text{ mm}$). Die numerisch berechneten Grenzfälle für $\beta_l \rightarrow 0$ (flüssigseitig kontrolliert) und $\beta_l \rightarrow \infty$ (gasseitig kontrolliert) sind ebenso im Diagramm aufgetragen. Für $N_l / N_{l,0}$ ist gemäß Gl. (2.11) ein logarithmischer Maßstab gewählt. Die Verdunstung würde flüssigseitig limitiert und damit unselektiv verlaufen, wenn sich das System im ungestörten Zustand befände, d.h. wenn der Stofftransport al-

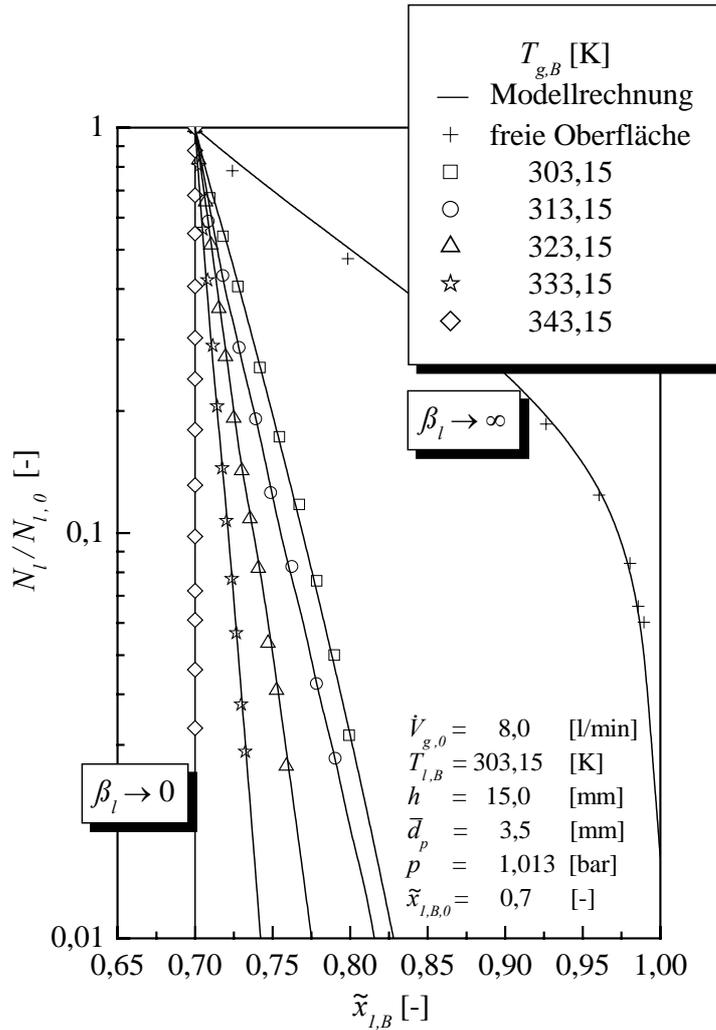


Abbildung 4.1: Zusammensetzungsverlaufskurven bei unterschiedlichen Gastemperaturen im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich; Experimentelle Ergebnisse, Grenzfälle und Modellrechnungen (durchgezogene Linien) durch punktuelle Anpassung von β_l .

lein mittels Diffusion durch die Schüttung stattfinden würde. Dieses Verdunstungsverhalten wird praktisch für die höchste Gastemperatur bestätigt ($T_{g,B} = 343,15 \text{ K}$). Der aufgeprägte Transportwiderstand in der flüssigen Phase hindert die bevorzugte Verdunstung der entsprechenden Komponente – oberhalb des azeotropen Punktes: Wasser – und lässt die Verdunstung unselektiv verlaufen. Mit Verringerung der Temperatur im Kern der Gasphase nähern sich hingegen die Selektivitätsverläufe allmählich dem gaseitig kontrollierten Zustand an, und bei dem kleinsten Wert von $T_{g,B}$ ($303,15 \text{ K}$) wird die höchste Selektivität beobachtet.

Die während der Verdunstung auftretenden Ströme sind mit dem Aufbau von Konzentrations- und Temperaturprofilen innerhalb der flüssigen Grenzschicht gekoppelt. Oberhalb des azeotropen Punktes liegen wegen der bevorzugten Verdunstung von Wasser und der damit verbundenen Anreicherung der Grenzfläche mit Isopropanol konzentrationsstabile Bedingungen vor, d.h. $\sigma_l(\tilde{x}_{1,Ph}) < \sigma_l(\tilde{x}_{1,B})$, $\rho_l(\tilde{x}_{1,Ph}) < \rho_l(\tilde{x}_{1,B})$. Aufgrund der Zunahme der Dichte bzw. der Grenzflächenspannung mit abnehmender Temperatur kann jedoch das treibende Potential für Mikrokonvektionen bei hinreichender Verringerung der Phasengrenztemperatur unterhalb der Temperatur im Kern der Flüssigkeit erklärt werden. Die temperaturinstabilen Bedingungen führen zu thermisch initiierten konvektiven Strömungen, da $\sigma_l(T_{Ph}) > \sigma_l(T_{l,B})$, $\rho_l(T_{Ph}) > \rho_l(T_{l,B})$ ist.

Bei kleinen Gastemperaturen (303,15 K) wäre in der Flüssigkeit ein relativ großer Temperaturgradient vorhanden, der neben der Diffusion zusätzliche Transportmechanismen verursacht und damit die Selektivität der Verdunstung erhöht. Mit Steigerung der Temperatur in der Gasphase verringert sich die Temperaturdifferenz innerhalb der flüssigen Grenzschicht stetig bis schließlich die Grenzflächenkonvektionen unterbleiben (343,15 K) und Diffusion der einzige Mechanismus ist, mit dem der Stofftransport stattfindet. D.h., mit stetiger Erhöhung der Gastemperatur wird allmählich der ungestörte Zustand des Systems erreicht.

Da durch gezielte Verringerung von $T_{g,B}$ die Selektivität des Verdunstungsprozesses ansteigt, könnte man bei noch niedrigeren Gastemperaturen auch an den anderen Grenzfall – maximale Selektivität – näherkommen. Im Rahmen dieser Arbeit war es aber apparativ nicht möglich, die Temperaturen unter 303,15 K zu senken, so dass dieser Grenzfall experimentell nicht weiter angenähert werden konnte. *Post [Pos I]* ist es gelungen, eine Gastemperatur ($T_{g,B} = 293,15$ K) unter der Temperatur im Kern der Flüssigkeit ($T_{l,B} = 298,15$ K) zu erreichen und die Tendenz steigender Selektivität noch deutlicher vorzuweisen.

In Abb. 4.2 sind die Triebkräfte (Ra - und Ma -Zahlen), die für die experimentell gewonnenen Selektivitäten aus Abb. 4.1 verantwortlich sind, in Abhängigkeit von der Zusammensetzung bei unterschiedlichen Temperaturen im Kern der Gasphase separat dargestellt. Die Ra - und Ma -Zahlen sind nach Gl. (2.34) bzw. (2.35) im ungestörten Zustand ohne Annahme adiabater Bedingungen (s. Abschnitt 2.2.2, S. 32) berechnet.

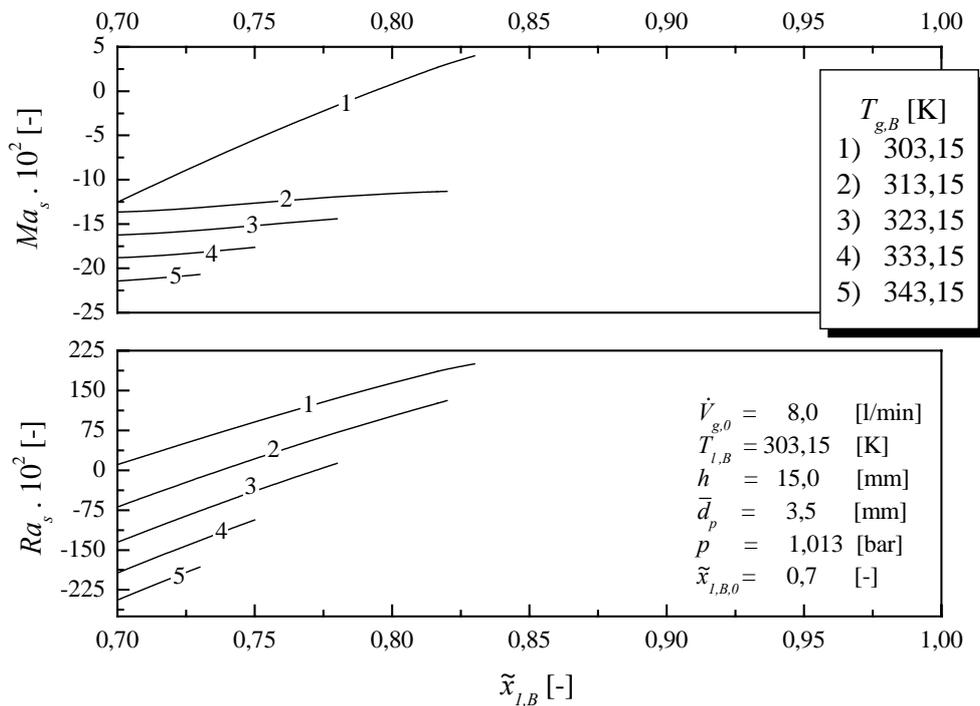


Abbildung 4.2: Separate Darstellung der Rayleigh- und Marangoni-Zahlen für den Abb. 4.1 entsprechenden ungestörten Zustand, berechnet ohne Annahme adiabater Bedingungen.

Man erkennt eine Abnahme der aufgezeigten Kennzahlen mit zunehmender Gastemperatur. Wie erwartet, zeigt die bezüglich Dichte und Grenzflächenspannung stabile Konfiguration bei $T_{g,B} = 343,15 \text{ K}$ negative Ra - und Ma -Werte im gesamten Konzentrationsbereich oberhalb des azeotropen Punktes ($0,7 \leq \tilde{x}_{1,B} \leq 1$). Beim Vergleich der Abb. 4.1 und 4.2 ist allerdings eine Diskrepanz zwischen den gemessenen Selektivitäten und den dafür verantwortlichen treibenden Potentialen zu verzeichnen. Die Zusammensetzungsverläufe bei einer Gastemperatur von $313,15 \text{ K}$, $323,15 \text{ K}$ bzw. $333,15 \text{ K}$ hätten unselektiv sein müssen, da nach Abb. 4.2 keine Triebkräfte zu einer Verbesserung des Stofftransports vorhanden sind (negative Ma - und Ra -Werte). Ein möglicher Grund für diese Unstimmigkeit könnte das Auftreten von lokalen Temperaturunterschieden an der Phasengrenze sein, die doch zu Konvektionseffekten und daher zu höheren Selektivitäten führen. Derartige lokale Inhomogenitäten sind aber mit unserem eindimensionalen analytischen Modell (s. Kapitel 2) nicht zu erfassen. In diesem Zusammenhang erscheint die von Post getroffene Annahme, im ungestörten Zustand adiabate Bedingungen zugrunde zu legen, sinnvoll, denn unter diesen Bedingungen können die maximal möglichen Temperaturgradienten innerhalb der flüssigseitigen Grenzschicht erreicht wer-

den (s. Abschnitt 2.2.2, Abb. 2.6). Sie dienen der Kompensation der vermuteten Sekundäreffekte, die nicht explizit im Modell formuliert sind.

Die im adiabaten Fall berechneten Ra - und Ma -Werte sind in Abb. 4.3 dargestellt. Sie liefern eine eindeutige Erklärung der gemessenen Selektivitäten aus Abb. 4.1.

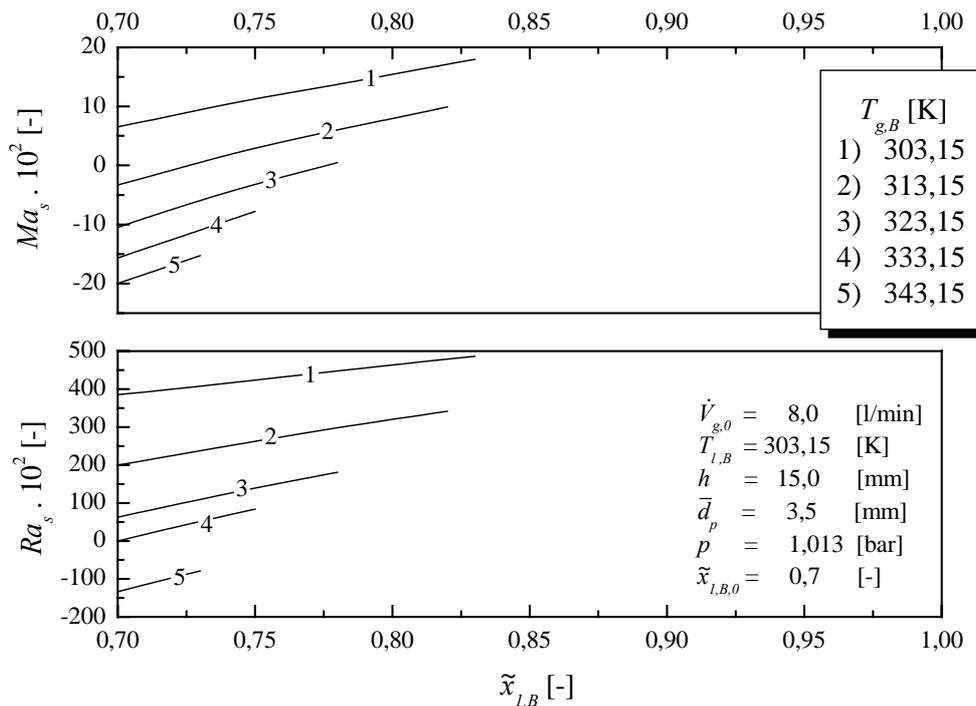


Abbildung 4.3: Darstellung der Rayleigh- und Marangoni-Zahlen für Abb. 4.1, berechnet unter Annahme adiabater Bedingungen.

Der Abb. 4.3 kann entnommen werden, dass mit Absenkung der Gastemperatur die Werte der die Triebkraft charakterisierenden Kennzahlen ansteigen. Bei der höchsten Gastemperatur von 343,15 K bleiben sowohl die Ra - als auch die Ma -Werte negativ und bestätigen somit die stabile Konfiguration bezüglich Dichte und Oberflächenspannung. Für alle übrigen Gastemperaturen weisen mindestens die Ra -Zahlen positive Werte auf, während die antreibende Wirkung der Ma -Zahl ($Ma > 0$) erst bei der niedrigsten Gastemperatur ($T_{g,B} = 303,15$ K) einsetzt. Daraus lässt sich die Schlussfolgerung ziehen, dass der Einfluss der Dichtekonvektion auf die Verbesserung des Stofftransportes im Bereich oberhalb des azeotropen Punktes (konzentrationsstabile und temperaturinstabile Bedingungen) dominiert.

Wie bereits in Abschnitt 2.3 erläutert, kann die Verbesserung des Stofftransportes infolge zusätzlicher konvektiver Transportmechanismen durch den sogenannten *Enhancement*-Faktor (Gl. (2.38)) erfasst werden. Für die Quantifizierung des Einflusses der Gastemperatur auf den flüssigseitigen Stofftransport werden die angepassten *Eh*-Faktoren gegen die Summe der Triebkräfte, $(Ma_s + Ra_s)$, für unterschiedliche Temperaturen im Kern der Gasphase aufgetragen (s. Abb. 4.4 für die Daten aus Abb. 4.1). Bei der Summenbildung werden nur positive Werte der Kennzahlen berücksichtigt, negative Werte von *Rayleigh* bzw. *Marangoni* werden gleich Null gesetzt.

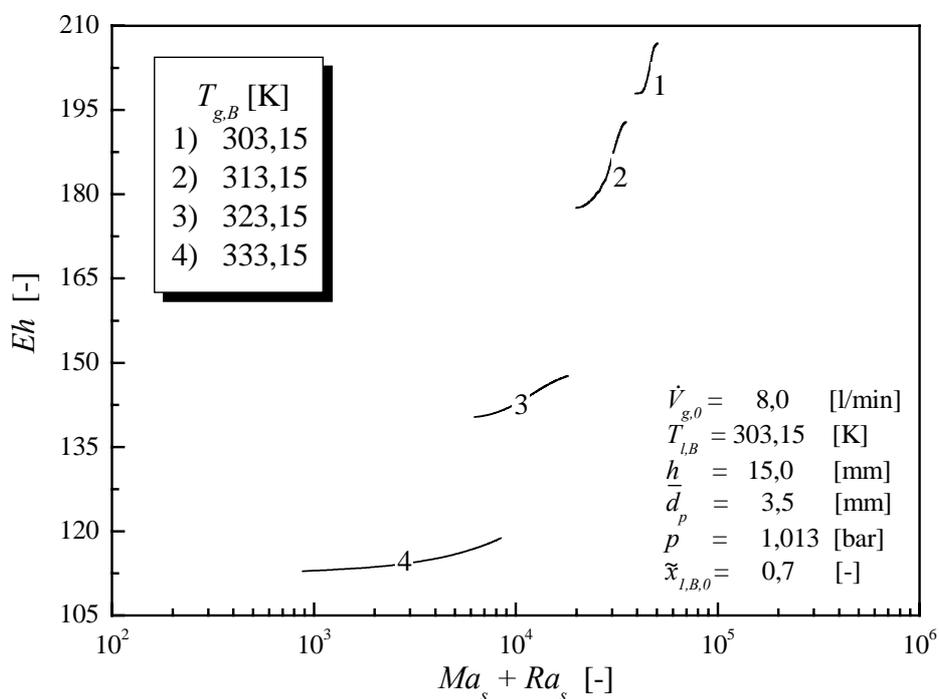


Abbildung 4.4: *Enhancement*-Faktoren über die Summe der Marangoni- und Rayleigh-Zahlen für die Messdaten aus Abb. 4.1 bei verschiedenen Gastemperaturen.

Aus Abb. 4.4 ist erkennbar, dass es im ungestörten Zustand und unter konzentrationsstabilen und temperaturinstabilen Bedingungen zu großen treibenden Potentialen kommt, die ihrerseits zu einer deutlichen Verbesserung des Stofftransportes führen ($Eh \gg 1$). Man beobachtet einen kontinuierlichen Anstieg der *Enhancement*-Faktoren mit zunehmenden Antriebskräften. In diesem Sinne wird der größte Dichte- bzw. Oberflächenspannungsgradient bei der niedrigsten eingestellten Gastemperatur beobachtet (Kurve 1 in Abb. 4.4). Mit ihm ist der höchste *Enhancement*-Faktor verbunden ($Eh = 207$ bei $Ma_s + Ra_s = 5,0 \cdot 10^4$). Bei einer Gastemperatur

von 343,15 K wurde keine Verbesserung des Stofftransports erfasst. Diesem Fall entspricht der Wert $Eh = 1$.

Die infolge von Grenzflächeninstabilitäten ausgelösten Konvektionen bewirken eine erhöhte Durchmischung in der flüssigseitigen Grenzschicht und führen dadurch zur Änderung der anfänglichen Temperatur- und Konzentrationsprofile. In den Abb. 4.5 und 4.6, die die Temperatur bzw. die Zusammensetzung an der Phasengrenze im gestörten Zustand als Funktionen der Flüssigkeitszusammensetzung zeigen, ist diese Wirkung gut zu erkennen. Mit zunehmender Intensität der Konvektion ist eine Reduzierung der Temperatur- und Konzentrationsdifferenz zwischen dem Kern der Flüssigkeit und der Phasengrenze zu beobachten. Damit kann der konvektionsinduzierende Temperaturgradient fast vollständig abgebaut werden.

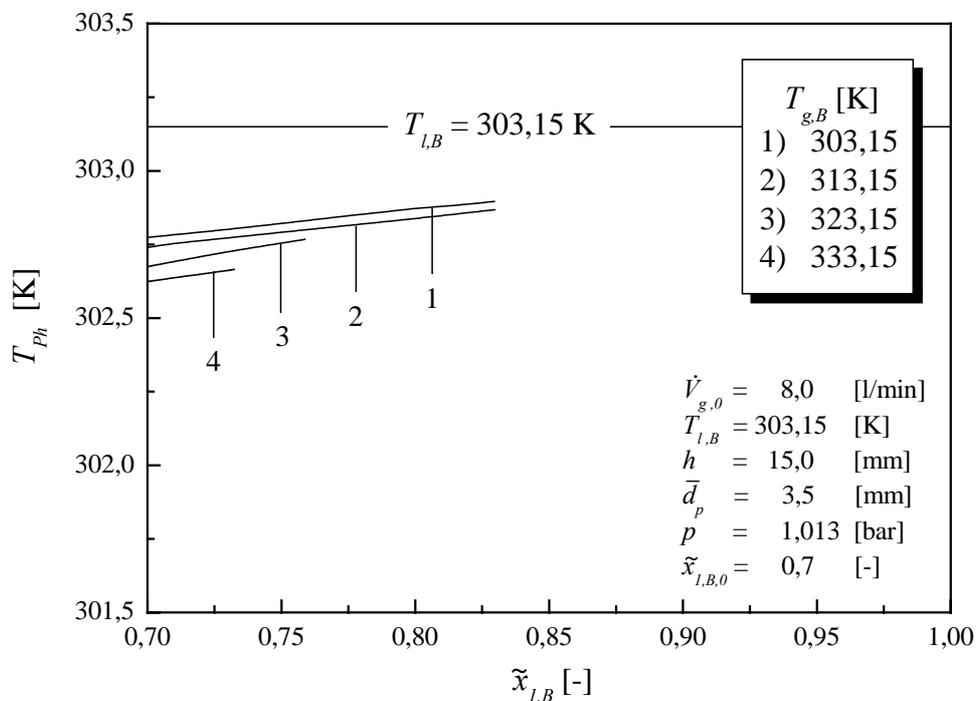


Abbildung 4.5: Temperatur an der Phasengrenze im gestörten Zustand über die Zusammensetzung im Kern der Flüssigkeit für den Bereich oberhalb des azeotropen Punktes, den Daten von Abb. 4.1 entsprechend.

Ein wesentlicher Ansatz des eigenen Untersuchungskonzeptes besteht, wie dargelegt, darin, das reale Verhalten des Systems als Kausalabfolge eines ungestörten und eines gestörten Zustandes zu approximieren, wobei beide quasistationär erfasst werden. Eine genauere Berücksichtigung der zwischen den Zuständen bestehenden dynamischen Kopplung ist mit der hier eingesetzten Methodik nicht möglich.

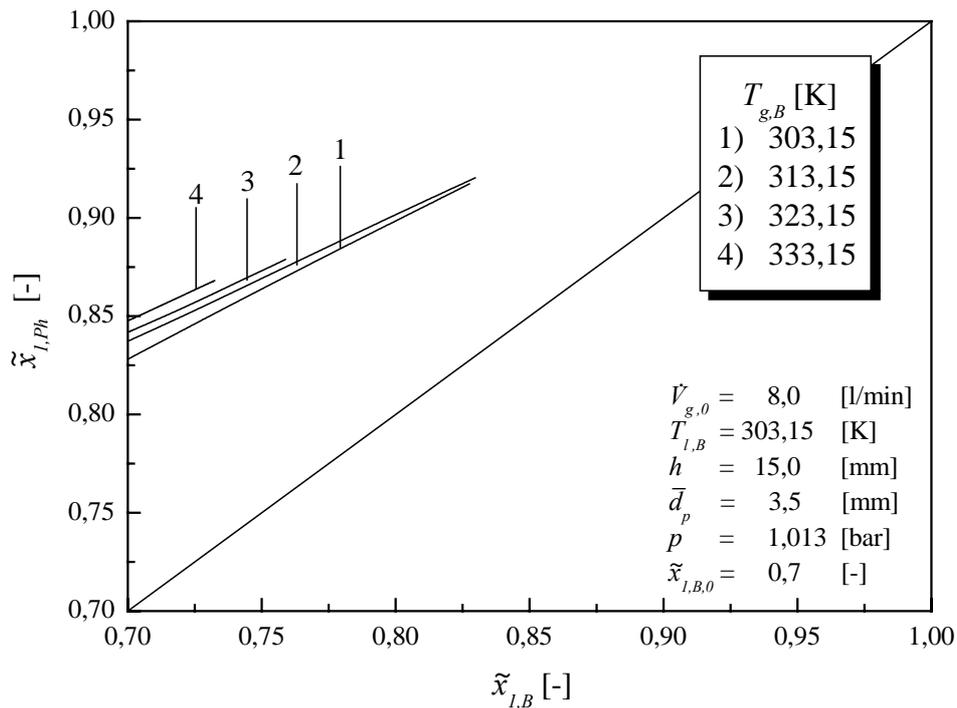


Abbildung 4.6: Zusammensetzung an der Phasengrenze im gestörten Zustand über die Zusammensetzung im Kern der Flüssigkeit für den Bereich oberhalb des azeotropen Punktes, den Daten von Abb. 4.1 entsprechend.

4.1.2 Ergebnisse der Versuche mit unterschiedlicher Gastemperatur für Konzentrationen unterhalb des azeotropen Punktes ($\tilde{x}_{l,B,0} = 0,3$)

Abbildung 4.7 zeigt die gemessenen und die berechneten Konzentrationsverläufe bei konstanter Temperatur im Kern der flüssigen Phase ($T_{l,B} = 303,15$ K) und verschiedenen Gastemperaturen im konzentrationsinstabilen Bereich unterhalb der azeotropen Zusammensetzung. Die Anfangszusammensetzung der Flüssigkeit zu Beginn aller Versuche ist $\tilde{x}_{l,B,0} = 0,3$. Alle weiteren Prozessbedingungen bleiben konstant ($h = 15$ mm, $\bar{d}_p = 3,5$ mm). Im Diagramm sind ebenfalls die numerisch berechneten Grenzfälle eines flüssigseitig kontrollierten ($\beta_l \rightarrow 0$) und eines gasseitig kontrollierten Stoffübergangs ($\beta_l \rightarrow \infty$) eingetragen. Wie im Abschnitt 4.1.1 erklärt, würde der flüssigseitige Stofftransport ohne zusätzliche Transportmechanismen auch bei diesen Experimenten allein mittels Diffusion durch die Schüttung stattfinden, und damit würde man eine unselektive Verdunstung bekommen müssen. Dieser Trend

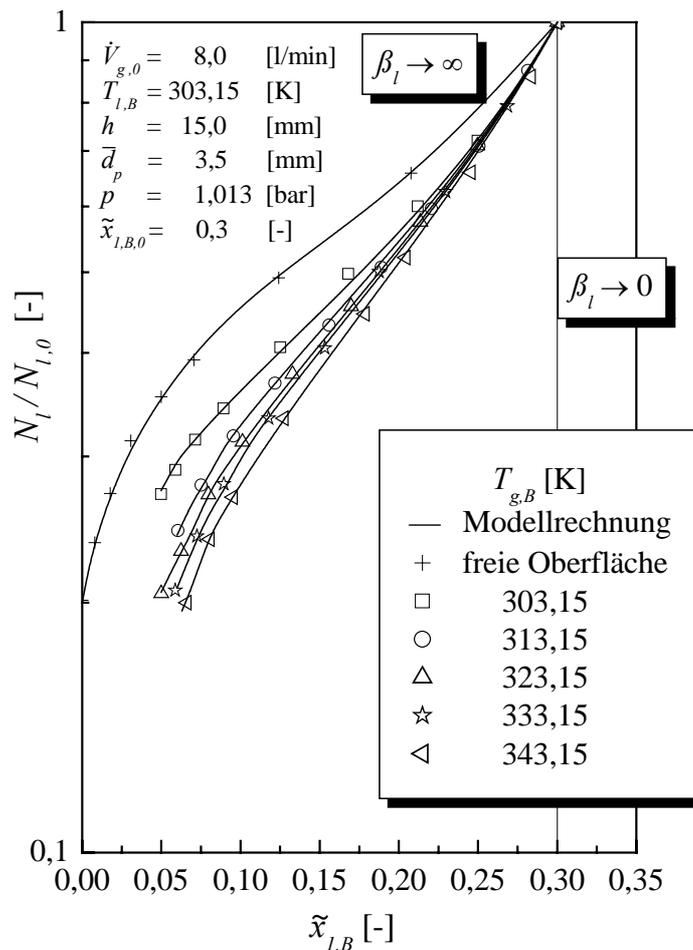


Abbildung 4.7: Zusammensetzungsverlaufskurven bei unterschiedlichen Gastemperaturen im instabilen Konzentrationsbereich; Experimentelle Ergebnisse, Grenzfälle und Modellrechnungen (durchgezogene Linien) durch punktuelle Anpassung von β_l .

wurde jedoch bei keinem der unterhalb des azeotropen Punktes durchgeführten Versuche beobachtet. Man muss auch dieses Verhalten der Anwesenheit konvektiver Strömungen in Phasengrenzfläche zuschreiben. Im betrachteten Konzentrationsbereich existieren neben den temperatur- auch konzentrationsinstabile Bedingungen, die Grenzflächenkonvektionen auslösen können, da die bevorzugte Verdunstung von Isopropanol und die Anreicherung des Wassers im Gemisch zu energetisch instabilen Zuständen innerhalb der flüssigen Grenzschicht, d.h. zu $\sigma_l(\tilde{x}_{l,Ph}) > \sigma_l(\tilde{x}_{l,B})$, $\rho_l(\tilde{x}_{l,Ph}) > \rho_l(\tilde{x}_{l,B})$, führen. Der Einfluss der Temperatur als treibendes Potential für Mikrokonvektionen bleibt bei hinreichender Verringerung der Phasengrenztemperatur unterhalb der Temperatur im Kern der Flüssigkeit auch für diesen Konzentrationsbereich weiterhin bestehen. Obwohl es aber zu relativ großen Temperaturgradienten in Phasengrenzfläche kommt, hat dies nur einen geringen Einfluss auf den Zusammensetzungsverlauf, d.h. die

Konzentrationsinstabilität ist hier bei der Formierung der Mikrokonvektionen dominierend. Die Kurven in Abb. 4.7, die nicht so merklich auseinander fächern und relativ nahe dem gasseitig kontrollierten Fall liegen, bestätigen diese Schlussfolgerung. Trotzdem kann man annehmen, dass mit hinreichender Verringerung der Gastemperatur der Grenzfall der maximalen Selektivität und mit hinreichender Erhöhung derselben die unselektive Verdunstung erreicht werden könnten. Apparativ war es aber nicht möglich, die Versuche in einem so breiten Temperaturbereich durchzuführen, daher waren die genannten Grenzfälle experimentell unrealisierbar.

Die separate Darstellung der Ra - und Ma -Werte für die im Bezug auf Konzentration und Temperatur instabile Konfiguration findet in Abb. 4.8 statt. Die Verläufe bei 323,15 K und 343,15 K sind in dieser Abbildung nicht eingetragen, da Überlappungen mit anderen Kurven existieren. Im Gegensatz zu den konzentrationsstabilen Bedingungen oberhalb des azeotropen Punktes (vgl. Abb. 4.2) wurden hier stets positive Ma - und Ra -Zahlen erreicht, obwohl keine adiabate Bedingungen im Modell eingesetzt waren. Dies ist mit der kombinierten Wirkung

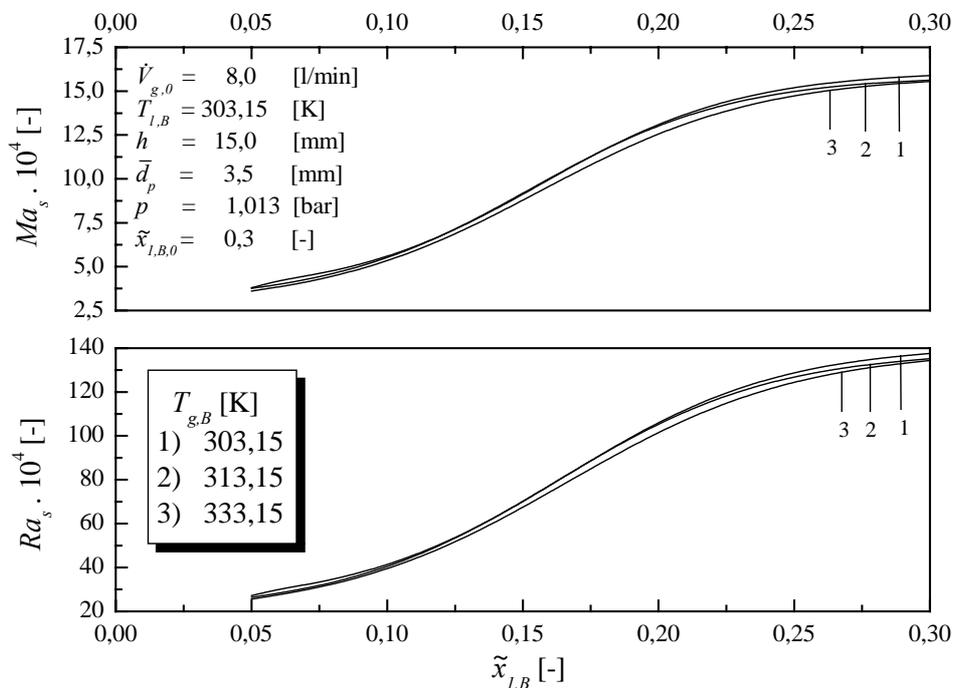


Abbildung 4.8: Separate Darstellung der Rayleigh- und Marangoni-Zahlen für den Abb. 4.7 entsprechenden ungestörten Zustand, berechnet ohne Annahme adiabater Bedingungen.

von temperatur- und konzentrationsinstabilen Konfigurationen zu erklären, die hinreichend große Triebkräfte für einsetzende Phasengrenzkonvektionen erzeugen. Die berechneten *Marangoni*- und *Rayleigh*-Zahlen für den adiabaten Fall sind in Abb. 4.9 dargestellt. Beim Vergleich der Daten aus den Abbn 4.8 und 4.9 ist eine nur sehr geringe Erhöhung der Werte im adiabaten Fall festzustellen. Dies scheint die Dominanz der Konzentrationsinstabilitäten beim Auslösen von Grenzflächenphänomenen im Bereich unterhalb der azeotropen Gemischzusammensetzung zu bestätigen. Es ist weiterhin zu erkennen, dass auch hier der Dichtegradient (*Bénard*-Effekt) einen stärkeren Einfluss auf die Verbesserung des Stofftransports hat.

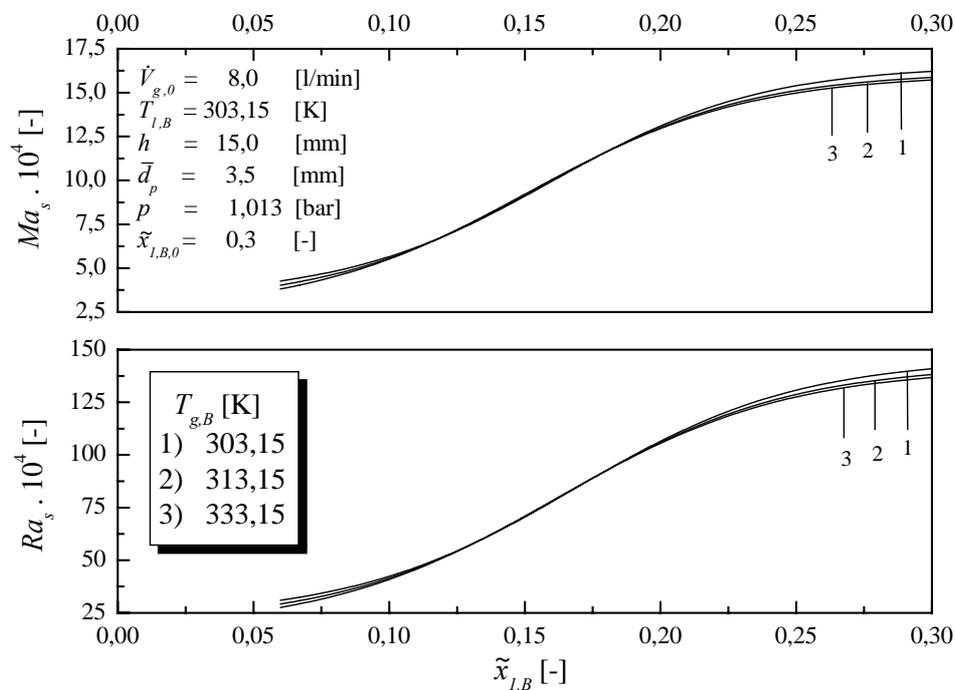


Abbildung 4.9: Darstellung der Rayleigh- und Marangoni-Zahlen für Abb. 4.7, berechnet unter Annahme adiabater Bedingungen.

Die entsprechenden *Eh*-Faktoren über die Summe der Triebkräfte sind im konzentrationsinstabilen Bereich in Abb. 4.10 für verschiedene Temperaturen im Kern der Gasphase dargestellt. Eine wesentliche Verbesserung des Stofftransportes ist auch unterhalb des azeotropen Punktes zu beobachten. In Abb. 4.10 ist ein kontinuierlicher und starker Anstieg der *Enhancement*-Faktoren mit Zunahme der Antriebskräfte erkennbar. Im Gegensatz zum vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich (vgl. Abb. 4.4) sind die erreichten *Eh*-Werte bei größeren Summen der *Ra*- und *Ma*-Zahlen wesentlich höher. Die niedrigste Gastemperatur von 303,15

K zieht den größten *Enhancement*-Faktor ($Eh = 2790$ bei $Ma_s + Ra_s = 1,0 \cdot 10^6$) mit sich. Bei einer Zunahme von $T_{g,B}$ und damit verbundenem Abbau des Temperaturprofils in der flüssigseitigen Grenzschicht nimmt die Erhöhung des Stofftransportes schrittweise ab. Mit der konvektionsverursachten Durchmischung der Flüssigkeit in Phasengrenznahe kann auch hier die Verringerung der Stofftransportwiderstände erklärt werden.

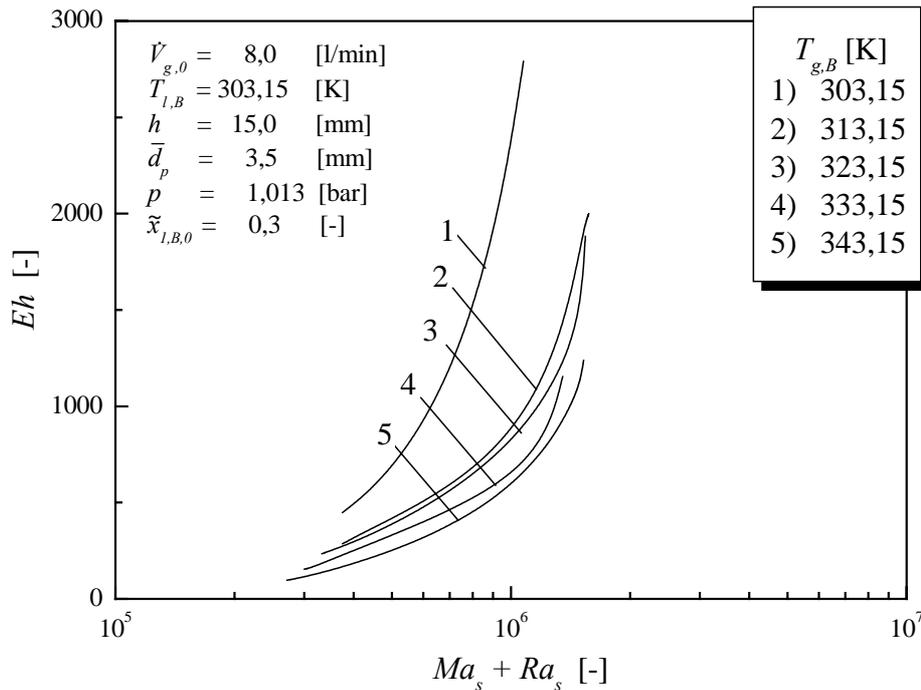


Abbildung 4.10: *Enhancement*-Faktoren über die Summe der Marangoni- und Rayleigh-Zahlen für die Messdaten aus Abb. 4.7 bei verschiedenen Gastemperaturen.

Die nächsten zwei Diagramme – Abbn 4.11 und 4.12 – stellen die Temperatur bzw. die Zusammensetzung an der Phasengrenze im gestörten Zustand über die Flüssigkeitszusammensetzung dar, die den angepassten Daten aus Abb. 4.7 entsprechen. Der konvektionsinduzierende Temperaturgradient wird auch hier durch die einsetzenden konvektiven Strömungen nahezu vollständig abgebaut, während eine ziemlich große Konzentrationsdifferenz bleibt. Für die verbesserte Stoffübertragung unterhalb des azeotropen Punktes kann also der Konzentrationsgradient als vorwiegende Ursache angenommen werden.

Es ist abschließend zusammenzufassen, dass eine Erhöhung der Dichte- bzw. der Grenzflächenspannungsgradienten in der flüssigseitigen Grenzschicht die einsetzenden Mikrokonvektionen intensiviert, was folglich zum verbesserten Stofftransport führt.

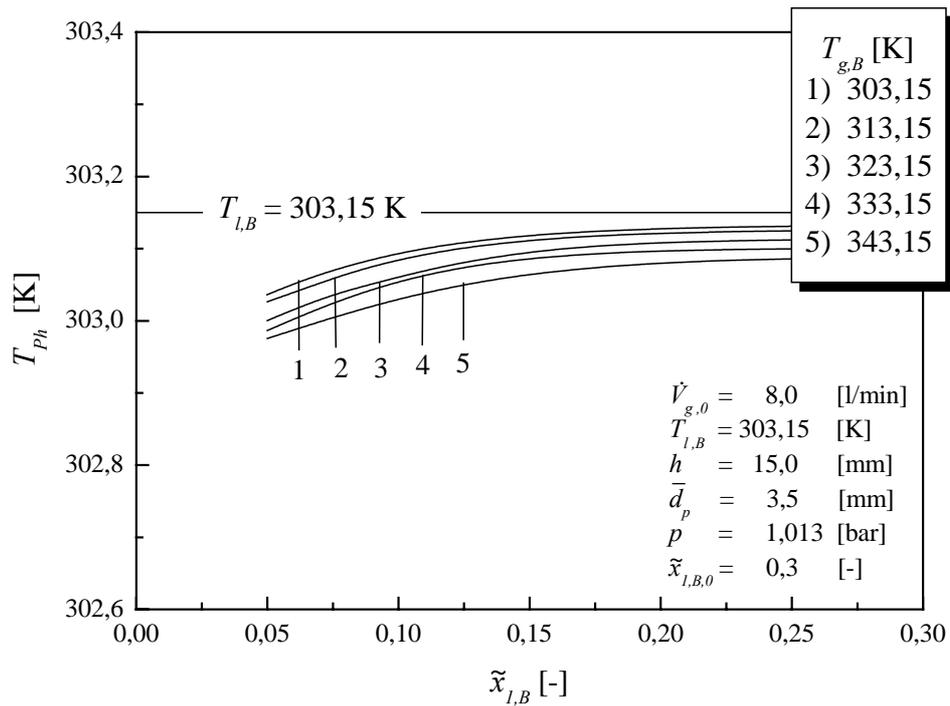


Abbildung 4.11: Phasengrenztemperatur im gestörten Zustand über die Flüssigkeitszusammensetzung im instabilen Konzentrationsbereich, den Daten von Abb. 4.7 entsprechend.

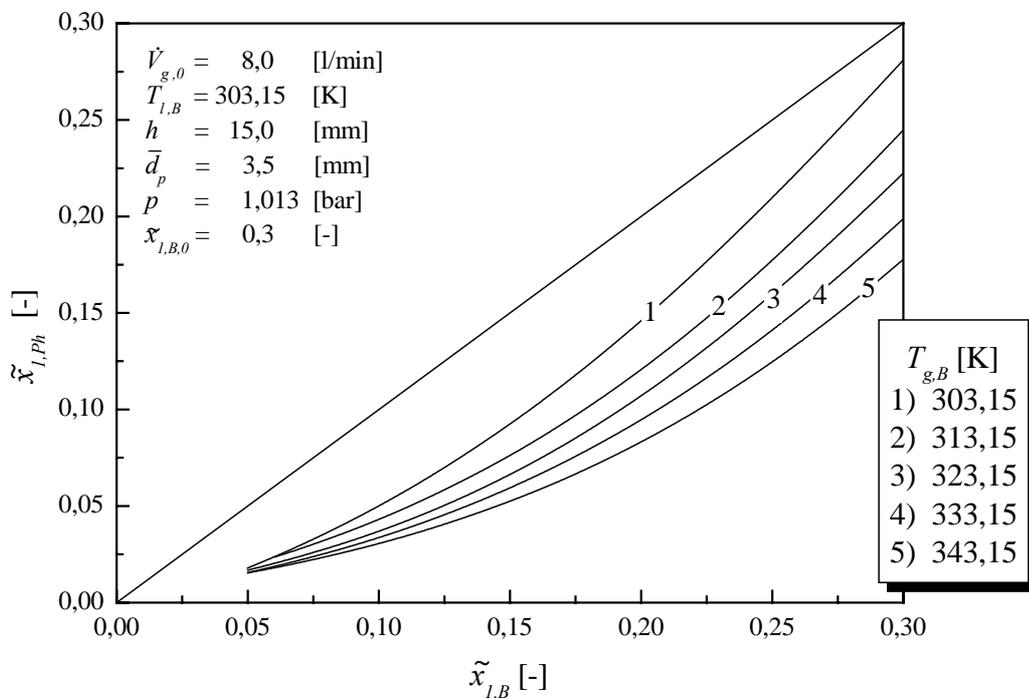


Abbildung 4.12: Phasengrenzzusammensetzung im gestörten Zustand über die Flüssigkeitszusammensetzung im instabilen Konzentrationsbereich, den Daten von Abb. 4.7 entsprechend.

Sind die Konzentrations- und die Temperaturgradienten synergetisch beim Einfluss auf den Stofftransport, wie es unterhalb des azeotropen Punktes geschieht, sind die erreichten *Enhancement*-Faktoren und die dazugehörigen *Ra*- bzw. *Ma*-Zahlen größer, als wenn nur thermisch initiierte Mikrokonvektion wirkt. Im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich oberhalb der azeotropen Zusammensetzung kann ein hinreichend großer Temperaturgradient als einziger Grund für die Entstehung der Dichte- bzw. der Grenzflächenspannungsgradienten angesehen werden. Wie es sich ergeben hat, können auch lokale Temperaturunterschiede während der Verdunstung auftreten, die mit unserem eindimensionalen Modell nicht zu erfassen sind. In solchen Fällen liefert das Modell trotzdem gute Lösungen unter Annahme adiabater Bedingungen. Letztere ist für Berechnungen im instabilen Konzentrationsbereich nicht wichtig. Aufgrund dieser Schlussfolgerung werden die Triebkräfte in den nachfolgenden Rechnungen stets unter Annahme adiabater Bedingungen bestimmt.

Mit der Zeit werden wegen der vermehrten Durchmischung in der Flüssigkeit die örtlichen Inhomogenitäten ausgeglichen. Die anfänglich vorhandenen Temperatur- und Konzentrationsprofile werden beim Anwachsen der mikroskopischen Bewegungserscheinungen nivelliert. Folglich wird mit dem Fortschreiten des Wärme- und Stofftransportes der Aufbau neuer lokaler Instabilitäten möglich, welche wieder den Beginn und die Entwicklung von Grenzflächenkonvektionen ermöglichen.

4.2 Einfluss der Schüttungsparameter h und \bar{d}_p

4.2.1 Ergebnisse der Versuche bei Variation der Schüttungshöhe

In Abbn 4.13 und 4.14 sind die gemessenen (Symbole) und die berechneten (durchgezogene Linien) Selektivitätsverläufe im vermeintlich stabilen bzw. im instabilen Konzentrationsbereich bei konstanten und gleichen Temperaturen im Kern der beiden Phasen ($T_{l,B} = T_{g,B} = 303,15 \text{ K}$) und verschiedenen Schüttungshöhen dargestellt. Die übrigen Prozessparameter bleiben unverändert.

Während im konzentrationsinstabilen Bereich, unterhalb des azeotropen Punktes ($\tilde{x}_{1,B,0} = 0,3$), die Schüttungshöhe einen geringen Einfluss auf den Prozess ausübt, nimmt die Selektivität im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich, oberhalb des Azeotrops ($\tilde{x}_{1,B,0} = 0,7$), mit zu-

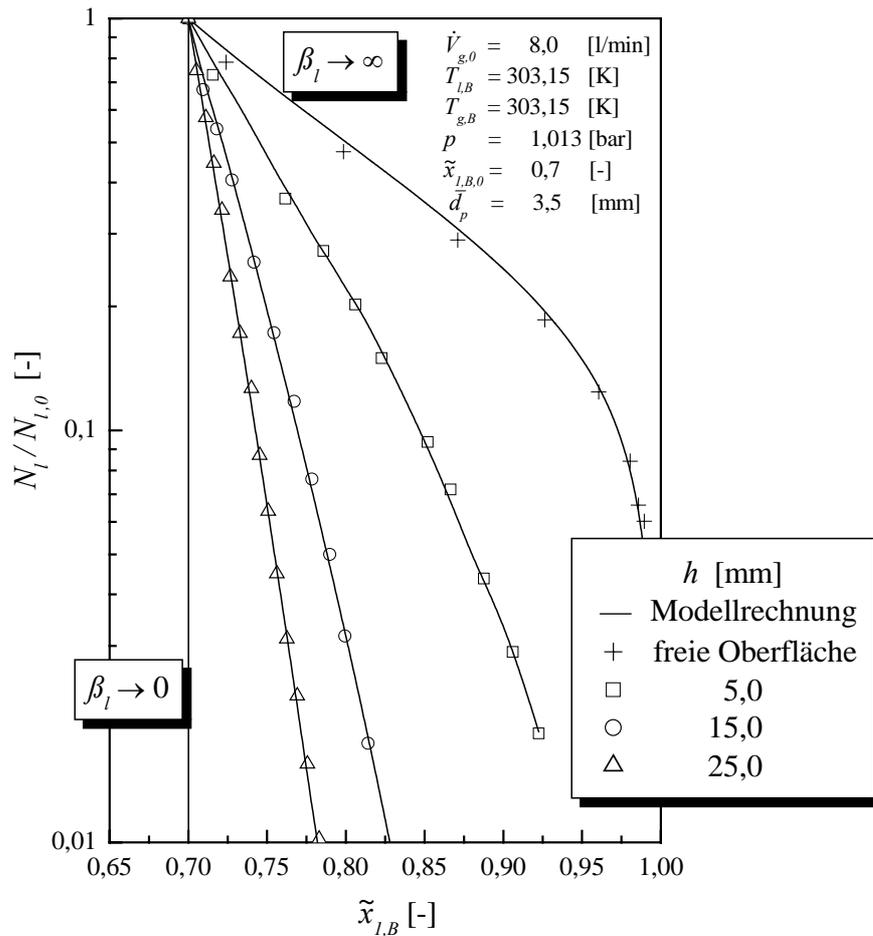


Abbildung 4.13: Zusammensetzungsverlaufskurven bei unterschiedlichen Schüttungshöhen im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich; Experimentelle Ergebnisse, Grenzfälle und Modellrechnungen (durchgezogene Linien) durch punktuelle Anpassung von β_l .

nehmender Schüttungshöhe stark ab. Die kleineren Selektivitäten sind auf den wachsenden flüssigseitigen Stofftransportwiderstand zurückzuführen. Außerdem erkennt man, dass die im instabilen Bereich gemessenen Selektivitäten wesentlich größer im Vergleich mit den gemessenen Selektivitäten im Bereich oberhalb der azeotropen Zusammensetzung bei gleichen sonstigen Bedingungen sind. Dieser Unterschied ist durch die im Abschnitt 4.1.2 diskutierte Existenz von temperatur- und konzentrationsinstabilen Bedingungen (Summe von Effekten) für mögliche Konvektionen unterhalb des Azeotropes zu erklären.

Ohne zusätzliche konvektive Transportmechanismen wäre bei allen Experimenten ober- und unterhalb der azeotropen Zusammensetzung ein unselektiver Verdunstungsverlauf zu erwarten. Dieser Trend hat sich aber bei keiner der untersuchten Schüttungshöhen bestätigt. Hiermit

ist der Nachweis der Anwesenheit von Phasengrenzkonvektionen bei allen diesen Experimenten erbracht.

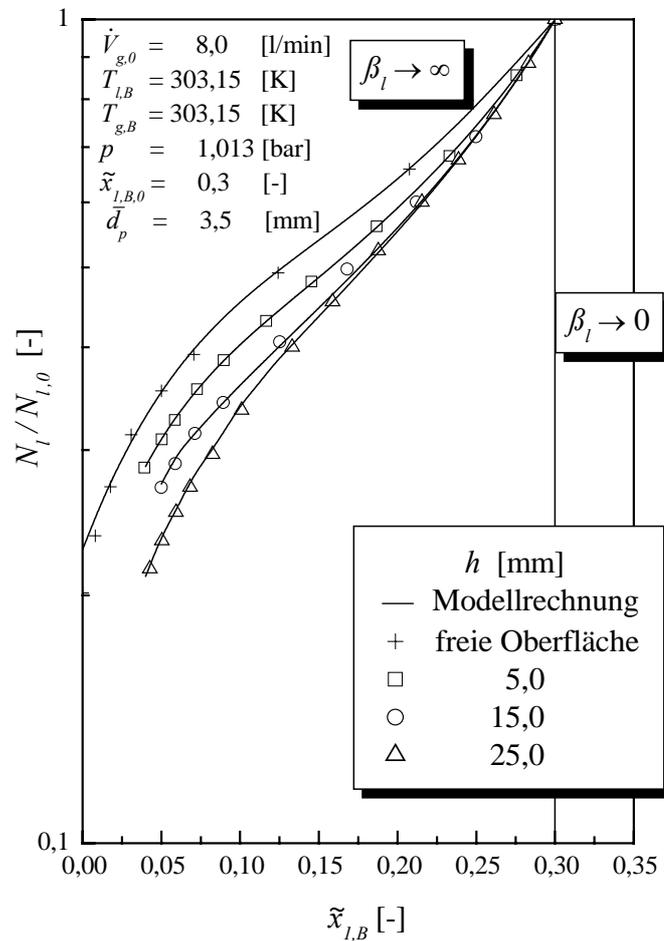


Abbildung 4.14: Zusammensetzungsverlaufskurven bei unterschiedlichen Schüttungshöhen im instabilen Konzentrationsbereich; Experimentelle Ergebnisse, Grenzfälle und Modellrechnungen (durchgezogene Linien) durch punktuelle Anpassung von β_1 .

Den Einfluss der variierten Schüttungshöhe auf die Verbesserung des Stofftransportes für die beiden Konzentrationsbereiche ober- bzw. unterhalb des dynamischen Azeotrops zeigen Abb. 4.15 und 4.16. Auf der Abszisse ist jeweils die Summe der unter Annahme adiabater Bedingungen berechneten Triebkräfte aufgetragen, und auf der Ordinate der *Enhancement*-Faktor.

Wie bereits im Abschnitt 4.1.1 besprochen, kann die Existenz eines Temperaturgradienten innerhalb der flüssigseitigen Grenzschicht die Ursache für die erzeugten Instabilitäten von Dichte (Ra_s) und Oberflächenspannung (Ma_s) im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich

sein. Im instabilen Konzentrationsbereich hingegen, können neben Temperatur- auch Konzentrationsunterschiede die Formierung der Mikrokonvektionen verursachen.

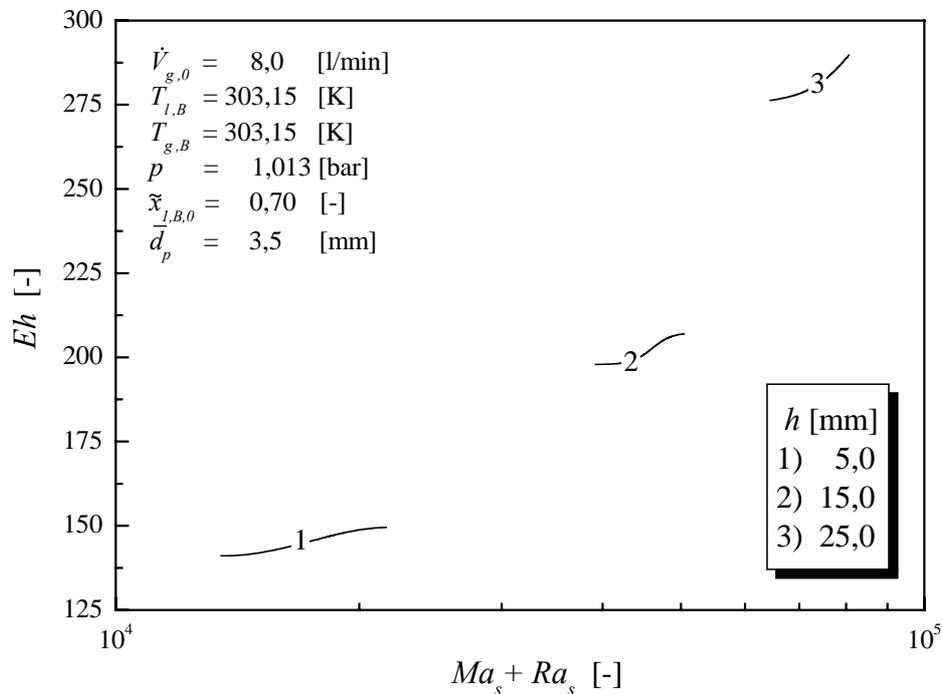


Abbildung 4.15: *Enhancement-Faktoren über die Summe der unter Annahme adiabater Bedingungen berechneten Marangoni- und Rayleigh-Zahlen für die Messdaten aus Abb. 4.13 bei verschiedenen Schüttungshöhen.*

In Abbn 4.15 und 4.16 ist zu erkennen, dass bei allen Schüttungshöhen Dichte- und Oberflächenspannungsinstabilitäten infolge von Temperatur- und/oder Konzentrationsgradienten während des Stoff- und Wärmetransports in den betrachteten Konzentrationsbereichen entstehen. Sie haben einen verbesserten Stofftransport zur Folge, der sich in entsprechend große *Enhancement*-Werte widerspiegelt. Wie bereits im Abschnitt 4.1.2 festgestellt, kommt es auch hier für Anfangskonzentrationen unterhalb des azeotropen Punktes bei größeren Summen der Triebkräfte zu wesentlich höheren *Eh*-Faktoren im Vergleich zum vermeintlich stabilen Bereich.

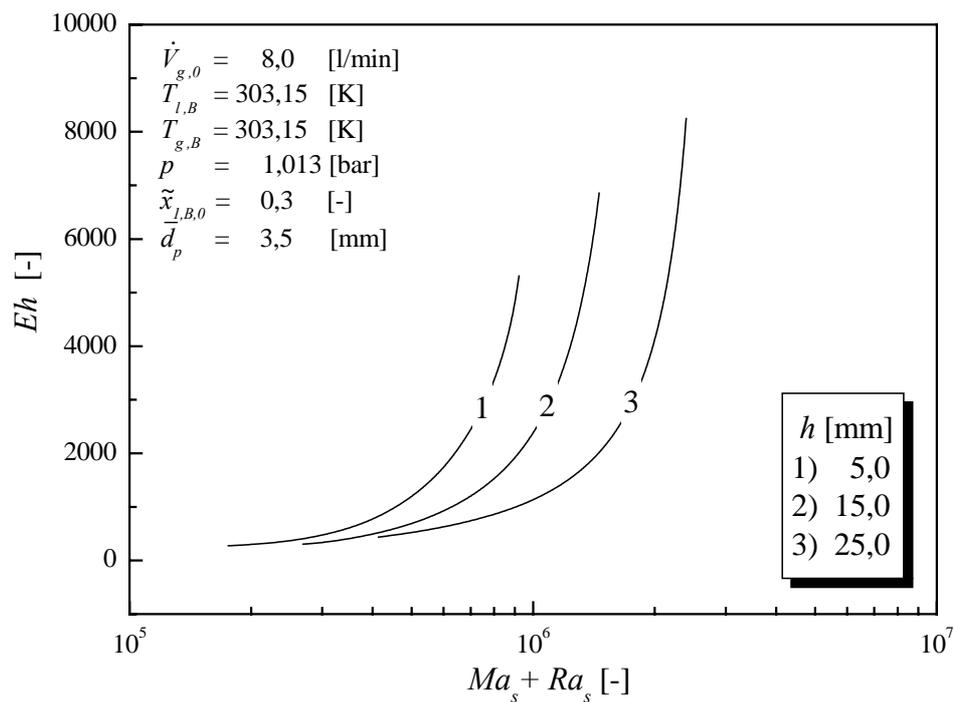


Abbildung 4.16: Enhancement-Faktoren über die Summe der unter Annahme adiabater Bedingungen berechneten Marangoni- und Rayleigh-Zahlen für die Messdaten aus Abb. 4.14 bei verschiedenen Schüttungshöhen.

Zum besseren Verständnis des Einflusses der Schüttungshöhe auf den Verdunstungsverlauf im gestörten bzw. ungestörten Zustand ist in Abb. 4.17 der angepasste flüssigseitige Stoffübergangskoeffizient als Funktion des minimal möglichen flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten für die drei verschiedenen Schüttungshöhen und $\tilde{x}_{1,B,0} = 0,7$ aufgetragen. Dabei ist eine deutliche Abnahme beider Stoffübergangskoeffizienten mit zunehmender Schüttungshöhe zu beobachten. Obwohl jedoch beide Koeffizienten stark abnehmen, vergrößert sich ihr Verhältnis bemerkenswert (vgl. Abb. 4.15). Dies deutet auf einen unterproportionalen Einfluss zunehmender Schüttungshöhe auf die Intensität der Mikrokonvektionen, die von vorherrschenden Dichte- und Oberflächenspannungsgradienten aufgrund der Temperaturinstabilität ausgelöst werden, hin. Wenn also die vorherrschenden treibenden Potenziale hinreichend groß sind, um einen Schwellenwert für denkbare dissipative Strukturen zu überschreiten, kann die Wirkung auf den Stofftransport stets markant sein.

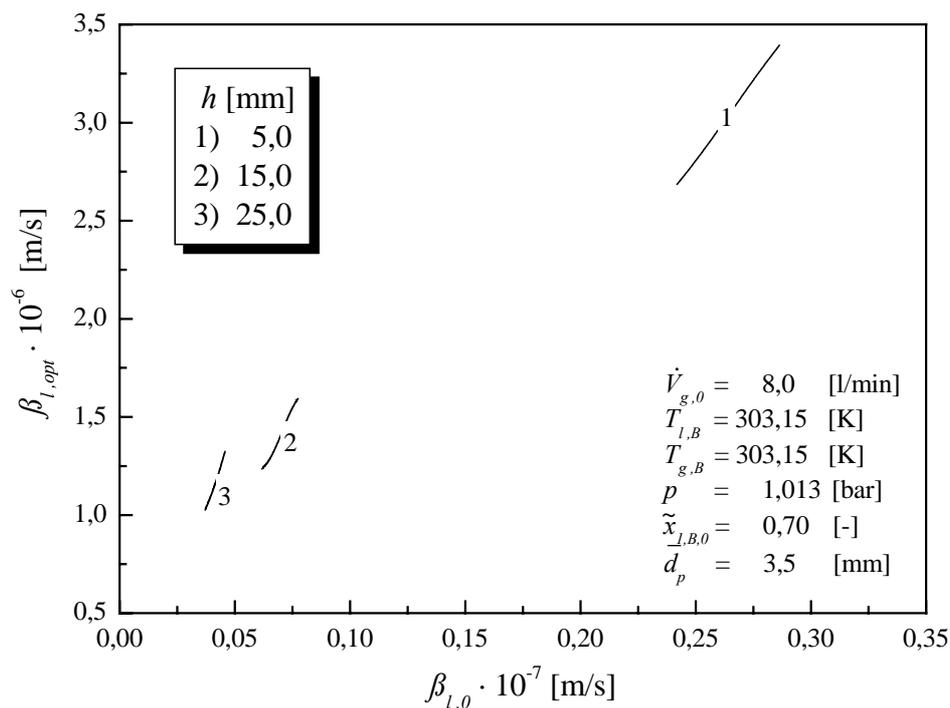


Abbildung 4.17: Der angepasste flüssigseitige Stoffübergangskoeffizient als Funktion des minimal möglichen flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten für verschiedene Schüttungshöhen. Die Verläufe entsprechen der Daten aus Abb. 4.15.

Eine separate Darstellung der *Rayleigh*- und *Marangoni*-Werte, berechnet unter adiabaten Bedingungen, für die angepassten Daten aus Abb. 4.15 bzw. 4.16 wird in Abbn 4.18 und 4.19 gezeigt. Für Anfangskonzentrationen sowohl ober- als auch unterhalb des dynamischen Azeotrops kommt es zu stets positiven *Ra*- und *Ma*-Zahlen, wobei die *Bénard*-Instabilitäten eine stärkere Wirkung auf einsetzende Phasengrenzkonvektionen vorweisen. Nur im instabilen Konzentrationsbereich und für eine Schüttungshöhe von 5,0 mm (Linie 1 in Abb. 4.19) scheinen Grenzflächenspannungsinstabilitäten den Einfluss, den die ausgelösten Mikrokonvektionen auf die Selektivität der Verdunstung ausüben, zu bestimmen. Mit zunehmender Schüttungshöhe ist eine deutliche Verringerung der *Ma*-Werte zu beobachten, während die *Ra*-Werte ansteigen (vgl. Gln (2.34) und (2.35)). Die Ergebnisse in Abbn 4.18 und 4.19 decken sich mit der ursprünglich von *Schwarzbach* [Sch 6] dargelegten und später von *Post* [Pos 1] bestätigten Aussage, dass die *Marangoni*-Konvektion in dünnen und die *Bénard*-Konvektion in dickeren porösen Medien (Platten) überwiegt.

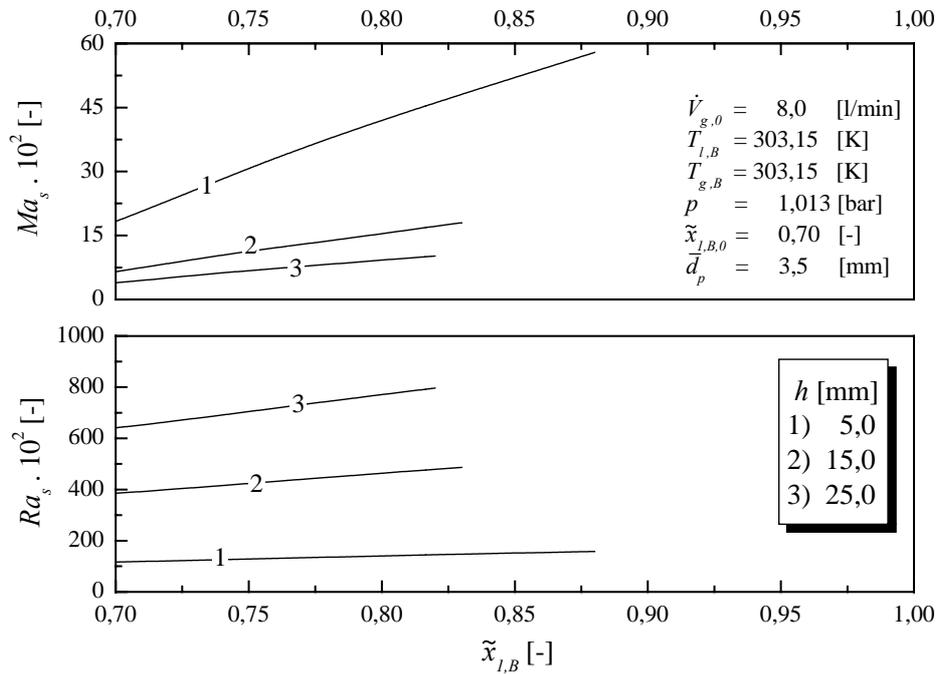


Abbildung 4.18: Separate Darstellung der Rayleigh- und Marangoni-Zahl für die Daten aus Abb. 4.15 als Funktion der Zusammensetzung.

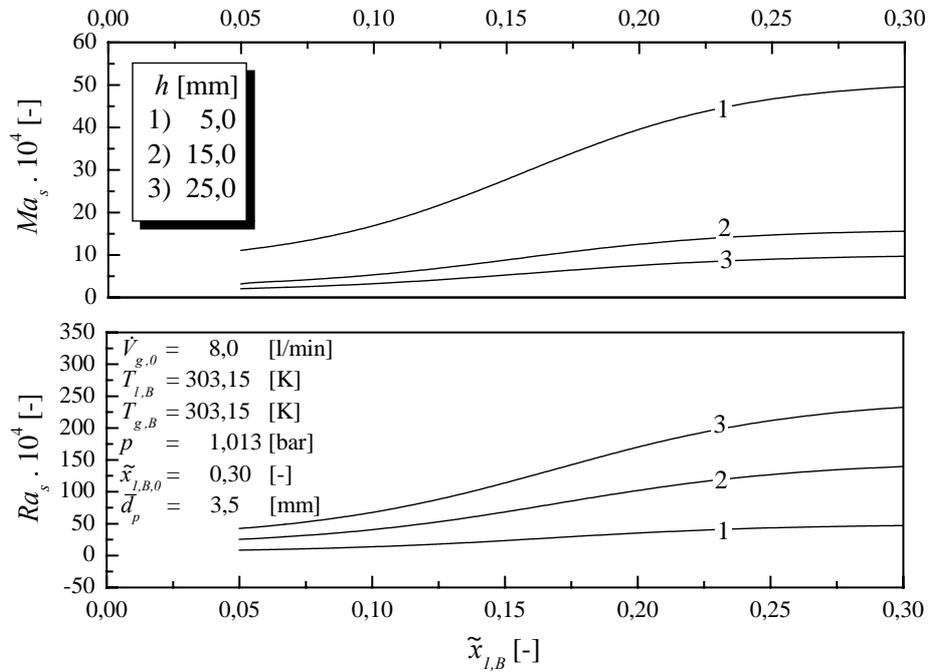


Abbildung 4.19: Separate Darstellung der Rayleigh- und Marangoni-Zahl für die Daten aus Abb. 4.16 als Funktion der Zusammensetzung.

4.2.2 Ergebnisse der Versuche bei Variation des Partikeldurchmessers

Den Einfluss der Partikelgröße auf den Verdunstungsverlauf und ferner auf den Stofftransport bei einer mittleren konstanten Schüttungshöhe von 15,0 mm in den beiden Konzentrationsbereichen ober- bzw. unterhalb des azeotropen Punktes zeigen Abbn 4.20 und 4.21.

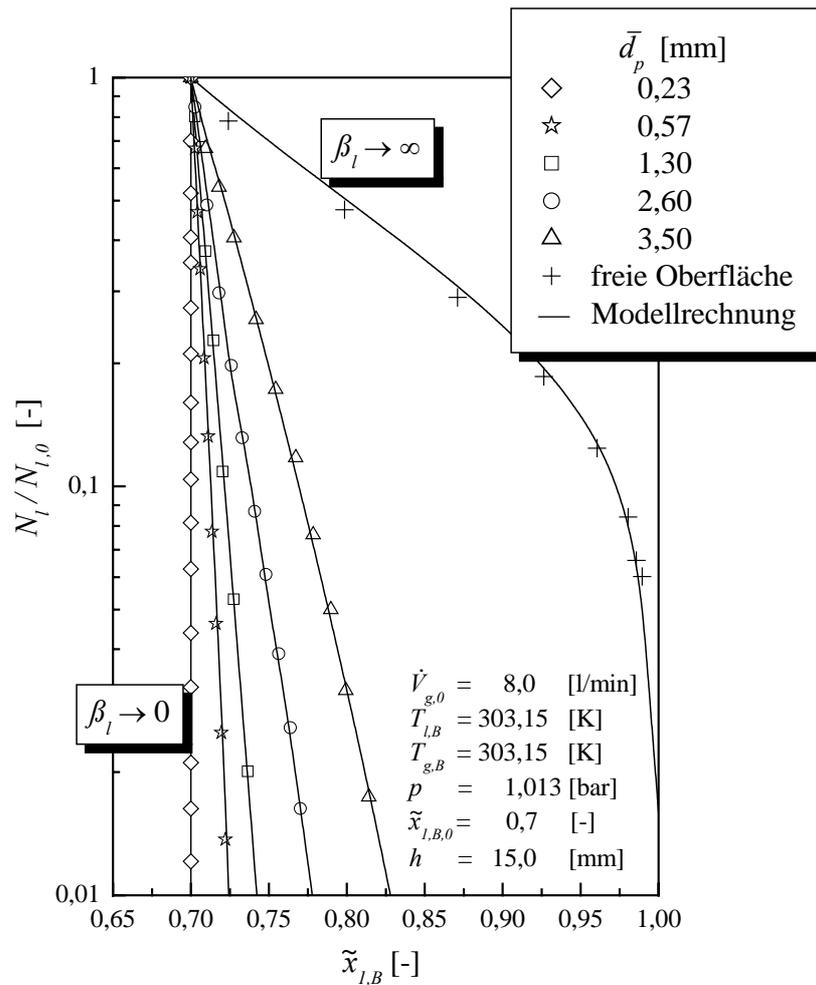


Abbildung 4.20: Zusammensetzungsverlaufskurven bei unterschiedlichen Partikeldurchmessern im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich; Experimentelle Ergebnisse, Grenzfälle und Modellrechnungen (durchgezogene Linien) durch punktuelle Anpassung von β_l .

In Abwesenheit von zusätzlichen Transportmechanismen ist auch hier ein unselektiver Verlauf der Kurven zu erwarten, der sich aber nur für den kleinsten verwendeten Partikeldurchmesser ($\bar{d}_p = 0,23$ mm) im vermeintlich stabilen Bereich bestätigt hat. Dies ist offenbar auf den Einfluss des stark ausgeprägten flüssigseitigen Stofftransportwiderstandes zurückzuführen.

ren, der die bevorzugte Verdunstung von Wasser hindert und damit einen unselektiven Verdunstungsprozess erzielt. Die anderen Verläufe, die sich vom erwarteten Trend unterscheiden, können mit dem Auftreten von thermisch- und/oder konzentrationsinitiierten Grenzflächenkonvektionen begründet werden, die zum verbesserten Stofftransport führen. Es ist weiterhin eine Tendenz zur Abnahme der Selektivität mit abnehmender Permeabilität der Schüttung (s. Gl. (3.4)) in beiden Konzentrationsbereichen zu beobachten. Dies ist wiederum durch den anwachsenden Widerstand in der flüssigen Phase bedingt, der die einsetzenden konvektiven Strömungen unterdrückt.

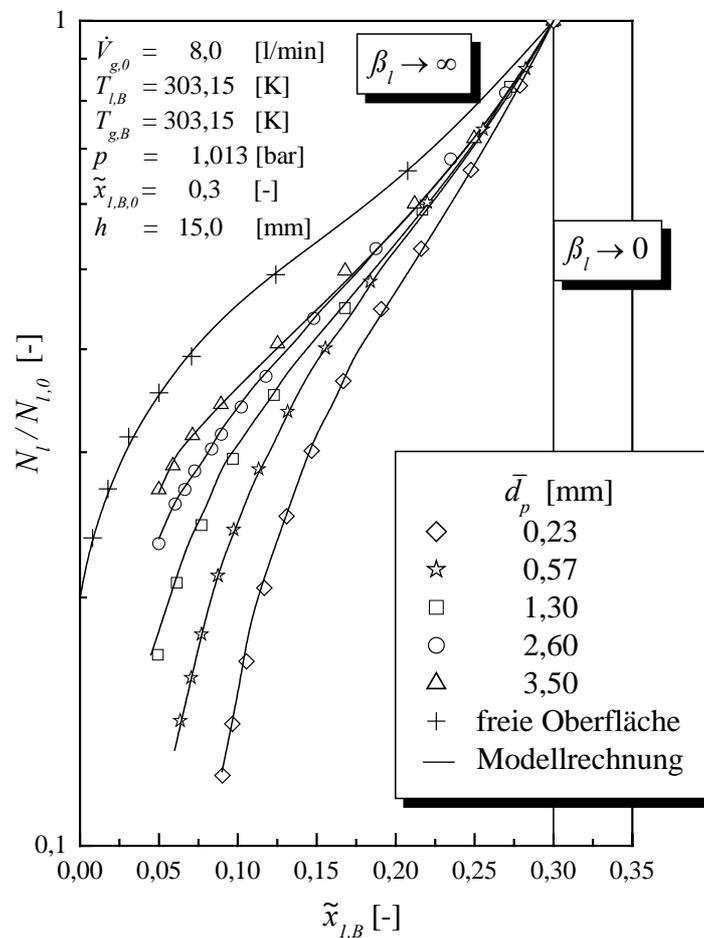


Abbildung 4.21: Zusammensetzungsverlaufskurven bei unterschiedlichen Partikeldurchmessern im instabilen Konzentrationsbereich; Experimentelle Ergebnisse, Grenzfälle und Modellrechnungen (durchgezogene Linien) durch punktuelle Anpassung von β_i .

Die angepassten *Enhancement*-Faktoren über die Summe der Triebkräfte für unterschiedliche Partikelgrößen im vermeintlich stabilen und im instabilen Konzentrationsbereich sind in Abb. 4.22 bzw. 4.23 aufgetragen.

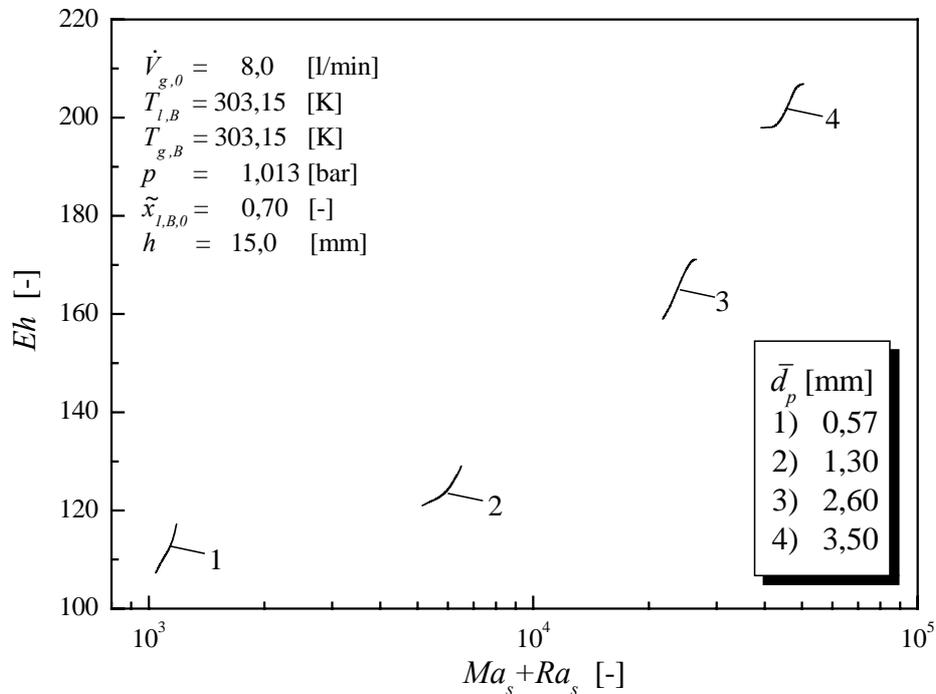


Abbildung 4.22: *Enhancement*-Faktoren über die Summe aus Marangoni- und Rayleigh-Zahl für die Daten aus Abb. 4.20 bei verschiedenen Partikeldurchmessern.

Man erkennt, dass eine Erhöhung der Durchlässigkeit der Schüttung, d.h. größer werdende Partikeldurchmesser, eine Zunahme des Stofftransports für beide Anfangskonzentrationen bewirkt. Dies kann mit dem sich abschwächenden Einfluss des flüssigseitigen Widerstandes auf die auftretenden konvektiven Bewegungen erklärt werden. Mit anderen Worten, kann durch eine Erhöhung der Permeabilität der Schüttung die Mikrokonvektion intensiviert und damit der Stofftransport beschleunigt werden. Da bei einem Partikeldurchmesser von 0,23 mm im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich keine Selektivität gemessen wurde (vgl. Abb. 4.20), beträgt der *Eh*-Faktor in Abb. 4.22 für diese Partikelgröße 1. Die Kombination zweier gleichzeitig wirkender Instabilitäten, nämlich durch Temperatur und Konzentration, im Bereich unterhalb des azeotropen Punktes hat eine größere Intensität der Mikrostrukturen und daher höhere *Enhancement*-Werte zur Folge als die Einzelwirkung eines Temperaturgradienten im vermeintlich stabilen Bereich.

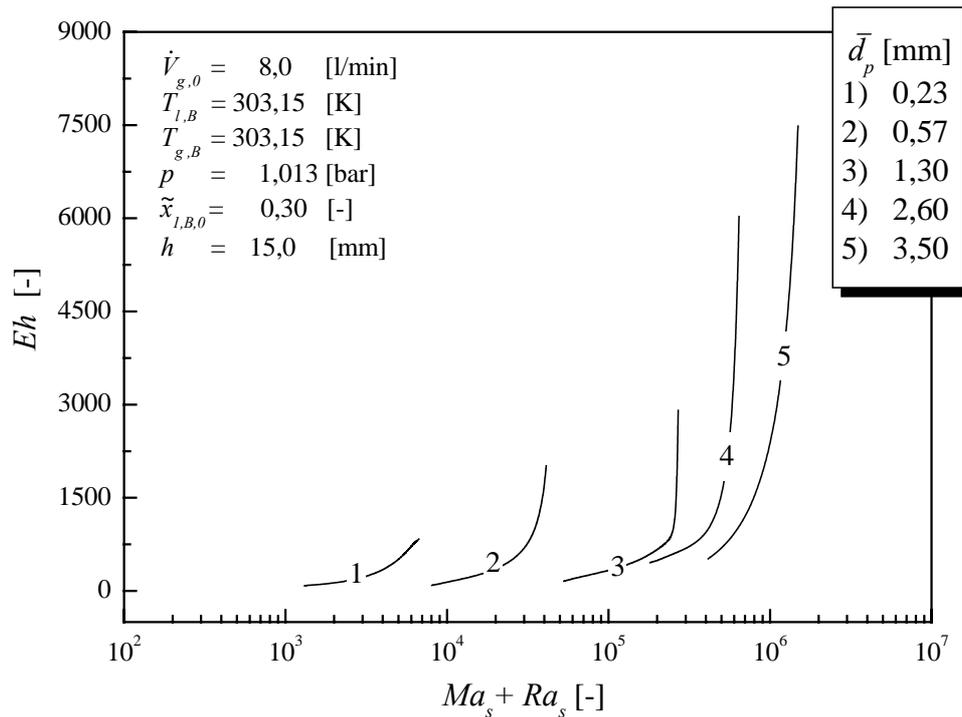


Abbildung 4.23: Enhancement-Faktoren über die Summe aus Marangoni- und Rayleigh-Zahl für die Daten aus Abb. 4.21 bei verschiedenen Partikeldurchmessern.

Zum Vergleich des Einflusses der einzelnen Mechanismen (*Marangoni-* bzw. *Bénard-*Konvektion) auf die Verbesserung des Stofftransportes bei Variation der Partikelgröße sind die unter adiabaten Bedingungen berechneten *Ma*- und *Ra*-Werte für die Daten aus Abb. 4.22 bzw. 4.23 separat in den Abbn 4.24 und 4.25 dargestellt.

In Abb. 4.24 ist zu erkennen (Linie 1), dass bei der kleinsten Partikelgröße ($\bar{d}_p = 0,23$ mm) die infolge der Temperaturinstabilität vorherrschenden Dichte- und Oberflächenspannungsgradienten ($Ra_s = 1,62 \cdot 10^2$, $Ma_s = 2,68 \cdot 10^0$, $Ma_s + Ra_s = 1,65 \cdot 10^2$) nicht ausreichen, um Phasengrenzkonvektionen auszulösen, daher verläuft die Verdunstung unselektiv (vgl. Abb. 4.20). Für alle anderen Partikeldurchmesser sind die existierenden Triebkräfte hinreichend groß, um konvektive Effekte zu initiieren und damit einen verbesserten Stofftransport zu erzielen. Es ist weiterhin anzumerken, dass für beide Anfangskonzentrationen mit Zunahme von \bar{d}_p sowohl die *Ra*- als auch die *Ma*-Werte ansteigen, wobei die *Rayleigh*-Zahlen die Summe der Triebkräfte bestimmen.

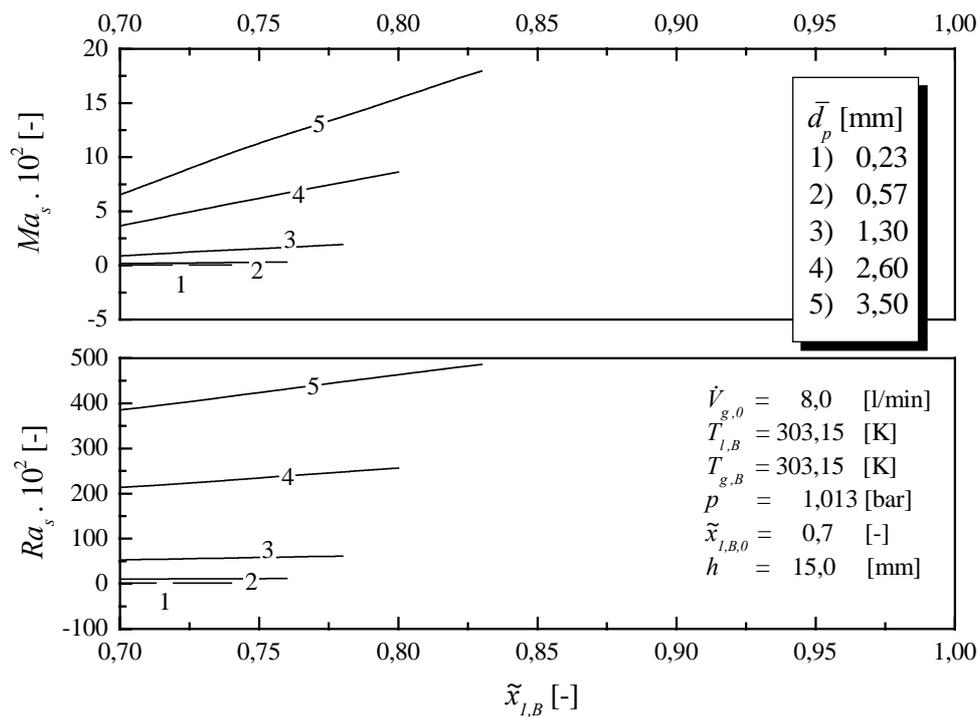


Abbildung 4.24: Separate Darstellung der adiabat berechneten Rayleigh- und Marangoni-Zahl für die Daten aus Abb. 4.22.

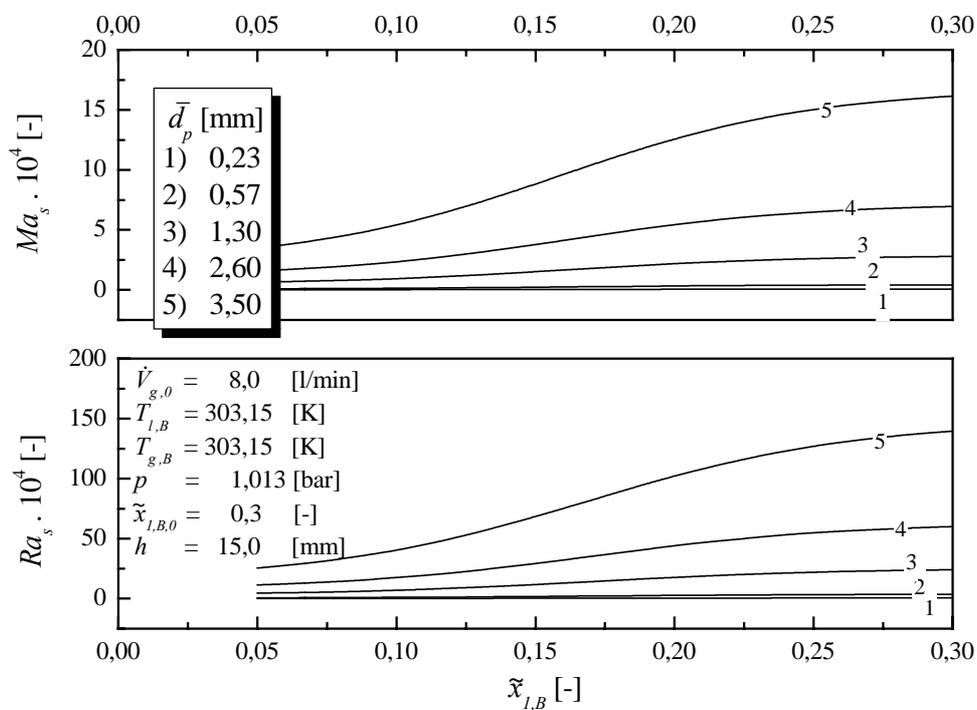


Abbildung 4.25: Separate Darstellung der adiabat berechneten Rayleigh- und Marangoni-Zahl für die Daten aus Abb. 4.23.

4.2.3 Ergebnisse der Versuche bei Variation beider Schüttungsparameter

Wie bereits im Abschnitt 4.2.2 erwähnt, kann bei konstanter Schüttungshöhe eine Zunahme der Schüttungspermeabilität zu größeren Selektivitäten, d.h. zu einem verbesserten Stofftransport, führen. Diese Tendenz hat sich in Abb. 4.26 für einen relativ kleinen Widerstand in der flüssigen Phase ($h = 5,0 \text{ mm}$) bestätigt (vgl. mit Abb. 4.20). Die numerisch berechneten Grenzfälle des gaseitig ($\beta_l \rightarrow \infty$) bzw. flüssigseitig kontrollierten ($\beta_l \rightarrow 0$) Stoffübergangs sind ebenfalls in der Abbildung aufgetragen.

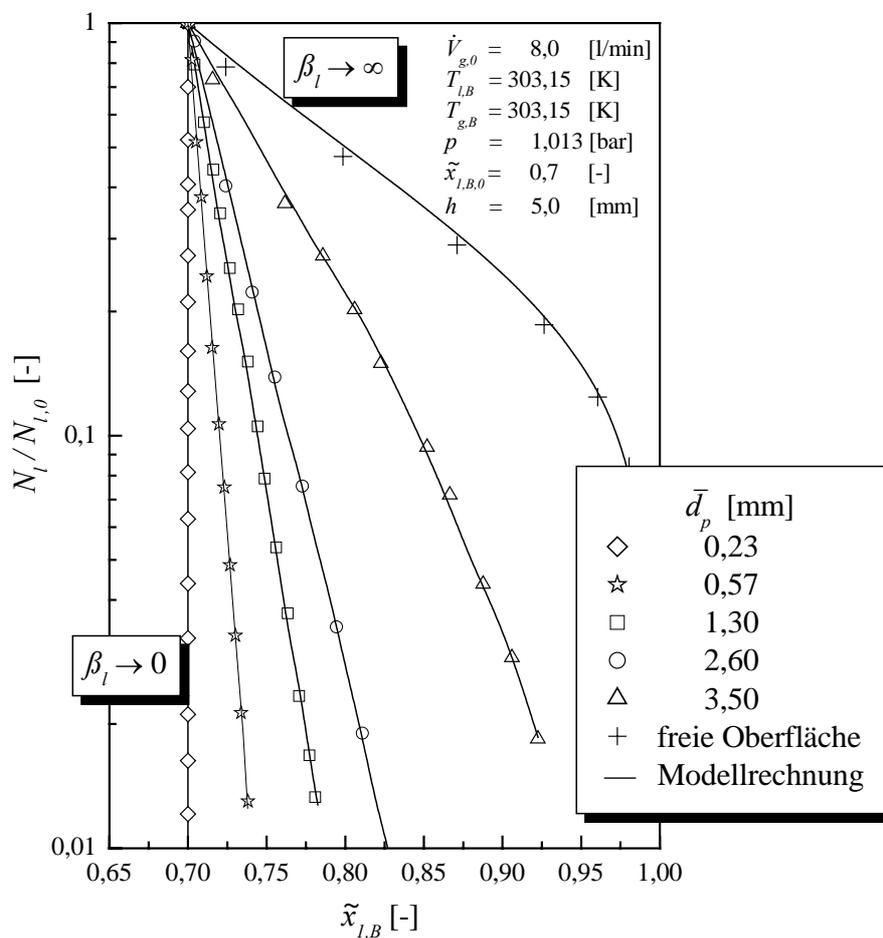


Abbildung 4.26: Selektivitätsverläufe für eine relativ kleine Schüttungshöhe und verschiedene Partikeldurchmesser; Experimentelle Ergebnisse, Grenzfälle und Modellrechnungen (durchgezogene Linien) durch punktuelle Anpassung von β_l .

Wird ein relativ großer Widerstand in der Flüssigkeit ($h = 25 \text{ mm}$) bei ansonst konstant gehaltenen Prozessbedingungen erzeugt, so ergeben sich vollständig unselektive Zusammensetzungsverläufe für zwei der verwendeten Partikelgrößen ($\bar{d}_p = 0,23 \text{ mm}$ und \bar{d}_p

zungsverläufe für zwei der verwendeten Partikelgrößen ($\bar{d}_p = 0,23 \text{ mm}$ und $\bar{d}_p = 0,57 \text{ mm}$), s. Abb. 4.27.

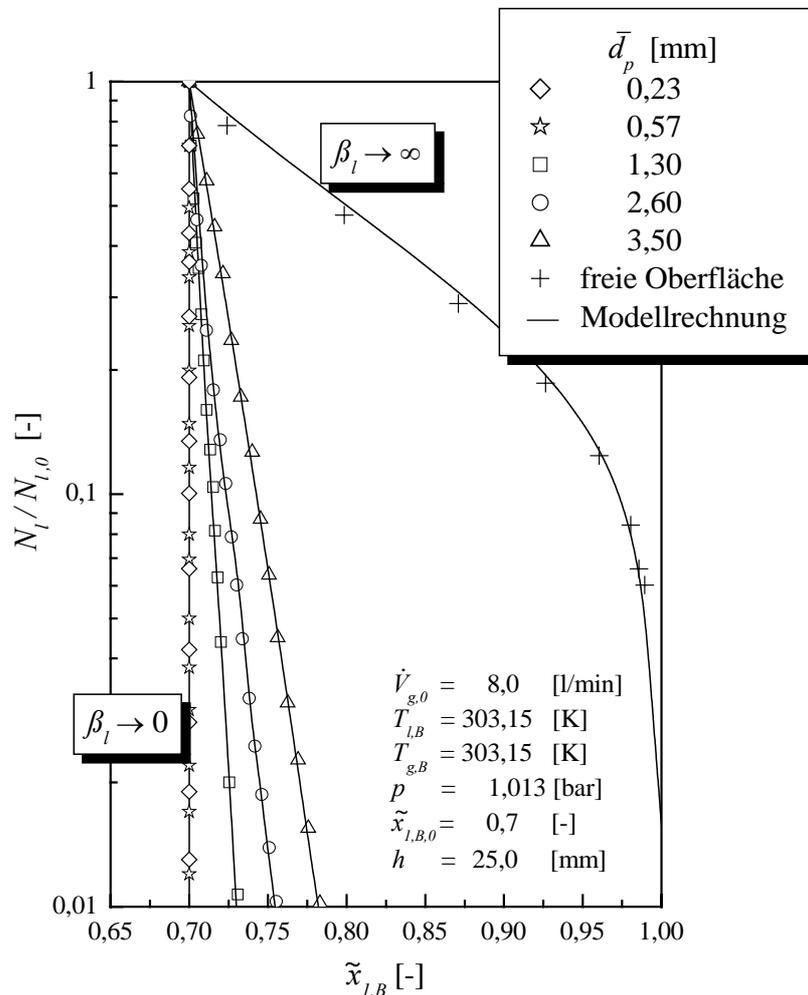


Abbildung 4.27: Selektivitätsverläufe für eine große Schüttungshöhe und verschiedene Partikeldurchmesser; Experimentelle Ergebnisse, Grenzfälle und Modellrechnungen (durchgezogene Linien) durch punktuelle Anpassung von β_l .

Diese Ergebnisse zeigen, dass, wenn im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich der flüssigseitige Transportwiderstand, erzeugt durch die Schüttung, eine gewisse Grenze überschreitet, die Wirkung der in der Flüssigkeit existierenden Triebkräfte (s. Tabelle 4.1) nicht ausreicht, um konvektive Bewegungen auszulösen. Daher kommt es zu einem unselektiven Verdunstungsverlauf. Dies deutet auf eine dominante Rolle des durch die Schüttung erschaffenen räumlichen Zwangs beim Ablauf des Stofftransports hin. Ferner ist anzumerken, dass, während eine Zunahme der Schüttungshöhe keine gravierende Verminderung des flüssigseitigen

Stoffübergangskoeffizienten bewirkt, mit kleiner werdendem Partikeldurchmesser die Verdunstung unselektiv gestaltet werden kann (vgl. Abschnitte 4.2.1 und 4.2.2).

Abbildung 4.28 zeigt die angepassten Eh -Faktoren für die Messdaten aus Abb. 4.27 als Funktion der Summe von *Marangoni*- und *Rayleigh*-Zahl. Im betrachteten Fall, bei einem ziemlich großen räumlichen Hindernis in der flüssigen Phase und vermeintlich stabilen Konzentrationsbedingungen, hat die Verringerung des Partikeldurchmessers eine negative Auswirkung auf den Stofftransport, die sich in der starken Abnahme der Eh -Werte widerspiegelt. Wie bereits erwähnt, wurde bei den Partikelgrößen von 0,23 mm und 0,57 mm keine Verbesserung des Stofftransports erreicht, in beiden Fällen gilt daher der Wert $Eh = 1$.

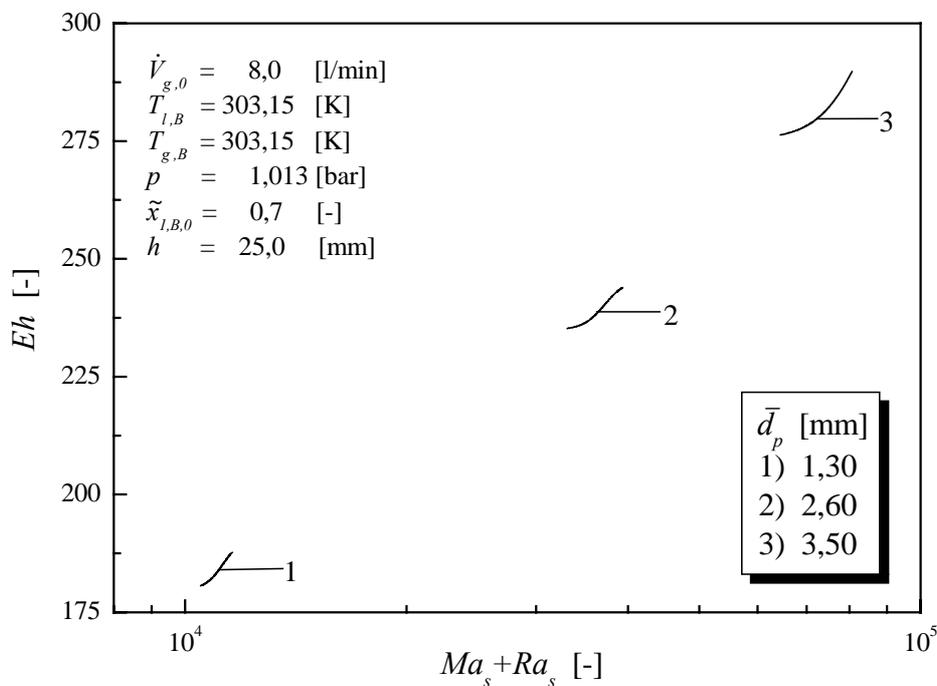


Abbildung 4.28: Abhängigkeit der Eh -Werte und damit der Selektivität von der Partikelgröße bei einer relativ großen Schüttungshöhe im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich.

Die berechneten Werte von *Marangoni* und *Rayleigh* sowie die Summen von den beiden Zahlen für alle Experimente, bei denen keine Selektivität gemessen wurde, sind in Tabelle 4.1 zusammengestellt. Aus den Daten in dieser Tabelle ist resümierend festzustellen, dass bei Summen $(Ma_s + Ra_s) > 1,72 \cdot 10^3$ die in der Flüssigkeit einsetzenden Triebkräfte die räumliche Hinderung überwiegen und folglich Selektivitäten auslösen können.

Varierte Betriebsparameter				Ma_s	Ra_s	$Ma_s + Ra_s$	Eh
$\tilde{x}_{l,B,0}$ [-]	$T_{g,B}$ [K]	\bar{d}_p [mm]	h [mm]				
0,7	303,15	0,23	5,0	$8,76 \cdot 10^0$	$5,54 \cdot 10^1$	$6,42 \cdot 10^1$	1,0
0,7	303,15	0,23	15,0	$2,68 \cdot 10^0$	$1,62 \cdot 10^2$	$1,65 \cdot 10^2$	1,0
0,7	303,15	0,23	25,0	$1,69 \cdot 10^0$	$2,78 \cdot 10^2$	$2,79 \cdot 10^2$	1,0
0,7	303,15	0,57	25,0	$1,04 \cdot 10^1$	$1,71 \cdot 10^3$	$1,72 \cdot 10^3$	1,0
0,7	343,15	3,5	15,0	$-1,99 \cdot 10^3$	$-1,34 \cdot 10^4$	$-1,54 \cdot 10^4$	1,0

Tabelle 4.1: Marangoni- und Rayleigh-Zahl sowie die Summe von den beiden für alle im Rahmen dieser Arbeit experimentell ermittelten, unselektiven Verläufe.

Es bleibt weiterhin zu klären, wie stark die zuletzt betrachteten Prozessparameter den Stofftransport im instabilen Konzentrationsbereich beeinflussen. Zu diesem Zweck sind in Abb. 4.29 die Eh -Faktoren über die Summe der Triebkräfte für die gleiche Schüttungshöhe von 25 mm und unterschiedliche Partikeldurchmesser unterhalb des azeotropen Punktes dargestellt.

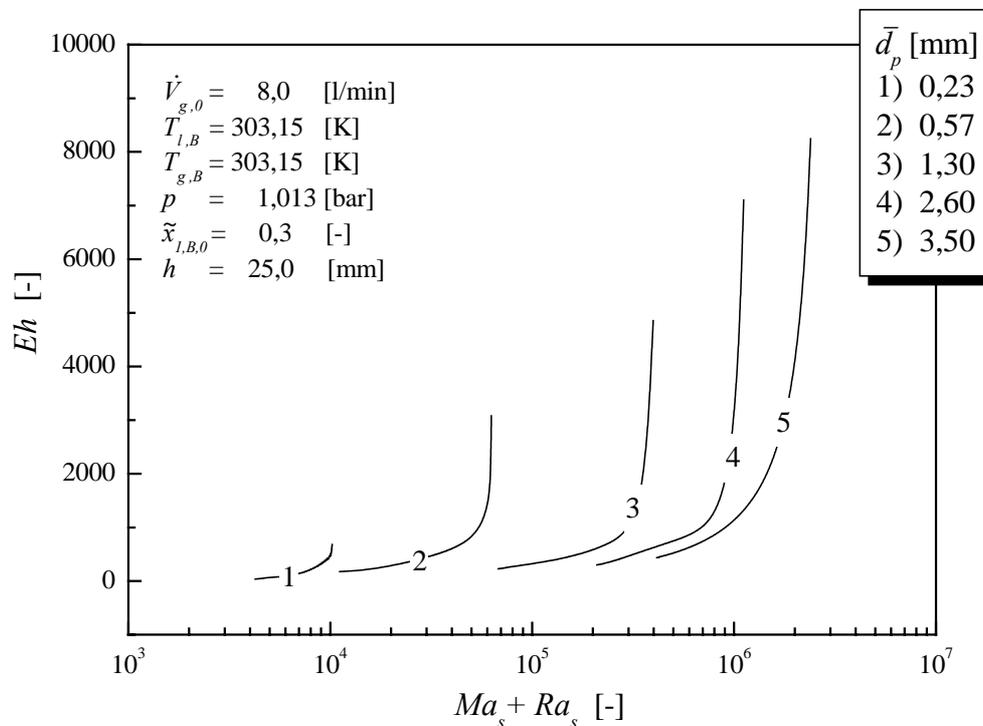


Abbildung 4.29: Abhängigkeit der Eh -Werte und damit der Selektivität von der Partikelgröße bei einer relativ großen Schüttungshöhe im instabilen Konzentrationsbereich.

Mit abnehmendem Partikeldurchmesser kommt es ebenfalls zu kleineren Selektivitäten. Man beobachtet aber stets selektive Verdunstungsverläufe ($Eh > 1$) trotz der großen Höhe der eingesetzten Schüttung. Das Ergebnis deutet auf ziemlich große Dichte- und Oberflächenspannungsgradienten, die infolge von Temperatur- und Konzentrationsinstabilitäten in der flüssigseitigen Grenzschicht entstehen. Trotz des großen räumlichen Zwangs reichen sie aus, um Mikrokonvektionen auszulösen, welche zur Vermischung der Flüssigkeit in unmittelbarer Phasengrenznahe und damit zu einem verbesserten Stofftransport führen.

4.2.4 Vergleich mit anderen Autoren

Wie in der Einleitung schon erwähnt, wurde die Selektivität während der Verdunstung eines binären Stoffgemisches aus ebenen Spalten bereits von *Post* [*Pos 1*] detailliert untersucht. Um die eigenen Ergebnisse mit denen von *Post* vergleichen und gleichzeitig die Güte der neuen Definitionen der Kennzahlen (s. Abschnitt 2.3, Gln (2.34) und (2.35)) beurteilen zu können, wurden die *Marangoni*- und *Rayleigh*-Zahlen für die wesentlichen Prozessparameter auch mit den von *Post* vorgeschlagenen Definitionen (s. Abschnitt 2.3, Gln (2.36) und (2.37)) nachgerechnet. Wie vorher im Abschnitt 2.3 erklärt, liegt der Unterschied in den hier verwendeten Definitionen in der Berücksichtigung des längeren Diffusionsweges durch die Schüttung und in der Berücksichtigung der veränderten Durchlässigkeit der Schüttung bei unterschiedlichen Partikelgrößen. Die Permeabilität der Platte erscheint aber nicht in den von *Post* verwendeten Gleichungen (2.36), (2.37), weil er bei der Modellierung den gesamten Stofftransport nur in einem ebenen Spalt (nur in der flüssigen Phase) betrachtet.

Einige angepassten *Eh*-Faktoren sind in Abb. 4.30 über die Summe der nach *Post* [*Pos 1*] berechneten Triebkräfte für unterschiedliche Temperaturen im Kern der Gasphase oberhalb der azeotropen Gemischzusammensetzung exemplarisch dargestellt.

Ohne Berücksichtigung der Schüttungspermeabilität erreichen die Summen aus beiden Zahlen *Ma* und *Ra* wesentlich höhere Werte. Sie sind nahezu doppelt so groß wie die entsprechenden Summen aus den Kennzahlen, bei denen in der Definition zusätzlich die Permeabilität der Schüttung eingeführt ist. Von einem Wertebereich $(Ma_s + Ra_s) = 1,0 \cdot 10^3 - 5,0 \cdot 10^4$ in Abb. 4.4 steigen die Summen auf $(Ma + Ra) = 4,0 \cdot 10^6 - 3,5 \cdot 10^8$ in Abb. 4.30 bei sonst gleichen Prozessbedingungen. Die Zahlenwerte des *Eh*-Faktors bleiben dabei unverändert.

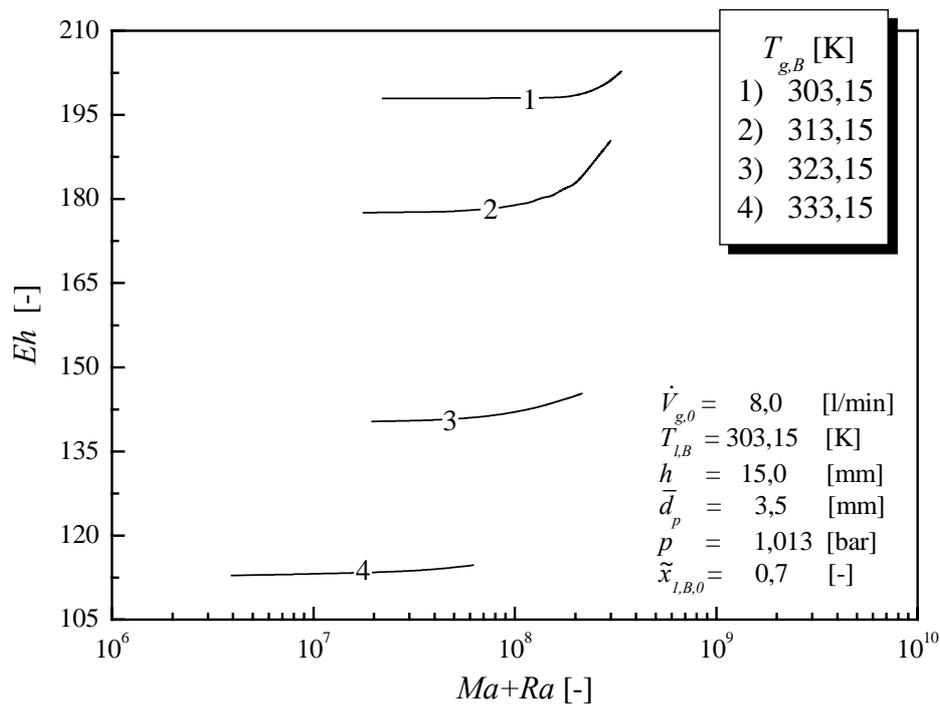


Abbildung 4.30: *Enhancement-Faktoren über die Summe der nach der Definition von Post berechneten Marangoni- und Rayleigh-Zahlen für unterschiedliche Gastemperaturen, der Abb. 4.4 entsprechend.*

Weiterhin sind in Abb. 4.31 die *Enhancement-Faktoren* als Funktion der Summe aus nach *Post* definierten *Marangoni-* und *Rayleigh-Zahlen* für unterschiedliche Partikeldurchmesser und konstante Schüttungshöhe von 15 mm im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich eingetragen (vgl. mit Abb. 4.22).

Man erkennt eine Erhöhung der *Eh*-Faktoren mit zunehmender Partikelgröße, während die Triebkräfte aber scheinbar gleich groß bleiben. Diese Tendenz ansteigender *Eh*-Werte bei gleichen treibenden Potenzialen wurde schon von *Post* mit breiter werdenden Spalten beobachtet. Dieses Resultat unterscheidet sich von den in Abb. 4.22 dargestellten Ergebnissen, die die Berücksichtigung der Permeabilität der Schüttung beinhalten, insofern, dass im zweiten Fall ein kontinuierlicher Anstieg der Summe der Triebkräfte bei größeren Permeabilitäten der Schüttung festzustellen ist und zum besseren Verständnis der damit verbundenen Erhöhung der *Eh*-Werte beiträgt. Also lassen die neuen Definitionen der *Marangoni-* und *Rayleigh-Zahl* eine bessere Einschätzung der Wirkung veränderter Partikelgrößen auf die beiden

Triebkräfte zu. Auch bei den Daten von Abb. 4.4, 4.30 ist die Überlappung der Kurven bei Verwendung der neuen Definitionen (also in Abb. 4.4) geringer, was positiv zu werten ist.

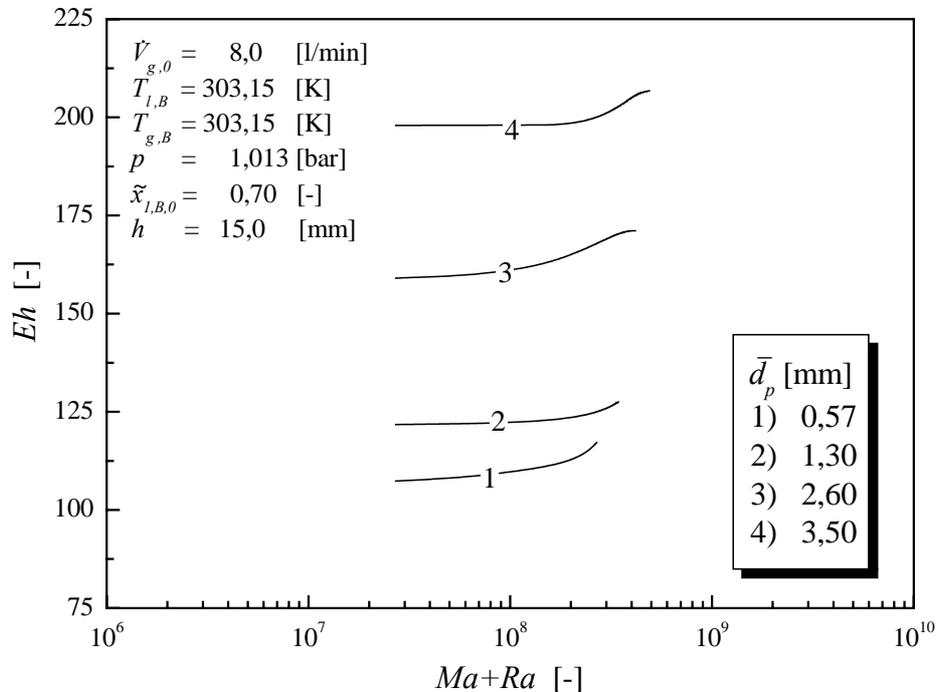


Abbildung 4.31: Enhancement-Faktoren über die Summe der nach der Definition von Post berechneten Marangoni- und Rayleigh-Zahlen für unterschiedliche Partikelgrößen, der Abb. 4.22 entsprechend.

4.3 Zusammenfassung der Ergebnisse

Die im vorliegenden Kapitel dargestellten Ergebnisse zeigen, dass die verschiedenen geometrischen und betrieblichen Einflussgrößen eine unterschiedlich starke Wirkung auf die Grenzflächeneffekte ausüben. Daraus entstehen mehr oder weniger deutlich ausgeprägte mikroskopische Strukturen in der flüssigseitigen Grenzschicht, die den Trennprozess nachhaltig beeinflussen. Die wichtigsten Erkenntnisse der vorangegangenen Diskussion lassen sich in folgende Punkte zusammenfassen:

» Durch Variation der Anfangszusammensetzung der Flüssigkeit konnten zwei unterschiedliche Konfigurationen bezüglich der Konzentrationsstabilität in der flüssigen Phase – stabil,

oberhalb des azeotropen Punktes und instabil, unterhalb der azeotropen Zusammensetzung – untersucht werden.

» Durch gezielte Änderung der Gastemperatur konnte die Intensität der Grenzflächenkonvektionen verstärkt oder aber auch unterdrückt werden. Im Allgemeinen wurde festgestellt, dass mit Steigerung der Gastemperatur eine Abnahme der *Enhancement*-Faktoren zu beobachten ist, die auf reduzierte treibende Temperaturprofile in unmittelbarer Nähe der Phasengrenze zurückzuführen ist und im Ergebnis eher einem gehinderten Stofftransport entspricht. Es wurde außerdem festgestellt, dass mit dem beschriebenen Modell lokale, laterale Unterschiede der Temperatur unvorhersagbar bleiben. In Fällen, bei denen ein Einfluss solcher lokaler Unterschiede vermutet werden kann, konnte die Annahme adiabater Bedingungen nach *Post [Pos 1]* eine eindeutige Erklärung der gemessenen Selektivitäten liefern.

» Die Variation der Schüttungsparameter, h und \bar{d}_p , hat eine deutliche Abhängigkeit der Intensität der Strömung von diesen Parametern, insbesondere von der Partikelgröße gezeigt. Die Abnahme des Partikeldurchmessers bewirkt eine Zunahme des räumlichen Zwangs, die folglich eine hemmende Auswirkung auf die Konvektionsströme und somit auf den Stofftransport ausübt. Während unterhalb der azeotropen Zusammensetzung keine vollkommene Unterdrückung der Konvektionseffekte mit abnehmender Schüttungspermeabilität erreicht wurde, waren oberhalb des Azeotropes bei einer Partikelgröße von $0,23\text{ mm}$ die vorherrschenden Triebkräfte nicht groß genug, um stofftransportverbessernde Konvektionen auszulösen. Die Kombination aus großer Schüttungshöhe und kleiner Partikelgröße (u.U. auch $\bar{d}_p = 0,57\text{ mm}$) bewirkt einen sehr großen Widerstand in der flüssigen Phase, der die existierenden Triebkraftpotenziale überwiegt und somit einen unselektiven Verdunstungsverlauf bedingt.

» Generell ist festzuhalten, dass bei den durchgeführten Untersuchungen der Anteil der Dichtekonvektion an der Verbesserung des Stofftransports zu überwiegen scheint. Die berechneten *Rayleigh*-Zahlen dominieren deutlich in beiden Konzentrationsbereichen – unterhalb und oberhalb des azeotropen Punktes – im Vergleich zu den entsprechenden *Marangoni*-Zahlen. Der Anteil der Oberflächenspannungsgradienten (*Ma*-Zahlen) steigt unter konzentrationsinstabilen Bedingungen wesentlich an, aber seine Einwirkung scheint auch in diesem Fall von meistens eher sekundärer Bedeutung zu bleiben.

» Oberhalb des azeotropen Punktes wurde das Auftreten und das Ausmaß der treibenden Potenziale für mögliche Konvektionen mit Temperaturinstabilitäten während der Verdunstung begründet. Unterhalb des Azeotropes hingegen wurden eher konzentrationsinstabile Konfigurationen für ihre Existenz verantwortlich gemacht. Bei gleichzeitiger Existenz von temperatur- und konzentrationsinstabilen Bedingungen im System wurden neben den größeren *Ra*- und *Ma*-Werten auch höhere *Enhancement*-Faktoren erreicht im Vergleich zu denen, die nur von Temperaturgradienten in der flüssigseitigen Grenzschicht verursacht werden.

» Weitergehende Analysen geometrischer Schüttungsgrößen haben gezeigt, dass bei kleinster Schüttungshöhe und instabilen Konzentrationsbedingungen der Anteil der Oberflächenspannungsinstabilität (*Marangoni*-Effekt) am treibenden Potential für einsetzende Mikrokonvektionen die dominierende Rolle spielen könnte. Mit einer Zunahme von *h* kehrt sich die Dominanz um. Während die *Rayleigh*-Werte mit zunehmender Höhe monoton ansteigen, stellt man einen Abstieg der *Marangoni*-Werte fest.

» Durch Anwendung neuer Definitionen für die Berechnung der beiden Triebkräfte (*Ra*- und *Ma*-Zahl) wurde eine deutliche Abhängigkeit derselben von der Partikelgröße eingeführt. Mit ansteigendem Partikeldurchmesser wurden somit größere Werte und daher größere Summen beider Triebkraftfaktoren ermittelt. Dies führt zu einer positiv zu bewertenden Entflechtung der Verläufe, wenn man den *Eh*-Faktor über die Summe der dimensionslosen Triebkräfte aufträgt. Im Gegensatz dazu bleiben die nach *Post* [*Pos 1*] berechneten treibenden Potenziale mit zunehmender Partikelgröße gleich groß.

5 Korrelationen des *Enhancement*-Faktors

Erst vor Kurzem wurde von *Post* [*Pos 1*] eine Kennzahl-Korrelation entwickelt, die anstrebte, den Zusammenhang zwischen den Werten im gestörten Zustand (*Eh*-Faktoren) und den entsprechenden Werten im ungestörten Zustand (*Ra*- und *Ma*-Zahl) zu erstellen. Diese Korrelation stützte sich jedoch auf die experimentellen Untersuchungen zur Verdunstung eines Isopropanol-Wasser-Gemisches aus ebenen Spalten. Durch Modifikation der von *Post* vorgeschlagenen Modellvorstellung werden im folgenden zwei Korrelationen entwickelt, die auf Grund der im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen Daten mit Schüttungen einen weiteren Versuch zur quantitativen Beschreibung des Einflusses von Grenzflächenkonvektionen auf den flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten darstellen.

5.1 Erster Ansatz zur Korrelierung der Messergebnisse

Als Basisgleichung für die Modellvorstellung wird der von *Post* [*Pos 1*] vorgeschlagene Zusammenhang der auftretenden Energien

$$E_{kin} = E_{pot} \quad (5.1)$$

angesetzt. Dabei wird eine vollständige Umwandlung der additiv zusammengesetzten potentiellen Energie des Systems,

$$E_{pot} = g \Delta\rho_l h + \frac{\Delta\sigma_l}{h}, \quad (5.2)$$

in kinetische Energie zur Vermischung der Flüssigkeit,

$$E_{kin} = \frac{1}{2} \rho_l u^2, \quad (5.3)$$

angenommen. Analog zu *Post* [*Pos 1*] wird zunächst in der Gleichung für die potentielle Energie nur die Schüttungshöhe *h* verwendet, obwohl dies, wie später noch zu erläutern, als nicht ganz sinnvoll angesehen wird.

Beim Einsetzen der Gln (5.2) und (5.3) in den Energieansatz erhält man den Zusammenhang

$$\frac{1}{2} \rho_l u^2 = g \Delta \rho_l h + \frac{\Delta \sigma_l}{h}, \quad (5.4)$$

indem die Durchströmungsgeschwindigkeit u mit dem Verhältnis zwischen der Leerrohrgeschwindigkeit und der Porosität

$$u = \frac{u_0}{\psi} \quad (5.5)$$

ausgedrückt werden kann. Durch Einführung von Gl. (5.5), der stofflichen Beziehung

$$\eta_l = \nu_l \rho_l, \quad (5.6)$$

wobei η_l die dynamische und ν_l die kinematische Viskosität der Flüssigkeit sind, der Definitionsgleichungen (2.34) und (2.35) sowie der Gln (3.4) und (2.16) für die Permeabilität und den effektiven Diffusionskoeffizienten in Gl. (5.4) ergibt sich der dimensionslose Ausdruck

$$Re_{\ddot{a}q}^2 = \frac{300(1 - \sqrt{1 - \psi})}{\psi} \left(\frac{Ra_s + Ma_s}{Sc} \right) \quad (5.7)$$

mit

$$Re_{\ddot{a}q} = \frac{u_0 d_p}{(1 - \psi) \nu_l}. \quad (5.8)$$

Gleichung (5.7) enthält somit eine äquivalente *Reynolds-Zahl* im Quadrat auf der linken und das Verhältnis zwischen der Summe der Triebkräfte und der *Schmidt-Zahl* auf der rechten Seite.

Hierbei sind die in Gl. (2.34) bzw. (2.35) definierten *Rayleigh-* und *Marangoni-Zahlen* im ungestörten Zustand und die *Schmidt-Zahl*, definiert als

$$Sc = \frac{\nu_l \langle \bar{T}_l, \bar{x}_l \rangle}{D_l \langle \bar{T}_l, \bar{x}_l \rangle}, \quad (5.9)$$

im gestörten Zustand zu bestimmen. Setzt man vereinfachend eine mittlere Porosität der Schüttung $\bar{\psi} = 0,36$ ein, so erhält man aus Gl. (5.7)

$$Re_{\dot{a}q}^2 = 166,67 \left(\frac{Ra_s + Ma_s}{Sc} \right). \quad (5.10)$$

Bei den Schüttungen wird es als wenig sinnvoll angesehen, zunächst zur Berücksichtigung der Dämpfung *Schmidt*-Zahlen-Differenzen zwischen Phasengrenze und Kern der Flüssigkeit für die beiden Zustände (gestört und ungestört) zu erzeugen, diese aber dann wieder durch eine sehr scharfe und willkürliche Dämpfungsfunktion zu modifizieren, wie in [Pos 1], S. 103-106, vorgeschlagen. Stattdessen, und viel einfacher, wird hier nur die *Schmidt*-Zahl im gestörten Zustand als Maß für die Dämpfung, die die Konvektion aufgrund der existierenden stofflichen Bedingungen erfährt, verwendet.

Unter der Annahme $Re_{\dot{a}q} \sim Eh$, die bereits Post [Pos 1] verwendet, wurde bei Freigabe des Vorfaktors in Gl. (5.10) eine empirische Gebrauchsformel zur Berechnung des *Enhancement*-Faktors und somit des unbekanntenen flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten unter dem Einfluss von Grenzflächenkonvektion erstellt. Für $Eh \geq 1$ lautet sie

$$Eh = 133,76 \left(\frac{Ra_s + Ma_s}{Sc} \right)^{1/2}. \quad (5.11)$$

Das Aussehen der Funktion wird durch Abb. 5.1 verdeutlicht. Aufgetragen sind die angepassten *Enhancement*-Faktoren über der dimensionslosen Variablen von Gl. (5.11). Es ist zwar ein eindeutiger Trend mit $\left[(Ra_s + Ma_s) / Sc \right]^{0,5}$ erkennbar, die *Eh*-Zahlen zeigen aber auch eine Feinstruktur, die von Gl. (5.11) nicht erfasst wird, und streuen stark. Es ist offensichtlich, dass durch die gefundene Abhängigkeit (Gl. (5.11)) nicht alle Daten gut beschrieben werden können. Daher scheint es lohnend, im folgenden auch einen zweiten Versuch zur Korrelation der Messdaten vorzunehmen. Ziel ist es, eine Funktion für den flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten in Abhängigkeit von den beiden Triebkraftpotentialen sowie von den geometrischen Abmessungen der Schüttung zu entwickeln, die eine bessere Beschreibung der experimentellen Daten liefert.

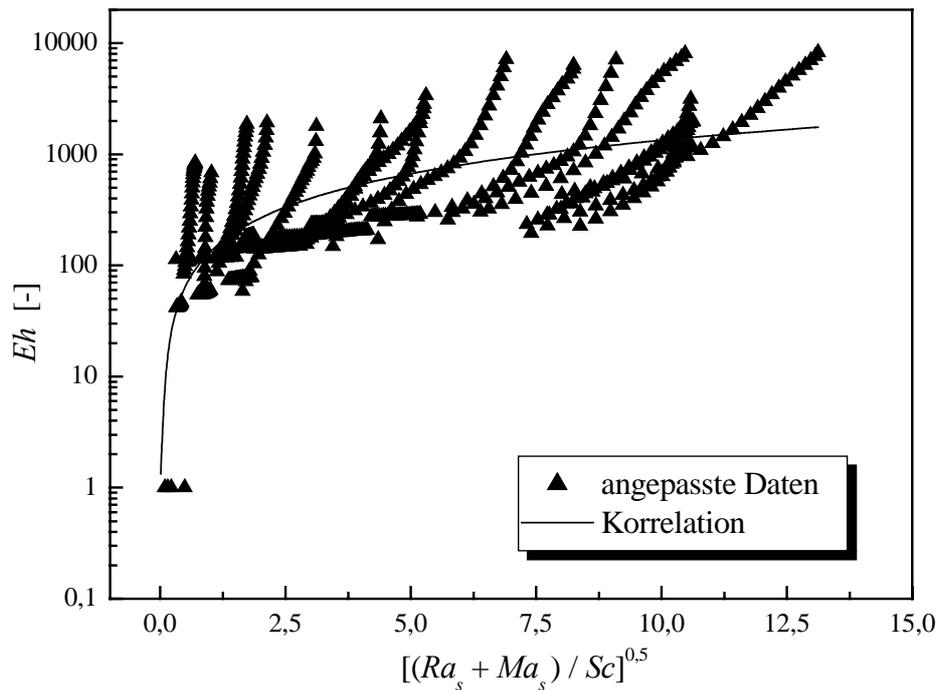


Abbildung 5.1: Korrelation der Enhancement-Faktoren mit Hilfe von Gl. (5.11).

5.2 Zweiter Ansatz zur Korrelierung der Messergebnisse

Als Ausgangspunkt für die Entwicklung der zweiten, modifizierten Kennzahl-Korrelation dient erneut der Energieerhaltungssatz (Gl. (5.1)). Nun wird jedoch ein hydraulischer Durchmesser als geometrische Größe im Grenzflächenspannungsterm des Ausdrucks für die potentielle Energie eingeführt. Dies trägt der Tatsache Rechnung, dass sich die Grenzflächenspannung an der Oberfläche und lateral und nicht in die Tiefe der Schüttung auswirkt. Daraus folgt:

$$E_{pot} = g \Delta\rho_l h + \frac{\Delta\sigma_l}{d_h}. \quad (5.12)$$

Geht man vom sogenannten Kanalmodell aus, in welchem die Schüttung durch ein Bündel paralleler Kanäle gleichen Durchmessers ersetzt wird, und wird zudem angenommen, dass das Verhalten der gesamten Schüttung anhand eines einzigen Kanals zu beschreiben sei, kann der Kanaldurchmesser mit

$$d_h = \frac{2}{3} \frac{\psi}{1-\psi} d_p \quad (5.13)$$

definiert werden (s. [Sch 4]). Durch Berechnen des hydraulischen Durchmessers durch Gl. (5.13) und Einsetzen der Gln (5.3) und (5.12) in Gl. (5.1) ergibt sich die Beziehung

$$\frac{1}{2} \rho_l u^2 = g \Delta \rho_l h + \frac{3(1-\psi) \Delta \sigma_l}{2 \psi d_p}. \quad (5.14)$$

Auf ähnliche Weise wie im Abschnitt 5.1 resultiert die äquivalente *Reynolds*-Zahl zu

$$Re_{\ddot{a}q}^2 = \frac{300(1-\sqrt{1-\psi})}{\psi} \left(\frac{Ra_s}{Sc} + \frac{3(1-\psi)h}{2\psi d_p} \frac{Ma_s}{Sc} \right). \quad (5.15)$$

Mit dem Substitutionsterm

$$\Gamma = \frac{3(1-\psi)h}{2\psi d_p} \quad (5.16)$$

und einem bei einer mittleren Porosität der Schüttung von 0,36 ausgerechneten Vorfaktor lässt sich Gl. (5.15) vereinfachen zu

$$Re_{\ddot{a}q}^2 = 166,67 \left(\frac{Ra_s + \Gamma Ma_s}{Sc} \right). \quad (5.17)$$

Aus dieser Abhängigkeit wurde unter der Annahme $Re_{\ddot{a}q} \sim Eh$ sowie unter Freigabe des Vorfaktors und des Exponenten die Beziehung

$$Eh = 29,47 \left(\frac{Ra_s + \Gamma Ma_s}{Sc} \right)^{4/5} \quad \text{für } Eh \geq 1 \quad (5.18)$$

zur Korrelation des flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten in Anwesenheit von Mikrokonvektion abgeleitet.

In Abb. 5.2 sind die aus Messdaten abgeleiteten *Enhancement*-Faktoren über dem Kennzahlenverhältnis $\left[(Ra_s + \Gamma Ma_s) / Sc \right]^{0.5}$ mit Symbolen aufgetragen. Diese Abbildung enthält zusätzlich den Funktionsansatz nach Gl. (5.18) (durchgezogene Linie). Für einen sehr kleinen Wert von $\left[(Ra_s + \Gamma Ma_s) / Sc \right]^{0.5}$ nimmt der *Eh*-Faktor den Wert 1 an. Dies kann auf die kleinen Triebkräfte zurückgeführt werden, die nicht ausreichen, um einen selektiven Verdunstungsverlauf auszulösen (vgl. mit Abschnitt 4.2.3, Tabelle 4.1). Mit Zunahme von $\left[(Ra_s + \Gamma Ma_s) / Sc \right]^{0.5}$ ist ein eindeutiger Anstieg der *Eh*-Faktoren zu erkennen. Im Vergleich zu Abb. 5.1 ist aber in Abb. 5.2 die Streuung der Messdaten weniger stark. D.h., die Daten lassen sich mit der Abhängigkeit nach Gl. (5.18) besser beschreiben.

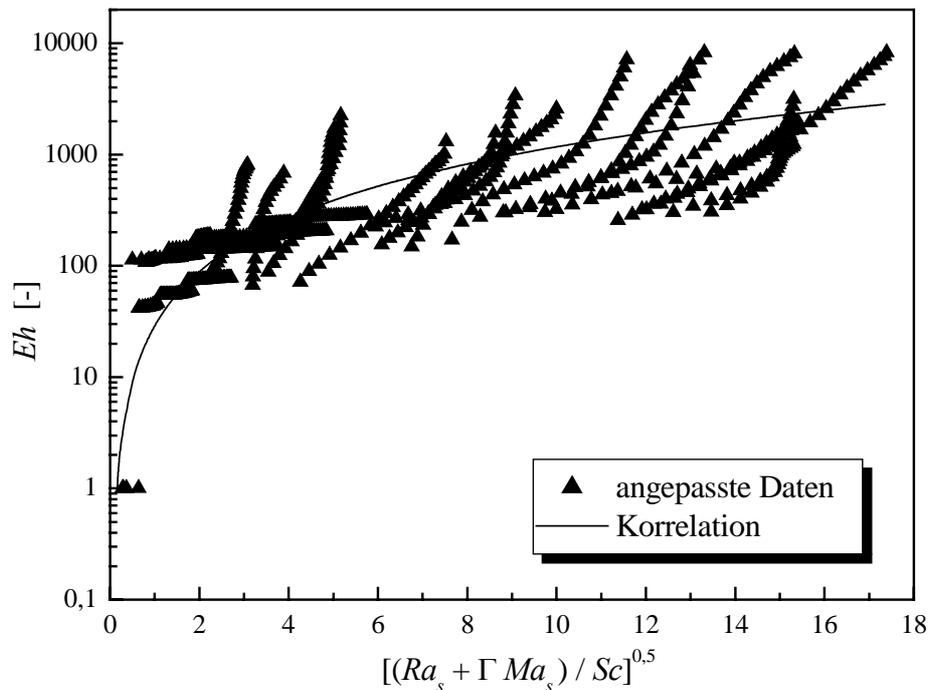


Abbildung 5.2: Korrelation der *Enhancement*-Faktoren mit Hilfe von Gl. (5.18).

Die Güte der beiden Korrelationen kann den Abbn 5.3 und 5.4 entnommen werden. Aufgetragen sind die an Experimenten angepassten *Enhancement*-Faktoren im Vergleich zu den entsprechenden berechneten *Enhancement*-Faktoren.

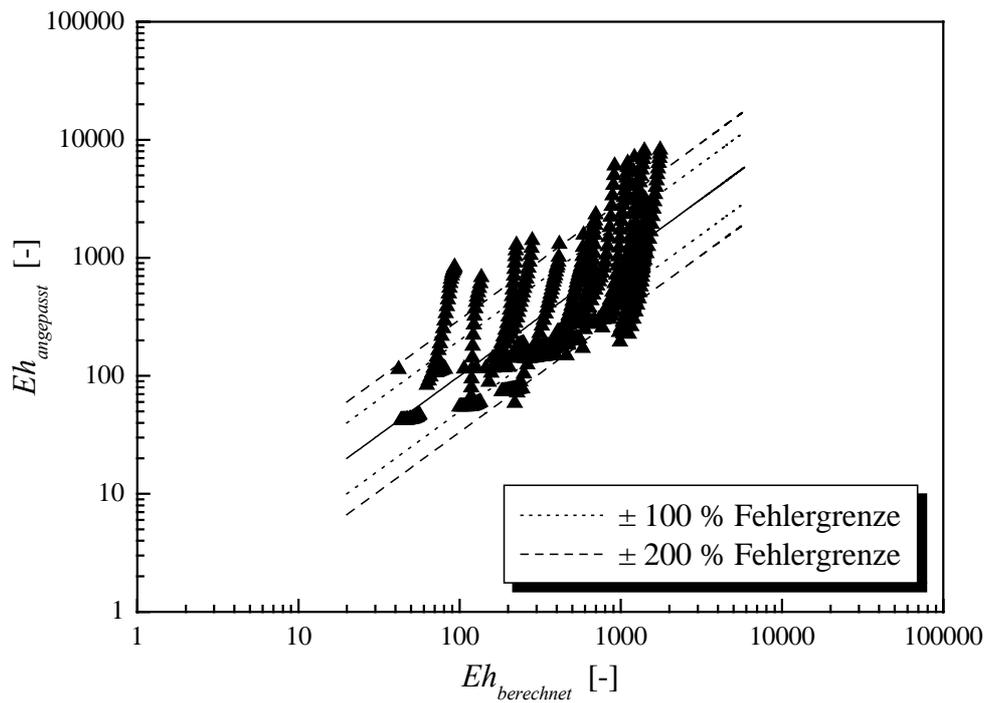


Abbildung 5.3: Vergleich der nach Gl. (5.11) berechneten mit den aus Experimenten abgeleiteten Enhancement-Faktoren.

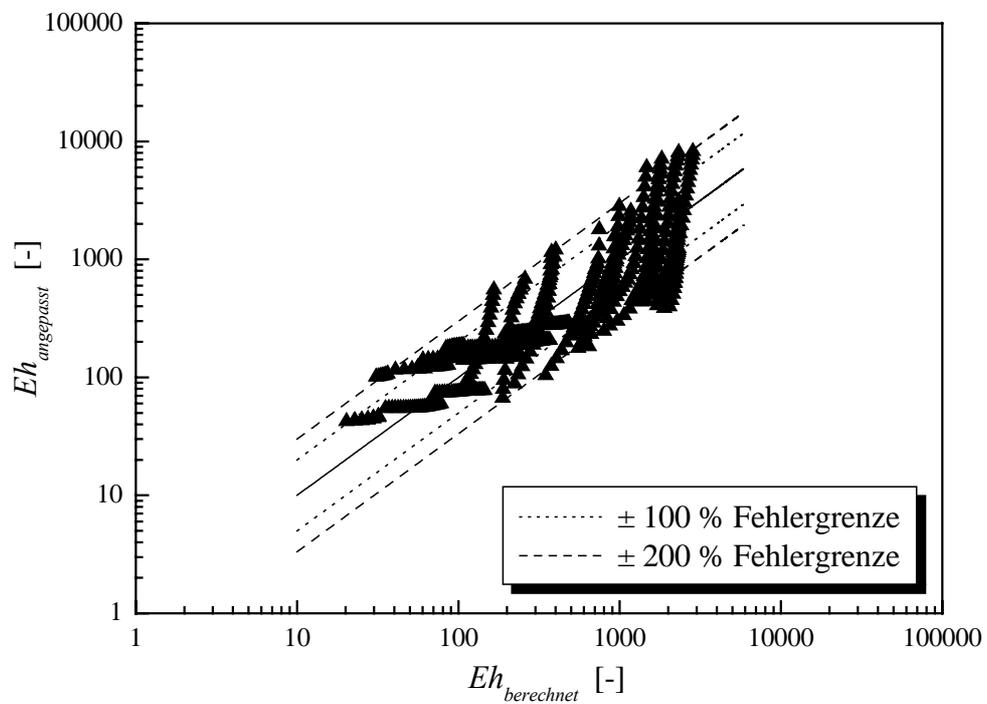


Abbildung 5.4: Vergleich der nach Gl. (5.18) berechneten mit den aus Experimenten abgeleiteten Enhancement-Faktoren.

Es ist zu erkennen, dass im Vergleich zu Abb. 5.3 in Abb. 5.4 weniger Messpunkte außerhalb des Bereiches von $\pm 200\%$ liegen. Daraus kann geschlossen werden, dass die zweite Korrelation die Messdaten insgesamt etwas besser beschreibt.

Ein Vergleich mit dem Korrelationsansatz von *Post* [*Pos 1*], der die flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten in einem Bereich von $\pm 100\%$ berechnet, zeigt, dass mit den hier entwickelten Korrelationen für Schüttungen die Experimentaldaten ähnlich gut beschrieben werden können. Dies ist in Anbetracht der recht einfachen Korrelationsansätze im Gegensatz zum Ansatz von *Post*, der eine sehr scharfe und willkürliche Dämpfungsfunktion enthält, positiv zu werten. Positiv ist auch die Tatsache, dass die eigenen Korrelationsansätze sowohl die Abhängigkeit des *Eh*-Faktors vom Verhältnis zwischen den Triebkraftpotentialen und der *Schmidt*-Zahl als auch von den Schüttungsparametern erfasst.

5.3 Nachrechnungen und Diskussion

Im folgenden werden *Enhancement*-Faktoren mit dem zweiten Korrelationsansatz, Gl. (5.18), für unterschiedliche Triebkräfte und Schüttungsparameter berechnet und graphisch dargestellt, um das Verhalten der Korrelationsgleichung genauer zu erörtern. In Abb. 5.5 – 5.7 sind berechnete *Enhancement*-Faktoren für konstante Schüttungshöhe und drei unterschiedliche Partikeldurchmesser bei feststehender *Schmidt*-Zahl über der *Rayleigh*-Zahl aufgetragen. In jedem einzelnen Diagramm sind sechs Kurvenverläufe bei sechs konstanten *Marangoni*-Zahlen dargestellt. In allen drei Abbildungen zeigen die Kurvenverläufe den erwarteten und bei den Messungen auch beobachteten Trend, dass die *Enhancement*-Werte mit größer werdenden Triebkraftpotentialen ansteigen. Weiterhin bestätigt sich bei den Berechnungen die experimentell ebenfalls beobachtete Tendenz der Verbesserung des Stofftransportes mit größer werdendem Partikeldurchmesser, d.h. mit Verminderung des räumlichen Zwangs. Dieser Einfluss bliebe mit dem Korrelationsansatz von *Post* unerfasst. Auch eine Abnahme der Bezugsgröße bei steigender artifizierter Grenzschichtdicke der flüssigen Phase führt zu höheren *Enhancement*-Faktoren (vgl. Abb. 5.7 und 5.8). Fixiert man die Betrachtung auf Linie 1 in Abb. 5.5 kann festgestellt werden, dass bei $Ma_s = 0$ und $Ra_s = 1,4 \cdot 10^1$ keine Selektivität zu erwarten ist ($Eh = 1$). Wenn man diese vorausgesagten Werte von *Marangoni* und *Rayleigh* mit den experimentell festgestellten Schwellenwerten bei den selben Schüttungsparametern ($h = 5,0\text{ mm}$, $\bar{d}_p = 0,23\text{ mm}$) vergleicht (s. Abschnitt 4.2.3, Tabelle 4.1), ist die Übereinstimmung recht gut.

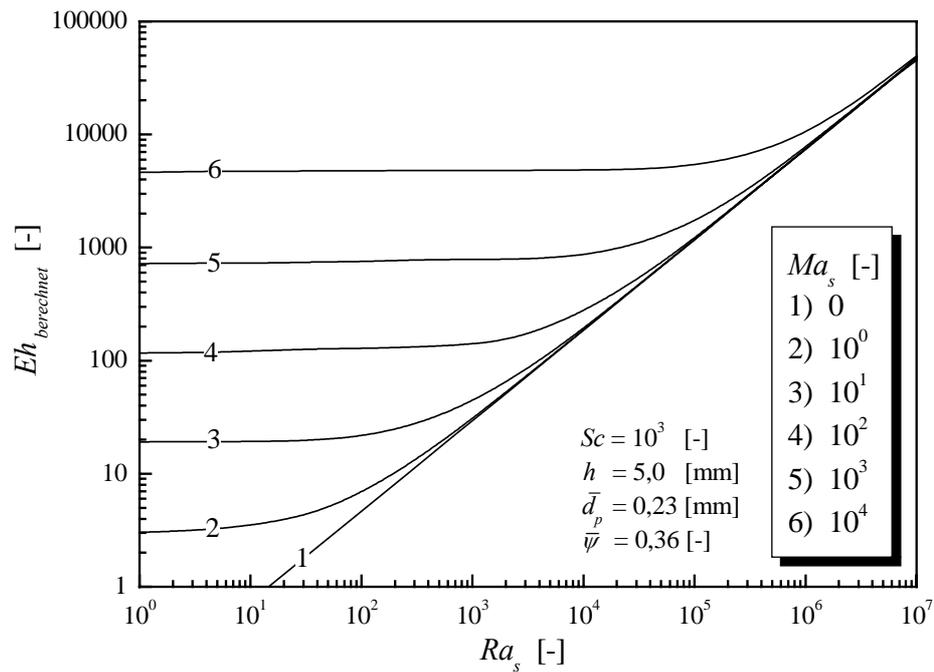


Abbildung 5.5: Berechnete Enhancement-Faktoren über der Rayleigh-Zahl beim kleinsten Partikeldurchmesser für sechs konstante Marangoni-Zahlen ($Sc = 10^3$).

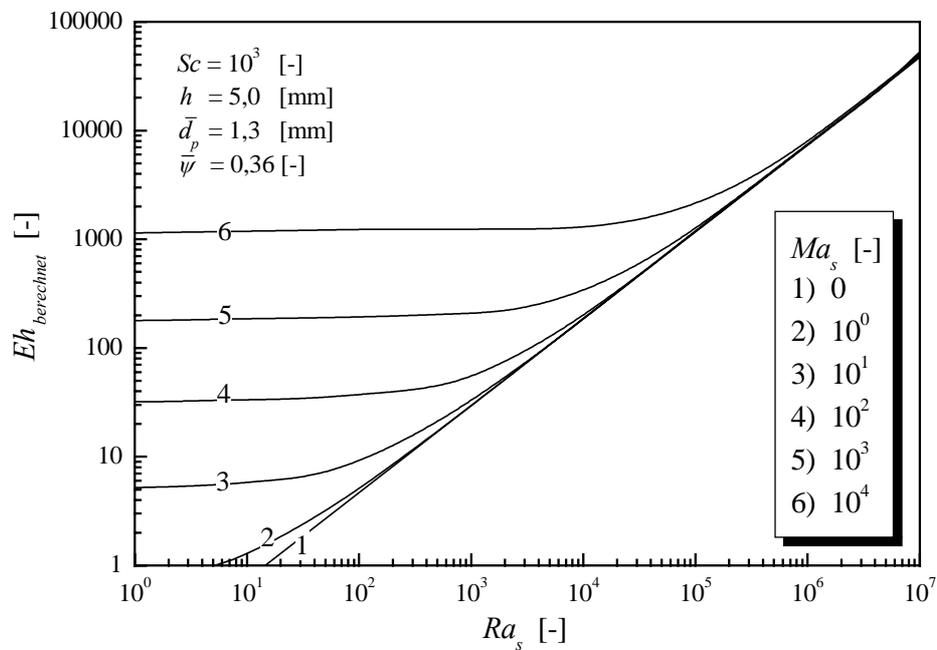


Abbildung 5.6: Wie Abb. 5.5, jedoch beim mittleren Partikeldurchmesser.

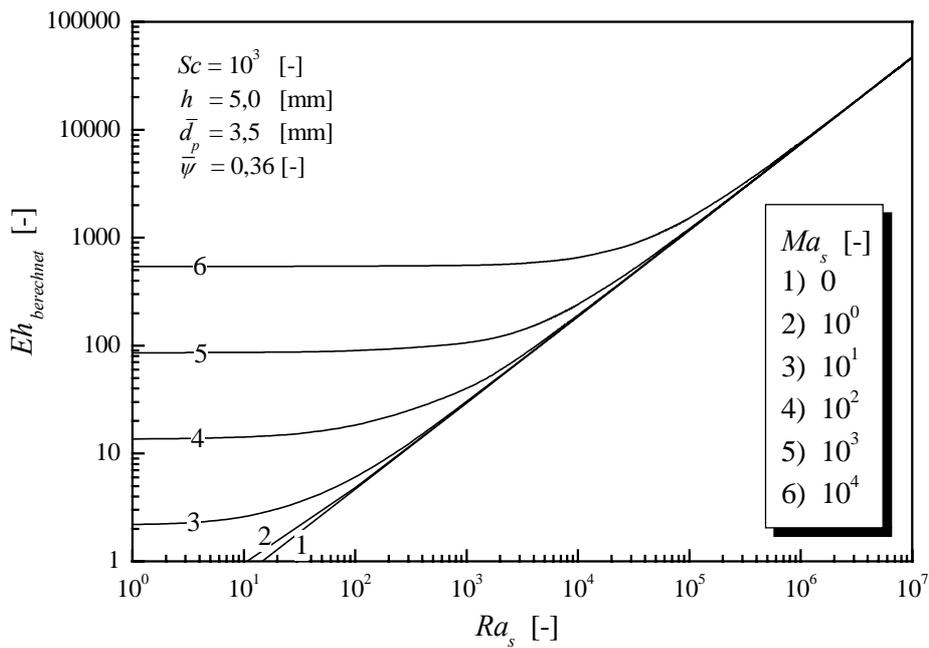


Abbildung 5.7: Wie Abb. 5.5, jedoch beim größten Partikeldurchmesser.

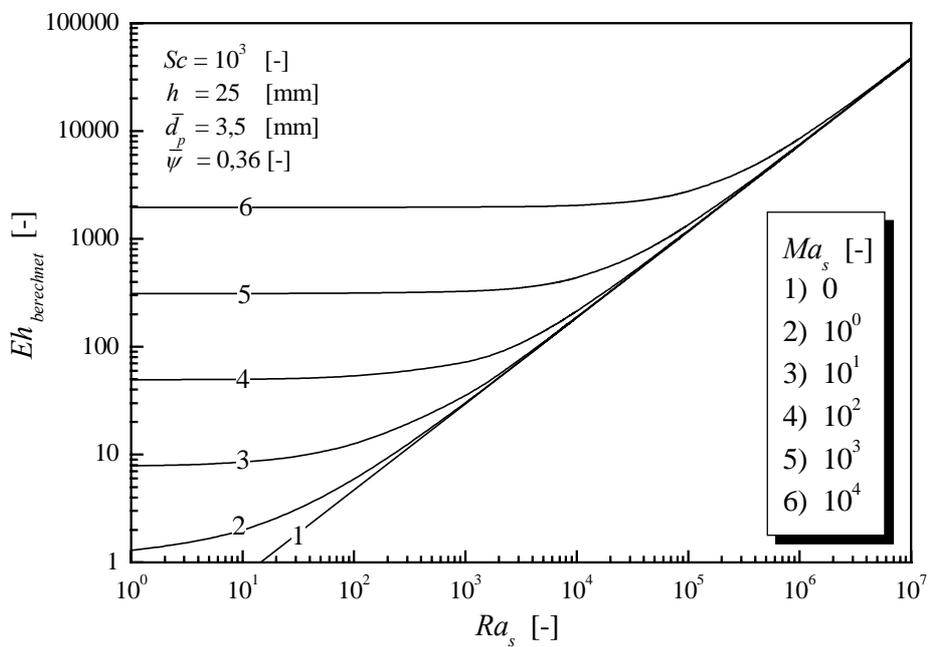


Abbildung 5.8: Berechnete Eh -Faktoren über der Rayleigh-Zahl beim größten Partikeldurchmesser und bei der größten Schüttungshöhe für sechs konstante Marangoni-Zahlen ($Sc = 10^3$).

Übrigens ist anzumerken, dass die ausgewählte konstante *Schmidt-Zahl* von 10^3 nicht in allen Konzentrationsbereichen den experimentellen Werten entspricht. In dieser Größenordnung liegen die *Schmidt-Zahlen* oberhalb des azeotropen Punktes, während sie unterhalb des Azeotropes um den Faktor 10 größer sind. Deshalb ist eine ungefähre Übereinstimmung der in Abbn 5.5 – 5.8 dargestellten Verläufe mit den bei ähnlichen Prozessbedingungen erzielten Messergebnissen im vermeintlich stabilen Bereich zu erwarten. Messergebnisse im instabilen Bereich würden Berechnungen bei größeren *Schmidt-Zahlen* entsprechen (s. Abb. 5.9).

Abbildungen 5.9 – 5.11 zeigen die nach Gl. (5.18) berechneten *Enhancement-Faktoren* über der *Rayleigh-Zahl* bei konstanten mittleren Schüttungsparametern ($h = 15 \text{ mm}$, $\bar{d}_p = 1,3 \text{ mm}$) und drei verschiedenen feststehenden *Schmidt-Zahlen*, für jeweils sechs konstante *Marangoni-Zahlen*. Allgemein ist ein Anstieg der *Enhancement*-Werte, d.h. eine Verbesserung des Stofftransportes, mit abnehmender *Schmidt-Zahl* feststellbar. Dies ist mit einer Verstärkung der Grenzflächenkonvektionen bei verminderter Dämpfung und vergleichbaren Triebkräften zu erklären. Dementsprechend kann bei höheren *Schmidt-Zahlen* (z.B. $Sc = 10^4$) eine Poten-

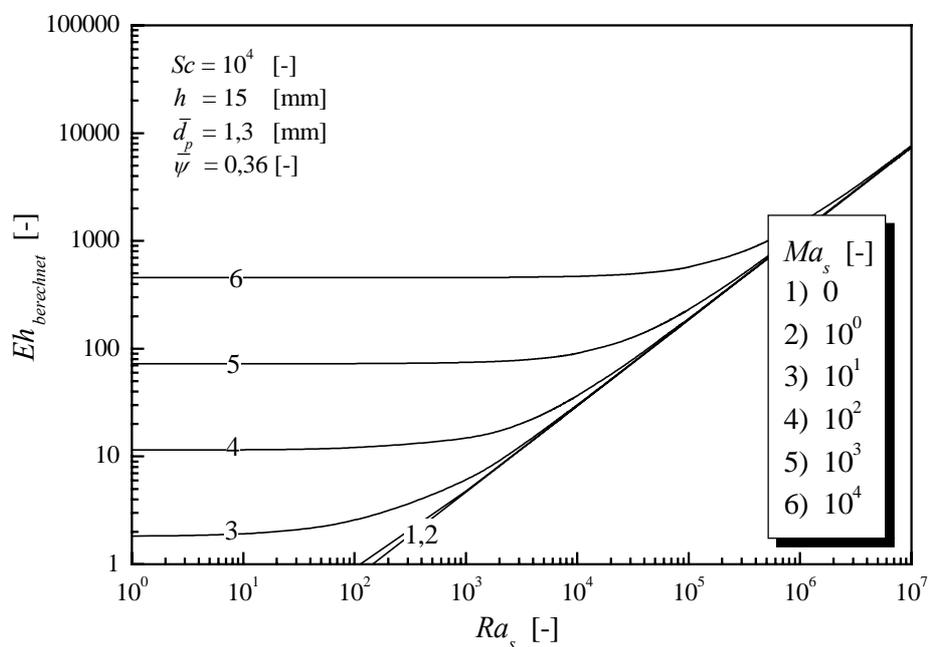


Abbildung 5.9: Berechnete *Eh*-Faktoren über der *Rayleigh-Zahl* bei mittleren Schüttungsparametern, konstanten *Marangoni-Werten* und $Sc = 10^4$.

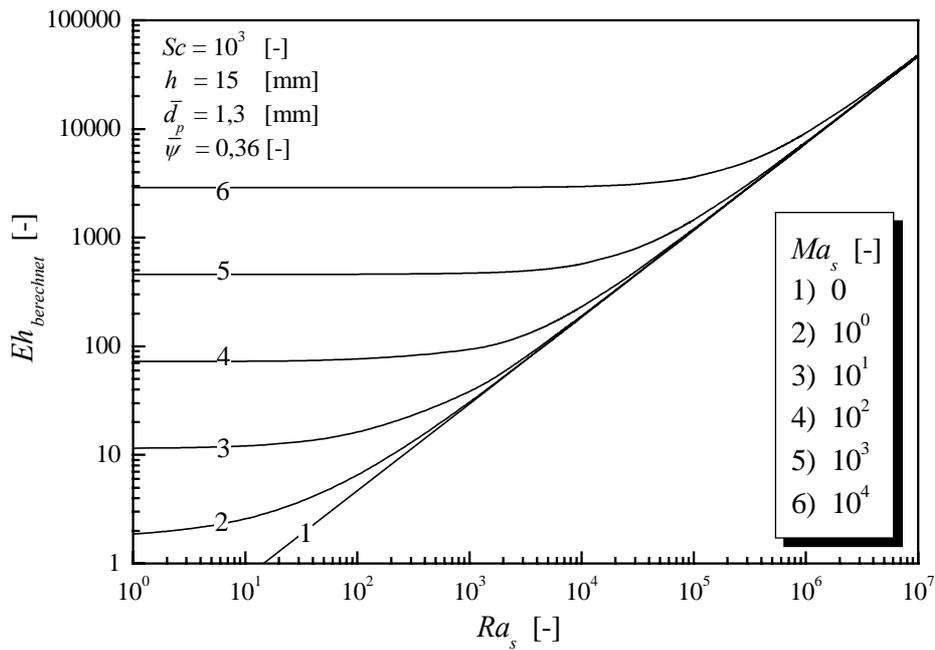


Abbildung 5.10: Berechnete Eh -Faktoren über der Rayleigh-Zahl bei mittleren Schüttungsparametern, konstanten Marangoni-Werten und $Sc = 10^3$.

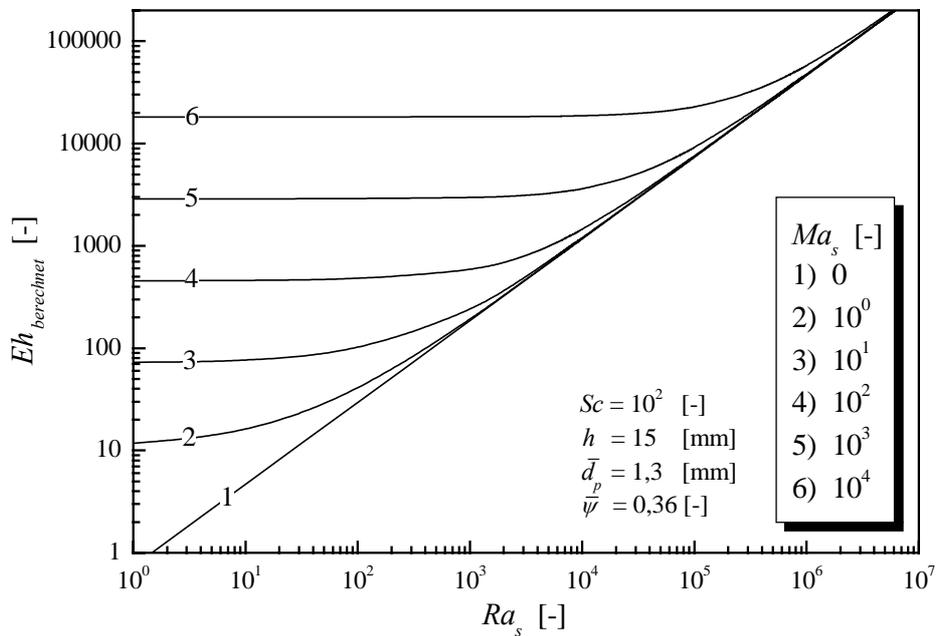


Abbildung 5.11: Berechnete Eh -Faktoren über der Rayleigh-Zahl bei mittleren Schüttungsparametern, konstanten Marangoni-Werten und $Sc = 10^2$.

zierung der mikroskopischen Bewegungen zu spürbaren Konvektionen erst bei relativ hohen Triebkräften erfolgen. Bei kleinen *Schmidt*-Zahlen (z.B. $Sc = 10^2$) hingegen, können Strömungen bereits von geringen Dichte- und/oder Oberflächenspannungsgradienten, d.h. geringen *Rayleigh*- und *Marangoni*-Zahlen, hervorgerufen werden.

Beim Vergleich der berechneten Kurven mit den Messergebnissen soll außerdem beachtet werden, dass die *Rayleigh*- bzw. die *Marangoni*-Zahlen in den beiden untersuchten Konzentrationsbereichen nicht in einer ähnlichen Größenordnung liegen. Während die experimentell erzielten Werte von *Rayleigh* bzw. *Marangoni* oberhalb der azeotropen Zusammensetzung durchschnittlich im Bereich $10^2 - 10^4$ liegen, nehmen die entsprechenden Zahlen unterhalb des Azeotropes Werte von $10^4 - 10^6$ an. Da die Triebkraftpotentiale additiv zusammengesetzt wurden, ist ferner anzumerken, dass, wenn der eine Summand signifikant größer ist, die Stoffübertragung von ihm dominiert wird.

6 Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit ist der Untersuchung der Grenzflächenkonvektionen, die infolge von Dichte- und Grenzflächenspannungsinstabilitäten in der flüssigseitigen Grenzschicht einsetzen und den Stofftransport wesentlich beeinflussen können, gewidmet. Sie ist die Fortsetzung einer früheren Forschungsarbeit von Post [Pos 1] zur Verdunstung eines binären Gemisches aus ebenen Spalten. Hier wurde angestrebt, mit Hilfe experimenteller und theoretischer Untersuchungen das Verhalten eines Isopropanol-Wasser-Gemisches bei seiner Verdunstung aus Schüttungen in Luft durch gezielte Variation unterschiedlicher Betriebs- bzw. Schüttungsparameter zu erfassen. Daher konnte die Auswirkung verschiedener Parameter auf das Entstehen und das Ausmaß dissipativer Strukturen an der Phasengrenze bestimmt und folglich der Einfluss dieser Phänomene auf den flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten quantifiziert werden.

Im Rahmen der Arbeit wurden zunächst mit Hilfe einer speziell entwickelten Laborapparatur zeitintensive Experimente zur Aufnahme der Selektivitätsverläufe bei unterschiedlichen Versuchsbedingungen durchgeführt. Es wurden einerseits der rein diffusive Grenzfall und andererseits Zustände mit einem stark ausgeprägten Einfluss der Grenzflächenkonvektion realisiert. Dabei wurde festgestellt, dass sich während des Stoff- und Wärmetransports unterschiedlich große Konzentrations- und/oder Temperaturgefälle in der flüssigseitigen Grenzschicht ausbilden, die die treibenden Potentiale (Dichte- bzw. Grenzflächenspannungsgradienten) für das Einsetzen von Phasengrenzkonvektionen erzeugen. Mit der Änderung der Anfangszusammensetzung der Flüssigkeit konnten zwei unterschiedliche Konfigurationen bezüglich der Konzentrationsstabilität in der flüssigen Phase – stabil, oberhalb des azeotropen Punktes und instabil, unterhalb der azeotropen Zusammensetzung – untersucht werden. Die kombinierte Wirkung von Konzentrations- und Temperaturinstabilitäten führte zu einem nochmals verbesserten Stofftransport.

Ein vorhandenes, detailliertes Modell für ebene Spalten wurde für den Fall der Verdunstung aus Schüttungen erweitert. Das Modell berücksichtigt den gekoppelten Stoff- und Wärmetransport in allen beteiligten Phasen und greift auf die *Lewis*-Analogie zurück. Mit seiner Hilfe wurden die flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten $\beta_{l,opt}$ aus den Messergebnissen abgeleitet.

Die quantitative Verbesserung des Stofftransportes infolge spontaner Grenzflächenkonvektionen, deren Intensität durch die gezielte Parametervariation verstärkt oder aber auch unterdrückt werden konnte, wurde durch den sogenannten *Enhancement*-Faktor (das Verhältnis zwischen flüssigseitigem Stoffübergangskoeffizienten im gestörten bzw. im ungestörten Zustand) erfasst. Zur Beschreibung der Triebkräfte für die auftretenden Konvektionsströme in unmittelbarer Nähe der Phasengrenze mit dimensionslosen Kennzahlen eignen sich die *Rayleigh*- und die *Marangoni*-Zahl, definiert als *Darcy*-modifizierte Größen mit Berücksichtigung der Durchlässigkeit der Schüttung. Diese Kennzahlen wurden im ungestörten Zustand (reine molekulare Diffusion) berechnet. Die neuen Definitionen der Kennzahlen erbrachten eine Abhängigkeit der treibenden Potentiale von der Partikelgröße, die in anderen Definitionen [Pos 1] nicht enthalten ist.

Das Auftreten von temperaturinstabilen Konfigurationen infolge von Verdunstungskühlung an der Phasengrenze wurde in Übereinstimmung mit der früheren Arbeit von *Post* im Experiment beobachtet. Die damit verbundene Existenz einer Temperaturdifferenz in der flüssigseitigen Grenzschicht gab eine eindeutige Erklärung für die gemessenen Selektivitätsverläufe im vermeintlich stabilen Konzentrationsbereich.

Bei Variation der Temperatur im Kern der Gasphase konnte festgestellt werden, dass mit ihrer Erhöhung die *Enhancement*-Faktoren erkennbar abnehmen, was auf reduzierte Temperaturprofile in der flüssigseitigen Grenzschicht zurückzuführen ist und einem gehinderten Stofftransport entspricht. Im Bereich oberhalb der azeotropen Zusammensetzung wurden bei vier Experimenten mit unterschiedlichen Gastemperaturen Selektivitäten gemessen, die sich mit den berechneten negativen *Ra*- und *Ma*-Werten nicht erklärten. Die Begründung für diese Diskrepanz mag in der Existenz lokaler Temperaturunterschiede, die sich mit dem verwendeten eindimensionalen Modell nicht erfassen lassen, liegen. Unter Annahme adiabater Bedingungen konnte der Einfluss dieser Sekundäreffekte auf den Stofftransport durch die maximal möglichen Temperaturdifferenzen kompensiert werden.

Bei den Experimenten mit veränderlichen Schüttungsparametern ergab sich eine eindeutige Verringerung der Selektivität der Verdunstung mit zunehmendem räumlichen Zwang. Dies wurde auf die Einzwängung der konvektiven Ausgleichsströme (Unterdrückung der Mikrokonvektion) zurückgeführt. Bei der jeweils kleinsten Partikelgröße und den drei Schüttungshöhen von 5,0 mm, 15,0 mm bzw. 25,0 mm sowie bei den Schüttungsparametern $\bar{d}_p = 0,57$

mm und $h = 25,0 mm$ im vermeintlich stabilen Bereich konnte die Selektivität sogar vollständig unterdrückt werden.

Aus den durchgeführten Untersuchungen ist generell festzuhalten, dass der Anteil der Dichtekonvektion (*Bénard*-Konvektion) eine scheinbare Dominanz an der Verbesserung des Stofftransports hat. Die berechneten *Rayleigh*-Zahlen sind in den beiden Konzentrationsbereichen – unterhalb und oberhalb des azeotropen Punktes – wesentlich größer im Vergleich zu den entsprechenden *Marangoni*-Zahlen. Grundsätzlich setzt die antreibende Wirkung der Oberflächenspannungsgradienten (*Ma*-Zahlen) unter konzentrationsinstabilen Bedingungen und kleiner Schüttungshöhe ein, aber sie ist auch in diesen Fällen anscheinend von meistens nebensächlicher Bedeutung.

Mit Hilfe der definierten dimensionslosen Kennzahlen (*Eh*-Faktor, *Ra*-, *Ma*- und *Sc*-Zahl) wurde eine einfache Korrelation für den flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten aufgestellt, welche die eigenen Messungen relativ gut wiedergeben konnte. Ihr Vorteil im Vergleich zu dem von *Post* entwickelten Ansatz liegt darin, dass sie nicht nur eine Funktion des flüssigseitigen Stoffübergangskoeffizienten in Abhängigkeit von den vorhandenen Triebkräften darstellt, sondern auch den Einfluss der Schüttungsparameter auf die Entstehung und die Verbesserung des Stofftransportes durch Mikrokonvektion erfasst. Außerdem kommt in ihr die von *Post* vorgeschlagene, recht willkürliche Dämpfungsfunktion nicht mehr vor.

Aufgabe zukünftiger Forschung kann die Untersuchung komplexerer, bzw. maßgeschneiderter Stoffsysteme (z.B. zusätzliche inerte Flüssigkeitskomponente, Tenside, die Zähigkeit erhöhende Zusätze) sein. Apparativ besteht die Möglichkeit, die Eintrittsluft mit einer der Gemischkomponenten zu beladen, um den Einfluss der Luftvorbeladung auf die Selektivität der Verdunstung zu quantifizieren. Ausgehend von den eigenen Ergebnissen scheint eine Erweiterung des Modells durch Erfassung der lokalen Temperatur- und/oder Konzentrationsunterschiede und Stabilitätsanalyse sinnvoll für eine bessere Interpretation der vorhandenen und neuer Daten. Auch prädikative, den Impulstransport einschließende Berechnungen sind denkbar. Dies kann weitreichende Folgen für die Berechnung realer Verdunstungsvorgänge und die Auslegung von industriellen Stofftrennapparaten haben.

A Anhang

A.1 Stoffwerte

Die bei der Versuchsauswertung und der numerischen Berechnung verwendeten Stoffdaten bzw. Stoffwertkorrelationen für die Versuchsmaterialien werden im folgenden aufgelistet.

A.1.1 Isopropanol (Komponentenindex: 1)

Molmasse [*Lie I*]

$$\frac{\tilde{M}_1}{\text{kg/mol}} = 60,096 \cdot 10^{-3} \quad (\text{A1.1})$$

Dichte [*Dan I*]

$$\frac{\rho_{l,1}}{\text{kg/m}^3} = 937,32 - 0,20796 (T/K) - 1,0578 \cdot 10^{-3} (T/K)^2 \quad (\text{A1.2})$$
$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

Wärmekapazität [*Lie I*]

flüssig:

$$\frac{c_{p,l,1}}{J/(kg K)} = -1292,5 + 13,018 (T/K) \quad (\text{A1.3})$$
$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

gasförmig:

$$\frac{c_{p,g,1}}{J/(kg K)} = 3483,4 - 19,011 (T/K) + 4,2050 \cdot 10^{-2} (T/K)^2 \quad (\text{A1.4})$$
$$273,15 \leq T/K \leq 373,15$$

Wärmeleitfähigkeit [Lie I]

flüssig:

$$\frac{\lambda_{l,1}}{W/(mK)} = 0,19112 - 1,7226 \cdot 10^{-4} (T/K) \quad (A1.5)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

gasförmig:

$$\frac{\lambda_{g,1}}{W/(mK)} = -4,2495 \cdot 10^{-2} + 2,7235 \cdot 10^{-4} (T/K) - 2,6667 \cdot 10^{-7} (T/K)^2 \quad (A1.6)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 373,15$$

Verdampfungsenthalpie [Lie I]

$$\frac{\Delta h_{v,1}}{J/kg} = 8,0203 \cdot 10^5 + 551,62 (T/K) - 2,5992 (T/K)^2 \quad (A1.7)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

dynamische Viskosität [Lie I]

$$\frac{\eta_{l,1}}{kg/(m s)} = -1,7372 \cdot 10^{-2} + 3,8918 \cdot 10^{-5} (T/K) + 6,2875 \cdot 10^{-7} / (T/K)^4 \quad (A1.8)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

Oberflächenspannung [Sch 6]

$$\frac{\sigma_{l,1}}{N/m} = 0,048668 - 8,5 \cdot 10^{-5} (T/K) \quad (A1.9)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

Dampfdruck [*Gme I*]

$$\ln\left(\frac{p_1^0}{Pa}\right) = A_1 - \frac{B_1}{T/K - C_1} \quad (\text{Antoine-Gleichung}) \quad (\text{A1.10})$$

mit $A_1 = 25,33577$, $B_1 = 4628,96$, $C_1 = 20,514$

Molvolumen [*Lie I*]

$$\frac{\tilde{V}_1}{\text{m}^3 / \text{mol}} = (0,7488 + 0,864 \cdot 10^{-3} (T/K - 273,15)) \cdot 10^{-4} \quad (\text{A1.11})$$

A.1.2 Wasser (Komponentenindex: 2)**Molmasse** [*Str I*]

$$\frac{\tilde{M}_2}{\text{kg} / \text{mol}} = 18,0153 \cdot 10^{-3} \quad (\text{A1.12})$$

Dichte [*Str I*]

$$\frac{\rho_{1,2}}{\text{kg} / \text{m}^3} = 1878,6 - 1,6032 (T/K) - 1,2033 \cdot 10^5 / (T/K) \quad (\text{A1.13})$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

Wärmekapazität [*Str I*]

flüssig:

$$\frac{c_{p,l,2}}{J / (\text{kg} K)} = 4917,0 - 4,6984 (T/K) + 7,5000 \cdot 10^{-3} (T/K)^2 \quad (\text{A1.14})$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

gasförmig:

$$\frac{c_{p,g,2}}{J/(kg\ K)} = 3090,1 - 9,0071 (T/K) + 1,6643 \cdot 10^{-2} (T/K)^2 \quad (A1.15)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 373,15$$

Wärmeleitfähigkeit [Str I]

flüssig:

$$\frac{\lambda_{l,2}}{W/(m\ K)} = -0,71723 + 7,2305 \cdot 10^{-3} (T/K) - 9,3486 \cdot 10^{-6} (T/K)^2 \quad (A1.16)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

gasförmig:

$$\frac{\lambda_{g,2}}{W/(m\ K)} = 2,5738 \cdot 10^{-2} - 1,1350 \cdot 10^{-4} (T/K) + 2,9964 \cdot 10^{-7} (T/K)^2 \quad (A1.17)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 373,15$$

dynamische Viskosität [Str I]

$$\frac{\eta_{l,2}}{kg/(m\ s)} = -5,1711 \cdot 10^{-3} + 1,2151 \cdot 10^{-5} (T/K) + 1,9416 \cdot 10^{-7} (T/K)^4 \quad (A1.18)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

Verdampfungsenthalpie [Str I]

$$\frac{\Delta h_{v,2}}{J/kg} = 3,1569 \cdot 10^{-6} - 2400,5 (T/K) \quad (A1.19)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

Oberflächenspannung [Sch 6]

$$\frac{\sigma_{l,1}}{N/m} = 0,080073 - 1,568 \cdot 10^{-5} (T/K) \quad (\text{A1.20})$$

$$273,15 \leq T/K \leq 353,15$$

Dampfdruck [Gme I]

$$\ln\left(\frac{p_2^0}{Pa}\right) = A_2 - \frac{B_2}{T/K - C_2} \quad (\text{Antoine-Gleichung}) \quad (\text{A1.21})$$

mit $A_2 = 23,47763$, $B_2 = 3984,92$, $C_2 = 39,724$

Molvolumen [Str I]

$$\frac{\tilde{V}_2}{m^3/mol} = (0,1797 + 0,55 \cdot 10^{-4} (T/K - 273,15)) \cdot 10^{-4} \quad (\text{A1.22})$$

A.1.3 Luft**Molmasse [Kra I]**

$$\frac{\tilde{M}_g}{kg/mol} = 28,96 \cdot 10^{-3} \quad (\text{A1.23})$$

Dichte [Kra I]

$$n_g = p/\tilde{R}T \quad (\text{A1.24})$$

$$\rho_g = n_g \tilde{M}_g \quad (\text{A1.25})$$

Wärmekapazität [Kra I]

$$\frac{c_{p,g}}{J/(kg K)} = 1034,5 - 0,21936 (T/K) + 4,2558 \cdot 10^{-4} (T/K)^2 \quad (A1.26)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 373,15$$

Wärmeleitfähigkeit [Kra I]

$$\frac{\lambda_g}{W/(m K)} = 6,5437 \cdot 10^{-4} + 9,6425 \cdot 10^{-5} (T/K) - 3,7641 \cdot 10^{-8} (T/K)^2 \quad (A1.27)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 373,15$$

kinematische Viskosität [Kra I]

$$\frac{\nu_g}{m^2/s} = -3,3709 \cdot 10^{-6} + 3,3923 \cdot 10^{-8} (T/K) + 1,0213 \cdot 10^{-10} (T/K)^2 \quad (A1.28)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 373,15$$

Prandtl-Zahl [Kra I]

$$Pr = 0,80269 - 4,5788 \cdot 10^{-4} (T/K) + 5,3940 \cdot 10^{-7} (T/K)^2 \quad (A1.29)$$

$$273,15 \leq T/K \leq 373,15$$

A.1.4 Isopropanol-Wasser-Gemisch**Molmasse**

$$\tilde{M}_l = \tilde{x}_1 \tilde{M}_1 + \tilde{x}_2 \tilde{M}_2 \quad (A1.30)$$

molare Dichte

$$n_l = \left(\tilde{x}_1 \frac{\tilde{M}_1}{\rho_{l,1}} + \tilde{x}_2 \frac{\tilde{M}_2}{\rho_{l,2}} \right)^{-1} \quad (A1.31)$$

Wärmeleitfähigkeit [Ste I]

$$\frac{\lambda_l}{W/(mK)} = x_1 \frac{\lambda_{l,1}}{W/(mK)} + x_2 \frac{\lambda_{l,2}}{W/(mK)} - a_1 \left(\frac{\lambda_{l,2}}{W/(mK)} - \frac{\lambda_{l,1}}{W/(mK)} \right) (1 - \sqrt{x_2}) x_2 \quad (\text{A1.32})$$

mit $a_1 = 1,1120$

dynamische Viskosität [Ste I]

$$\frac{\eta_l}{kg/(ms)} = \exp \left(\tilde{x}_1 \ln \eta_{l,1} + \tilde{x}_2 \ln \eta_{l,2} + \ln \eta^E \right) \quad (\text{A1.33})$$

mit

$$\begin{aligned} \eta^E &= 1 + \tilde{x}_1 \tilde{x}_2 \left(a_1 \langle T \rangle + a_2 \langle T \rangle \tilde{x}_2^3 \right) \\ a_1 \langle T \rangle &= -20,05 + 0,14524 (T/K) - 2,4730 \cdot 10^{-4} (T/K)^2 \\ a_2 \langle T \rangle &= 868,12 - 5,1715 (T/K) + 7,8100 \cdot 10^{-3} (T/K)^2 \\ &273,15 \leq T/K \leq 323,15 \end{aligned}$$

Diffusionskoeffizient [Sch 6, Pra I]

$$\frac{D_l}{m^2/s} = f \langle T \rangle g \langle \bar{x}_1 \rangle \cdot 10^{-9} \quad (\text{A1.34})$$

mit

$$\begin{aligned} \bar{x}_1 &= x_1 \tilde{V}_{l,1} \\ f \langle T \rangle &= 0,1596 + 6,209 \cdot 10^{-3} (T/K - 273,15) + 1,484 \cdot 10^{-4} (T/K - 273,15)^2 \\ &283,15 \leq T/K \leq 333,15 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} g \langle \bar{x}_1 \rangle &= 2,42944 - 3,7052 \bar{x}_1 - 16,2209 \bar{x}_1^2 + 27,3779 \bar{x}_1^3 + 38,4209 \bar{x}_1^4 - 60,0785 \bar{x}_1^5 \\ &0 \leq \bar{x}_1 \leq 0,47 \end{aligned}$$

$$g \langle \bar{x}_1 \rangle = -12,112 + 93,917 \bar{x}_1 - 277,868 \bar{x}_1^2 + 408,678 \bar{x}_1^3 - 301,866 \bar{x}_1^4 + 91,392 \bar{x}_1^5$$

$$0,47 \leq \bar{x}_1 \leq 1,0$$

Oberflächenspannung [Blu 1]

$$\frac{\sigma_l}{N/m} = \left(b_1 \sigma_1^{1/4} + b_2 \sigma_2^{1/4} \right)^4 \quad (\text{A1.35})$$

mit

$$c_1 = \lg \left(\frac{b_{22}^q}{b_{11}} \right)$$

$$c_2 = \lg \left(\frac{b_2^q}{b_1} \right) = c_1 + c_3$$

$$c_3 = 0,441 \frac{q}{T/K} \left(\frac{\sigma_1 \nu_{l,1}^{2/3}}{q} - \sigma_2 \nu_{l,2}^{2/3} \right)$$

$$1 = b_1 + b_2$$

$$b_{11} = \frac{\tilde{x}_1 \nu_{l,1}}{\tilde{x}_1 \nu_{l,1} + \tilde{x}_2 \nu_{l,2}}$$

$$b_{22} = \frac{\tilde{x}_2 \nu_{l,2}}{\tilde{x}_1 \nu_{l,1} + \tilde{x}_2 \nu_{l,2}}$$

$$\nu_{l,i} = \frac{\tilde{M}_i}{\rho_{l,i}}$$

$$q = 3$$

Die Bestimmung der Koeffizienten b_1 und b_2 ist nur numerisch möglich. Mittels Intervallschachtelverfahren wird zuerst b_1 nach der Gleichung

$$0 = b_1 \cdot 10^{c_1+c_3} - (1 - b_1)^q$$

iterativ bestimmt. Anschließend ergibt sich b_2 zu

$$b_2 = 1 - b_1.$$

Aktivitätskoeffizient nach UNIQUAC [Gme I]

$$\ln \gamma_i = \ln \gamma_i^{(C)} + \ln \gamma_i^{(R)} \quad (\text{A1.36})$$

mit

$$\ln \gamma_i^{(C)} = \ln \frac{\phi_i}{\tilde{x}_i} + \frac{z}{2} q_i \ln \frac{\Theta_i}{\phi_i} + \phi_j \left(\ell_i - \frac{r_i}{r_j} \ell_j \right)$$

$$\ln \gamma_i^{(R)} = -q_i \ln(\Theta_i + \Theta_j \tau_{ji}) + \Theta_j q_i \left(\frac{\tau_{ji}}{\Theta_i + \Theta_j \tau_{ji}} - \frac{\tau_{ij}}{\Theta_j + \Theta_i \tau_{ij}} \right)$$

$$\ell_i = \frac{z}{2} (r_i - q_i) - (r_i - 1)$$

$$\tau_{ij} = \exp \left(- \frac{U_{ij}}{\tilde{R}(T/K)} \right)$$

$$z = 10$$

$$\Theta_i = \frac{\tilde{x}_i q_i}{\tilde{x}_1 q_1 + \tilde{x}_2 q_2}$$

$$\phi_i = \frac{\tilde{x}_i r_i}{\tilde{x}_1 r_1 + \tilde{x}_2 r_2}$$

$$\frac{U_{12}}{J/mol} = 1370,9384 \quad r_1 = 2,7791 \quad q_1 = 2,5080$$

$$\frac{U_{21}}{J/mol} = 269,8007 \quad r_2 = 0,9200 \quad q_2 = 1,4000$$

Dabei ist „i“ die eine und „j“ die jeweils andere Komponente.

A.1.5 Isopropanol-Luft-Gemisch

Binärer Diffusionskoeffizient [Gil 1]

$$\frac{D_{g,1}}{m^2/s} = 0,859 \cdot 10^{-5} \left(\frac{1}{p/\text{bar}} \right) \left(\frac{T/K}{273,15} \right)^{1,91} \quad (\text{A1.37})$$

A.1.6 Wasser-Luft-Gemisch

Binärer Diffusionskoeffizient [Thu 1]

$$\frac{D_{g,2}}{m^2/s} = 2,281 \cdot 10^{-5} \left(\frac{1}{p/\text{bar}} \right) \left(\frac{T/K}{273,15} \right)^{1,80} \quad (\text{A1.38})$$

A.2 Ableitung der Phasengrenztemperatur nach Post [Pos 1]

Bei der Formulierung der Energiebilanzen wird der laterale Stoff- und Wärmetransport als vernachlässigbar klein eingeschätzt und damit nicht berücksichtigt, und es wird angenommen, dass die örtlichen Änderungen der Gasbeladungen und Gastemperaturen durch die Stoff- und

Wärmeströme größer als deren zeitlichen Änderungen sind. Somit lautet die Energiebilanz für die Gasphase

$$\dot{N}_g (\tilde{h}_{g,e} - \tilde{h}_{g,a}) + \sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{h}_{g,i} \langle T_{Ph} \rangle - \dot{Q}_g = 0 \quad (\text{A2.1})$$

und für die flüssigseitige Grenzschicht

$$\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{h}_{l,i} \langle T_{l,B} \rangle + \dot{Q}_l = \sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{h}_{g,i} \langle T_{Ph} \rangle - \dot{Q}_g. \quad (\text{A2.2})$$

Nach Ersetzen der Enthalpien in Gleichung (A2.2) durch die molare Verdampfungsenthalpie $\Delta\tilde{h}_{v,i}$ der Komponente i und die molare spezifische Wärmekapazität $\tilde{c}_{p,l,i}$ der Flüssigkeit erhält man die Beziehung

$$\dot{Q}_l = \sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \left[\Delta\tilde{h}_{v,i} \langle T_{Ph} \rangle + \tilde{c}_{p,l,i} (T_{Ph} - T_{l,B}) \right] - \dot{Q}_g \quad (\text{A2.3})$$

mit

$$\Delta\tilde{h}_{v,i} \langle T_{Ph} \rangle = \tilde{h}_{g,i} \langle T_{Ph} \rangle - \tilde{h}_{l,i} \langle T_{Ph} \rangle \quad (\text{A2.4})$$

und

$$\tilde{c}_{p,l,i} (T_{Ph} - T_{l,B}) = \tilde{h}_{l,i} \langle T_{Ph} \rangle - \tilde{h}_{l,i} \langle T_{l,B} \rangle. \quad (\text{A2.5})$$

Der kinetische Ansatz für die Wärmeübertragung in der Gasphase lautet

$$\dot{Q}_g = \alpha_g K_{A,g} A_{Ph} (T_{g,B} - T_{Ph}) \quad (\text{A2.6})$$

mit der *Ackermann*-Korrektur

$$K_{A,g} \langle \bar{T}_g \rangle = \frac{\Phi_g}{(\exp \Phi_g - 1)}, \quad (\text{A2.7})$$

der gaseitigen Phasenumwandlungszahl

$$\Phi_g = \frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,g,i} \langle \bar{T}_g \rangle}{\alpha_g \langle \bar{T}_g \rangle A_{Ph}} \quad (\text{A2.8})$$

sowie der mittleren Temperatur in der gaseitigen Grenzschicht

$$\bar{T}_g = \frac{T_{g,B} + T_{Ph}}{2}. \quad (\text{A2.9})$$

Der kinetische Ansatz für die Wärmeübertragung in der flüssigseitigen Grenzschicht lautet

$$\dot{Q}_l = \alpha_l K_{A,l} A_{Ph} (T_{l,B} - T_{Ph}), \quad (\text{A2.10})$$

wobei die *Ackermann*-Korrektur zu

$$K_{A,l} = \frac{\Phi_{l,1}}{(\exp \Phi_{l,1} - 1)} \quad (\text{A2.11})$$

definiert ist, mit der flüssigseitigen Phasenumwandlungszahl

$$\Phi_{l,1} = \frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,l,i} \langle \bar{T}_l \rangle}{\alpha_l A_{Ph}} \quad (\text{A2.12})$$

bestimmt bei der mittleren Temperatur in der flüssigseitigen Grenzschicht

$$\bar{T}_l = \frac{T_{l,B} + T_{Ph}}{2}. \quad (\text{A2.13})$$

Durch Einsetzen der kinetischen Ansätze der beiden Phasen (Gln (A2.6) und (A2.10)) in die Gl. (A2.3) resultiert die Bestimmungsgleichung für die Temperatur an der Phasengrenze

$$T_{Ph} = \frac{\left(\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,l,i} + \alpha_l A_{Ph} K_{A,l} \right) T_{l,B} + \alpha_g A_{Ph} K_{A,g} T_{g,B} - \sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \Delta \tilde{h}_{v,i}}{\alpha_l A_{Ph} K_{A,l} + \alpha_g A_{Ph} K_{A,g} + \sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,l,i}}. \quad (\text{A2.14})$$

Für kleine Konzentrationen der flüchtigen Komponenten streben die Korrekturfaktoren gegen eins. Dementsprechend kann die *Ackermann*-Korrektur bei moderaten Temperaturen ($T \ll T_{Siede}$) vernachlässigt werden. Damit vereinfacht sich die Gl. (A2.14) zu

$$T_{Ph} = \frac{\left(\frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,l,i}}{\alpha_l A_{Ph}} + 1 \right) T_{l,B} + \frac{\alpha_g}{\alpha_l} T_{g,B} - \frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \Delta \tilde{h}_{v,i}}{\alpha_l A_{Ph}}}{\frac{\sum_{i=1}^2 \dot{N}_i \tilde{c}_{p,l,i}}{\alpha_l A_{Ph}} + \frac{\alpha_g}{\alpha_l} + 1}, \quad (\text{A2.15})$$

entsprechend Gl. (2.26).

A.3 Darstellung von Korngrößenverteilungen

Im folgenden werden die Verteilungskurven für die fünf verwendeten Partikelfractionen dargestellt.

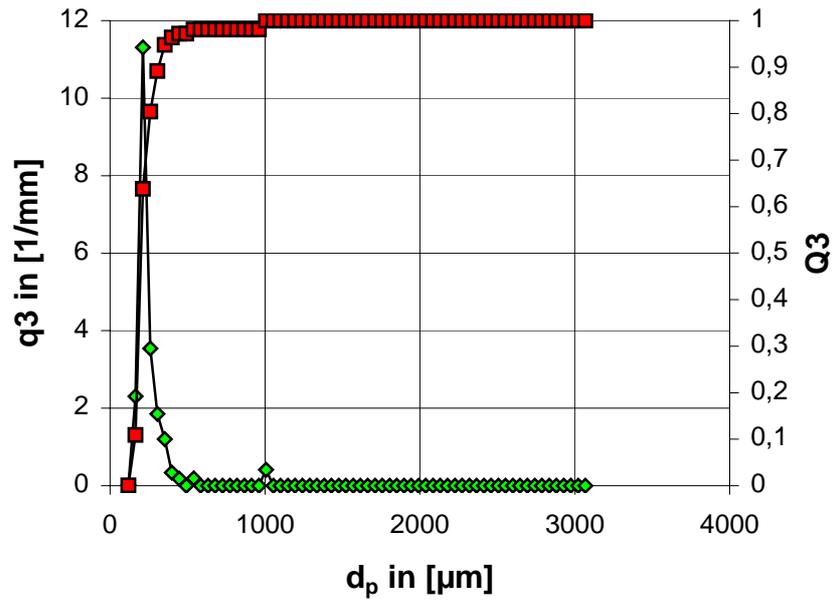


Abbildung A3.1: Verteilungskurven der Fraktion $d_p = [0,2-0,3]$ mm; (d_p – die Partikelgröße, q_3 – die relative Häufigkeit, Q_3 – die Verteilungssumme).

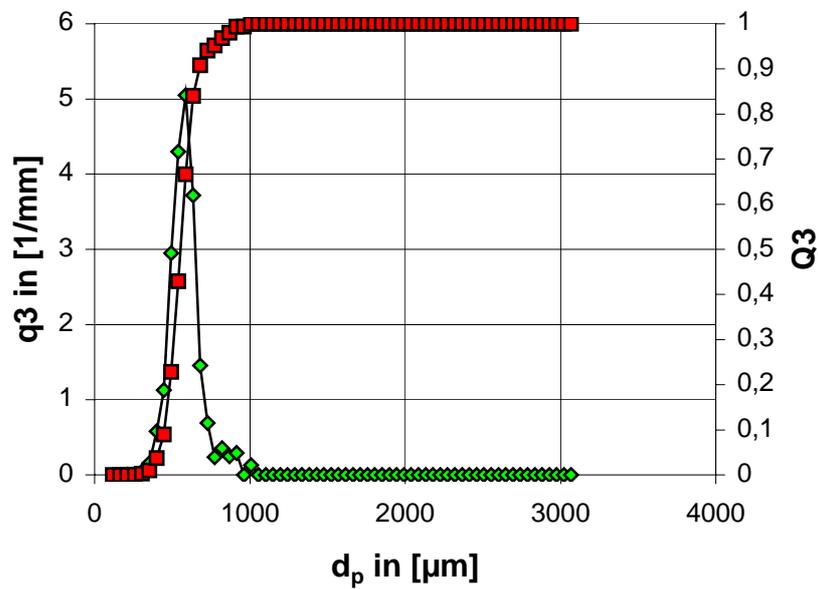


Abbildung A3.2: Verteilungskurven der Fraktion $d_p = [0,4-0,6]$ mm; (q_3 – die relative Häufigkeit, Q_3 – die Verteilungssumme).

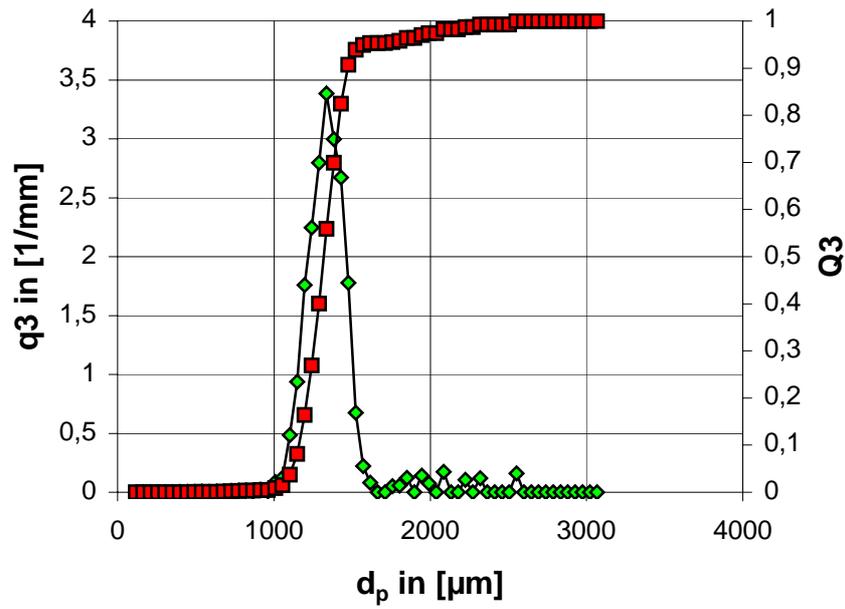


Abbildung A3.3: Verteilungskurven der Fraktion $d_p = [1,25-1,55]$ mm; (d_p – die Partikelgröße, q_3 – die relative Häufigkeit, Q_3 – die Verteilungssumme).

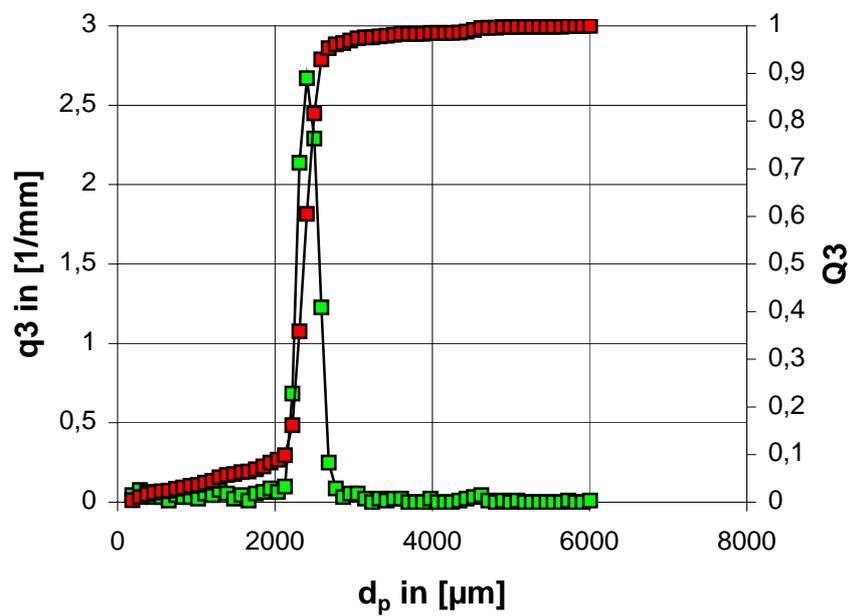


Abbildung A3.4: Verteilungskurven der Fraktion $d_p = [2,3-2,6]$ mm; (q_3 – die relative Häufigkeit, Q_3 – die Verteilungssumme).

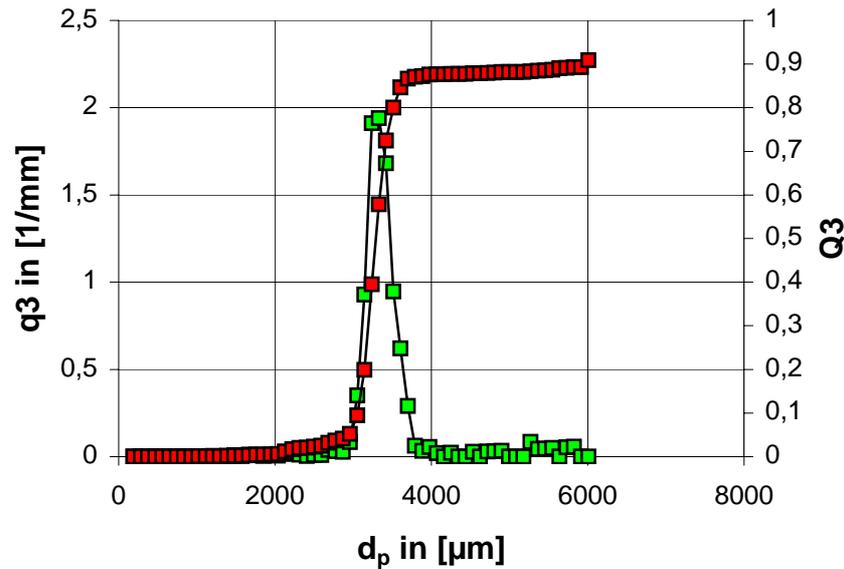


Abbildung A3.5: Verteilungskurven der Fraktion $d_p = [3,3-3,6]$ mm; (d_p – die Partikelgröße, q_3 – die relative Häufigkeit, Q_3 – die Verteilungssumme).

A.4 Umlinearisation / Querempfindlichkeit

Da das vorhandene IR-Spektrometer BINOS[®] 1000 nur für Ethanol einen realen Wasserwert lieferte, musste es auf die zu untersuchenden Messsubstanzen (Isopropanol bzw. Wasser) umlinearisiert werden, um die sich ergebende Querempfindlichkeit in Bezug auf Wasser zu erfassen und in dem entsprechenden Wert zu berücksichtigen. Zu diesem Zweck wurden folgende Untersuchungen mit dem vorhandenen Messgerät BINOS[®] 1000 durchgeführt:

1. Messung der Beladung mit den Reinstoffen Isopropanol und Wasser und Vergleich mit der berechneten Beladung für Ethanol und Wasser.
2. Erweiterung des Messbereiches zur Bestimmung größerer Konzentrationen; (die ab Werk ablesbaren Messbereiche von 0 bis 3 Vol. % bei Ethanol und 0 bis 5 Vol. % bei Wasser wurden verdoppelt).
3. Mischung von beladener und unbeladener Luft, um Aussagen über minimale Volumenströme und über Mischkonzentrationen zu gewinnen.
4. Verdunstungsversuche zur Ermittlung der Messgenauigkeit der eingestellten Bereiche über einen längeren Zeitraum und Vergleich mit berechneten Werten.
5. Umlinearisation von Ethanol- zu Isopropanolkonzentrationen.

6. Ermittlung der Querempfindlichkeit von Isopropanol auf Wasser, (bei der Messung mit reinem Isopropanol zeigt das IR-Spektrometer Wasserkonzentrationen an), und Trennung vom realen Wasserwert.
7. Messung der Beladungen des binären Gemisches bei unterschiedlichen Versuchsanordnungen und Vergleich mit berechneten Werten.
8. Erstellung der Umrechnungsanleitung und deren Beweis.

Abbildung A4.1 zeigt die ermittelten Kurven für vollständige Sättigung von Ethanol und Isopropanol sowie von dem querempfindlichkeitsbedingten Wasser-Wert bei variablem Temperaturverlauf.

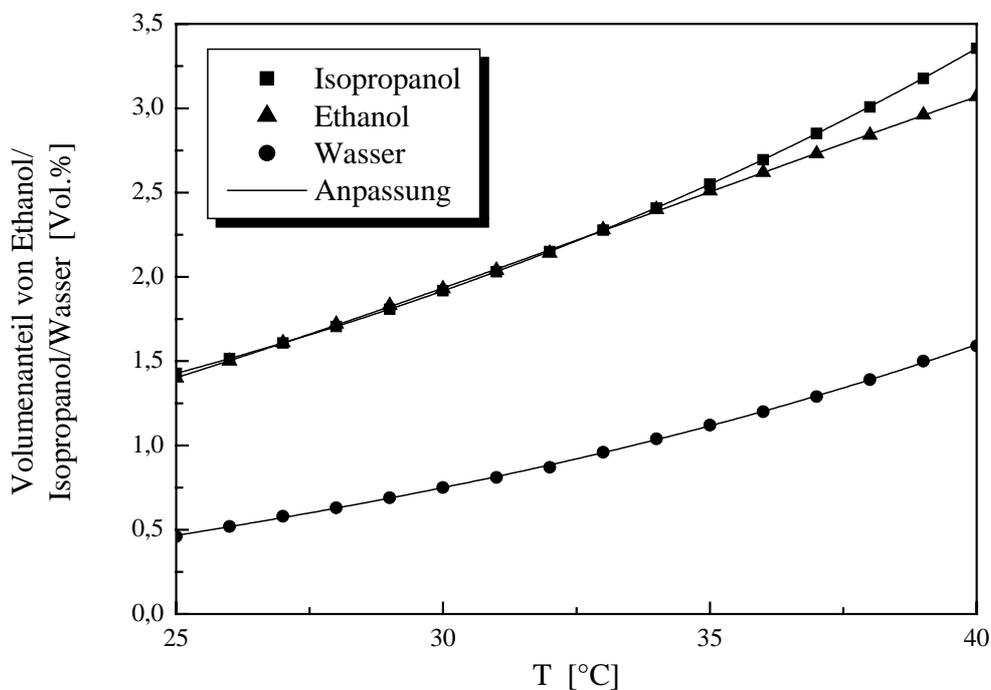


Abbildung A4.1: Umlinearisierung bei vollständiger Sättigung für Temperaturen von 25 bis 40 °C.

Durch die Anpassung der Messdaten in Abb. A4.1 wurde die Abhängigkeit der Volumenanteile der drei Komponenten Isopropanol, Ethanol bzw. Wasser von der Temperatur in folgenden Ausdrücken zusammengefasst:

$$\frac{\tilde{y}_{ISO}}{Vol.\%} = 8,0 \cdot 10^{-8} (T/^{\circ}C)^6 - 1,0 \cdot 10^{-5} (T/^{\circ}C)^5 + 1,2 \cdot 10^{-3} (T/^{\circ}C)^4 - 5,0 \cdot 10^{-2} (T/^{\circ}C)^3 + 1,1965 (T/^{\circ}C)^2 - 15,072 (T/^{\circ}C) + 79,231 \quad (A4.1)$$

$$\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} = 5,0 \cdot 10^{-7} (T/^{\circ}C)^6 - 9,0 \cdot 10^{-5} (T/^{\circ}C)^5 + 7,0 \cdot 10^{-3} (T/^{\circ}C)^4 - 2,9 \cdot 10^{-1} (T/^{\circ}C)^3 + 6,6928 (T/^{\circ}C)^2 - 82,134 (T/^{\circ}C) + 417,23 \quad (A4.2)$$

$$\frac{\tilde{y}_{H_2O}}{Vol.\%} = -3,0 \cdot 10^{-7} (T/^{\circ}C)^6 + 7,0 \cdot 10^{-5} (T/^{\circ}C)^5 - 5,5 \cdot 10^{-3} (T/^{\circ}C)^4 + 2,4 \cdot 10^{-1} (T/^{\circ}C)^3 - 5,8536 (T/^{\circ}C)^2 + 76,222 (T/^{\circ}C) - 411,91. \quad (A4.3)$$

Eine Umlinearisierung für vollständige Sättigung war aber für die angestrebte Gasanalyse bei einer festgelegten Temperatur mit unvollständiger Sättigung nicht ausreichend. Daher wurde genauso eine Gasanalyse des binären Isopropanol-Wasser-Gemisches bei einer Temperatur von 30 °C und unvollständiger Sättigung durchgeführt. Die dabei gewonnenen Messergebnisse sowie die ermittelten Umlinearisierungskurven sind in Abb. A4.2 dargestellt.

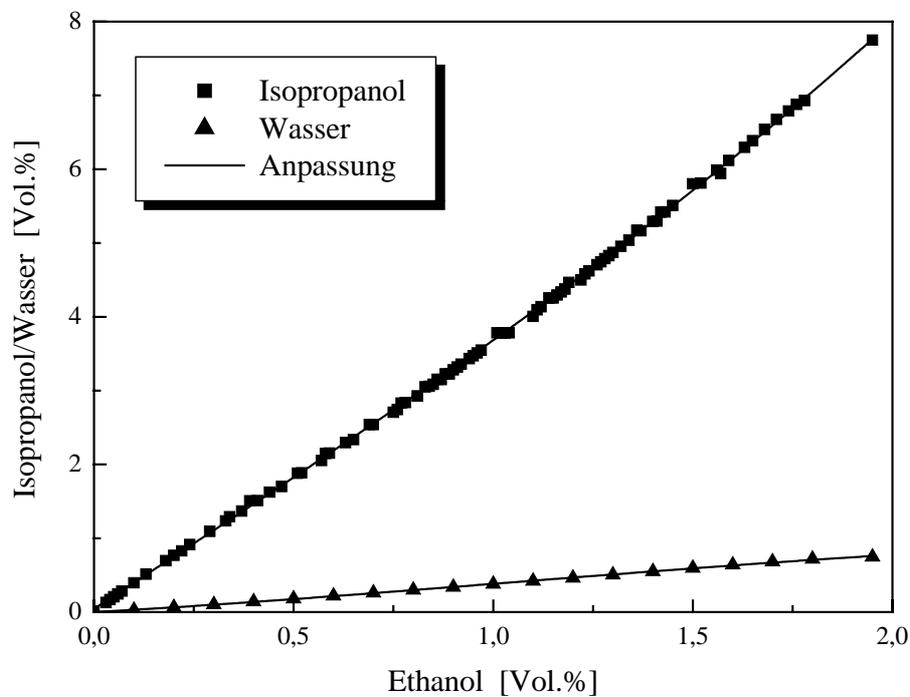


Abbildung A4.2: Umlinearisierung für Konzentrationen von Isopropanol zwischen 0 und vollständiger Sättigung bei einer Temperatur von 30 °C.

Durch die Anpassung der Messergebnisse ergeben sich die Isopropanol- und Wasser-Konzentrationen nach folgenden Umrechnungsgleichungen:

$$\begin{aligned} \frac{\tilde{y}_{ISO}}{Vol.\%} = & 3,8 \cdot 10^{-2} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^6 - 1,8 \cdot 10^{-1} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^5 + 1,15 \cdot 10^{-1} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^4 + \\ & 6,7 \cdot 10^{-1} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^3 - 9,3 \cdot 10^{-1} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^2 + 3,9 \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right) + 0,0115 \end{aligned} \quad (A4.4)$$

$$\begin{aligned} \frac{\tilde{y}_{H_2O}}{Vol.\%} = & -1,8 \cdot 10^{-2} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^6 + 2,5 \cdot 10^{-2} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^5 + 1,34 \cdot 10^{-1} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^4 - \\ & 3,5 \cdot 10^{-1} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^3 + 3,1 \cdot 10^{-1} \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right)^2 + 0,28 \left(\frac{\tilde{y}_{Ethanol}}{Vol.\%} \right) - 0,0034. \end{aligned} \quad (A4.5)$$

Mit Hilfe beider Gleichungen wurde in der Auswertung die Querempfindlichkeit von Isopropanol auf den Wasserkanal und somit auf den Wasser-Wert berücksichtigt. Wasser hatte keinen Einfluss auf den Isopropanol-Wert.

A.5 Dichtemessung

Wie bereits im Abschnitt 3.2.1 erwähnt, erfolgte die Messung der Dichte des Gemisches Isopropanol/Wasser mittels eines digitalen Dichtemessgeräts der Firma *Chempro-Paar*. Das Messverfahren benutzt einen U-förmig gebogenen Schwinger, der mit der zu untersuchenden Gemischprobe gefüllt ist und auf elektronischem Wege zu einer ungedämpften harmonischen Schwingung mit der Eigenfrequenz

$$f = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{c}{\rho_l V_{BS} + M_{BS}}} \quad (A5.1)$$

angeregt wird. Hierbei sind c die Kraftkonstante des Oszillators, ρ_l die Dichte der zu untersuchenden Flüssigkeit, V_{BS} das für die Schwingung relevante Volumen des Biegeschwingers und M_{BS} die Masse des Biegeschwingers. Da die Größen V_{BS} und M_{BS} konstant sind, ist die

Eigenfrequenz ein Maß für die Dichte des Füllmediums. Die Messgröße, die das Gerät liefert, ist allerdings nicht die Eigenfrequenz f , sondern die ihr umgekehrt proportionale Schwingungsdauer t

$$t = 2\pi \sqrt{\frac{\rho_l V_{BS} + M_{BS}}{c}}. \quad (\text{A5.2})$$

Für die daraus resultierende Dichte der Flüssigkeit gilt

$$\rho_l = A 4\pi^2 \frac{\rho_l V_{BS} + M_{BS}}{c} - B \quad (\text{A5.3})$$

mit

$$A = \frac{c}{4\pi^2 V_{BS}} \quad (\text{A5.4})$$

und

$$B = \frac{M_{BS}}{V_{BS}}. \quad (\text{A5.5})$$

A und B sind Apparatkonstanten eines individuellen Schwingers. Sie werden aus zwei separaten Messungen der Periodendauer des Schwingers t (Kalibrierung), gefüllt mit Substanzen bekannter Dichte (trockene Luft und destilliertes Wasser), bestimmt.

Mit Hilfe einer von *Post* [*Pos 1*] aufgenommenen Eichkurve lassen sich die Molanteile $\tilde{x}_{i,B}$ aus den gemessenen Dichten berechnen zu

$$\begin{aligned} \tilde{x}_{1,B} = & 2,8058 \cdot 10^{-10} (\rho_l / \text{kg m}^{-3})^4 - 1,1051 \cdot 10^{-6} (\rho_l / \text{kg m}^{-3})^3 + \\ & 1,6328 \cdot 10^{-3} (\rho_l / \text{kg m}^{-3})^2 - 1,0749 (\rho_l / \text{kg m}^{-3}) + 2,6659 \cdot 10^2. \end{aligned} \quad (\text{A5.6})$$

A.6 Übersicht über die durchgeführten Versuche

An dieser Stelle werden alle Versuche aufgeführt, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt und ausgewertet wurden. Jede Tabelle enthält Informationen über die festgestellten und variierten Betriebsparameter sowie die entsprechenden Versuchsnummern. Ausführliche Mess-
tabellen, die auch die gemessenen Temperaturen und die bei jedem Teilversuch zugegebenen Flüssigkeitsmengen enthalten, sind am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg erhältlich.

Betriebsparameter:										
Partikeldurchmesser:		$\bar{d}_p = 0,23 \text{ mm}$			Gasvolumenstrom:		$\dot{V}_{g,0} = 8,0 \text{ l/min}$			
Gastemperatur:		$T_{g,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$			Flüssigkeitstemperatur:		$T_{l,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$			
Versuch	x07Tg30h5d0.2V8									
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,7									
Ψ [-]	0,359									
h [mm]	t [h]	ρ_l [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_l/N_{l,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]					
5	0,0	810,18	0,7000	1,0000	U					
	11,0	810,15	0,7000	0,7000	N					
	21,0	810,13	0,7000	0,5212	S					
	30,0	810,16	0,7000	0,4069	E					
	35,0	810,15	0,7000	0,3530	L					
	44,0	810,17	0,7000	0,2731	E					
	55,5	810,14	0,7000	0,2108	K					
	68,0	810,19	0,7000	0,1604	T					
	78,5	810,16	0,7000	0,1282	I					
	90,0	810,18	0,7000	0,1040	V					
	101,0	810,15	0,7000	0,0815						
	111,0	810,17	0,7000	0,0628						
	122,0	810,18	0,7000	0,0438						
Versuch	x03Tg30h15d0.2V8					x07Tg30h15d0.2V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,356					0,353				
h [mm]	t [h]	ρ_l [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_l/N_{l,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_l [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_l/N_{l,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
15	0,0	881,52	0,3000	1,0000	1,5806	0,0	810,18	0,7000	1,0000	U
	9,0	887,53	0,2787	0,8345	1,5662	11,0	810,15	0,7000	0,7000	N
	20,0	896,86	0,2477	0,6597	1,4925	21,0	810,13	0,7000	0,5209	S
	31,0	907,25	0,2162	0,5295	1,3669	29,0	810,16	0,7000	0,4069	E
	41,0	916,30	0,1908	0,4474	1,2404	36,0	810,15	0,7000	0,3532	L
	52,0	925,31	0,1668	0,3660	1,1107	47,0	810,17	0,7000	0,2730	E
	64,0	933,08	0,1468	0,3012	1,0024	58,0	810,14	0,7000	0,2113	K
	75,0	939,52	0,1309	0,2509	0,9208	70,5	810,19	0,7000	0,1608	T
	87,0	945,26	0,1168	0,2054	0,8546	81,0	810,16	0,7000	0,1288	I
	99,0	950,00	0,1055	0,1673	0,8077					V
	111,5	953,76	0,0965	0,1405	0,7751					
	121,5	956,44	0,0903	0,1217	0,7555					
	135,0	959,80	0,0823	0,0966	0,7342					
	145,0	961,93	0,0774	0,0838	0,7235					

Versuch	x03Tg30h25d0.2V8					x07Tg30h25d0.2V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,354					0,356				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
25	0,0	881,96	0,3000	1,0000	0,8136	0,0	810,18	0,7000	1,0000	U
	8,0	883,37	0,2950	0,8587	0,7066	11,0	810,15	0,7000	0,7000	N
	18,5	886,01	0,2858	0,6907	0,6392	22,0	810,13	0,7000	0,5499	S
	30,5	889,86	0,2724	0,4875	0,5867	32,0	810,16	0,7000	0,4295	E
	42,5	893,83	0,2595	0,3531	0,5504	38,0	810,15	0,7000	0,3658	L
	52,5	898,48	0,2446	0,2363	0,5011	46,0	810,17	0,7000	0,2695	E
	66,5	903,17	0,2302	0,1407	0,4805	58,0	810,14	0,7000	0,1920	K
	79,5	906,73	0,2198	0,0916	0,4421	69,0	810,19	0,7000	0,1345	T
	90,5	910,11	0,2100	0,0512	0,3355	79,0	810,16	0,7000	0,1005	I
	102,5	912,86	0,2021	0,0300	0,2808					V
	115,0	916,27	0,1927	0,0093	0,2075					

Tabelle A6.1: Ergebnisse der Messungen des Verdunstungsverlaufes für die kleinste verwendete Partikelgröße ($\bar{d}_p = 0,23$ mm) und unterschiedliche Schüttungshöhen bei konstanten und gleichen Temperaturen im Kern der beiden Phasen sowie zwei verschiedenen Anfangskonzentrationen.

Betriebsparameter:											
Partikeldurchmesser:		$\bar{d}_p = 0,57 \text{ mm}$			Gasvolumenstrom:		$\dot{V}_{g,0} = 8,0 \text{ l/min}$				
Gastemperatur:		$T_{g,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$			Flüssigkeitstemperatur:		$T_{l,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$				
Versuch	x07Tg30h5d0.6V8										
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,7										
Ψ [-]	0,358										
h [mm]	t [h]	ρ_l [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_l/N_{l,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_l [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_l/N_{l,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	
5	0,0	810,33	0,7000	1,0000	0,7659	0,0	810,76	0,7000	1,0000	0,6637	
	9,0	810,01	0,7025	0,8147	0,7702	11,0	810,48	0,7025	0,6713	0,6692	
	21,0	809,68	0,7051	0,5153	0,7746	22,0	810,26	0,7042	0,4694	0,6729	
	32,0	809,34	0,7085	0,3792	0,7804	33,0	810,06	0,7059	0,3406	0,6766	
	44,0	808,92	0,7119	0,2435	0,7862	45,0	809,83	0,7084	0,2061	0,6821	
	55,0	808,52	0,7153	0,1635	0,7920	57,0	809,48	0,7110	0,1327	0,6878	
	67,5	808,03	0,7197	0,1067	0,7997	69,5	809,17	0,7135	0,0776	0,6933	
	79,0	807,60	0,7232	0,0750	0,8059	79,5	808,86	0,7161	0,0462	0,6989	
	90,0	807,21	0,7267	0,0486	0,8121	91,5	808,49	0,7195	0,0250	0,7062	
	102,0	806,79	0,7302	0,0328	0,8184	102,5	808,21	0,7221	0,0137	0,7117	
	113,5	806,36	0,7337	0,0213	0,8248	113,5	807,93	0,7247	0,0074	0,7172	
	125,5	805,94	0,7382	0,0130	0,8332	124,5	807,64	0,7274	0,0040	0,7229	
	138,0	805,46	0,7417	0,0089	0,8399						
	149,0	805,03	0,7462	0,0060	0,8487						
Versuch	x03Tg30h15d0.6V8					x07Tg30h15d0.6V8					
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7					
Ψ [-]	0,359					0,356					
h [mm]	t [h]	ρ_l [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_l/N_{l,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_l [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_l/N_{l,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	
15	0,0	882,18	0,3000	1,0000	3,0869	0,0	810,76	0,7000	1,0000	0,6637	
	9,0	887,15	0,2823	0,8754	2,9076	11,0	810,48	0,7025	0,6713	0,6692	
	20,0	895,31	0,2554	0,7392	2,5791	22,0	810,26	0,7042	0,4694	0,6729	
	31,0	906,94	0,2200	0,6029	2,1252	33,0	810,06	0,7059	0,3406	0,6766	
	43,0	919,79	0,1839	0,4832	1,7175	45,0	809,83	0,7084	0,2061	0,6821	
	54,0	930,66	0,1555	0,4012	1,4647	57,0	809,48	0,7110	0,1327	0,6878	
	66,0	940,30	0,1316	0,3362	1,2985	69,5	809,17	0,7135	0,0776	0,6933	
	77,0	947,87	0,1132	0,2863	1,1923	79,5	808,86	0,7161	0,0462	0,6989	
	89,0	954,54	0,0974	0,2417	1,1088	91,5	808,49	0,7195	0,0250	0,7062	
	100,0	958,75	0,0873	0,2126	1,0553	102,5	808,21	0,7221	0,0137	0,7117	
	113,0	963,17	0,0770	0,1805	0,9977	113,5	807,93	0,7247	0,0074	0,7172	
	123,0	966,00	0,0704	0,1599	0,9578	124,5	807,64	0,7274	0,0040	0,7229	
	136,0	969,00	0,0635	0,1418	0,9125						

Versuch	x03Tg30h25d0.6V8					x07Tg30h25d0.6V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,356					0,356				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
25	0,0	881,68	0,3000	1,0000	1,4288	0,0	810,18	0,7000	1,0000	U
	10,0	888,03	0,2778	0,8075	1,3427	12,0	810,15	0,7000	0,7000	N
	21,0	897,38	0,2469	0,6138	1,2723	23,0	810,13	0,7000	0,4949	S
	33,0	910,65	0,2072	0,4063	1,1994	35,0	810,16	0,7000	0,3866	E
	44,25	922,91	0,1739	0,2912	1,1368	47,0	810,15	0,7000	0,3356	L
	54,0	933,06	0,1476	0,2286	1,0880	58,0	810,17	0,7000	0,2563	E
	68,0	942,51	0,1244	0,1680	1,0425	69,5	810,14	0,7000	0,1995	K
	82,0	952,11	0,1013	0,1269	0,9827	82,0	810,19	0,7000	0,1480	T
	96,5	959,08	0,0848	0,0886	0,9173	92,0	810,16	0,7000	0,1160	I
	105,5	964,96	0,0710	0,0653	0,8362	103,0	810,15	0,7000	0,0799	V
	115,0	971,75	0,0593	0,0450	0,7395	115,0	810,18	0,7000	0,0694	

Tabelle A6.2: Ergebnisse der Messungen des Verdunstungsverlaufes für die verwendete Partikelgröße von 0,57 mm und unterschiedliche Schüttungshöhen bei konstanten und gleichen Temperaturen im Kern der beiden Phasen sowie zwei verschiedenen Anfangskonzentrationen.

Betriebsparameter:										
Partikeldurchmesser:		$\bar{d}_p = 1,3 \text{ mm}$				Gasvolumenstrom:		$\dot{V}_{g,0} = 8,0 \text{ l/min}$		
Gastemperatur:		$T_{g,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$				Flüssigkeitstemperatur:		$T_{l,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$		
Versuch	x03Tg30h5d1.3V8					x07Tg30h5d1.3V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,354					0,356				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
5	0,0	881,61	0,3000	1,0000	6,0223	0,0	810,49	0,7000	1,0000	1,0279
	6,0	889,03	0,2740	0,8227	5,7764	11,0	810,04	0,7042	0,7933	1,0371
	16,0	906,26	0,2195	0,6227	5,3272	22,0	809,31	0,7102	0,5750	1,0498
	27,0	928,15	0,1597	0,4633	4,7798	33,0	808,61	0,7162	0,4415	1,0623
	39,0	946,01	0,1155	0,3835	4,2183	44,0	808,13	0,7205	0,3460	1,0711
	50,5	956,86	0,0896	0,3293	3,7884	56,0	807,42	0,7266	0,2548	1,0835
	62,5	964,67	0,0713	0,2914	3,4279	65,5	806,82	0,7319	0,2023	1,0943
	74,5	970,42	0,0580	0,2533	3,1325	77,5	806,07	0,7381	0,1512	1,1070
	85,5	974,92	0,0476	0,2278	2,8801	88,5	805,43	0,7443	0,1053	1,1199
	99,0	980,23	0,0352	0,1881	2,5531	99,5	804,89	0,7488	0,0787	1,1295
	112,5	983,09	0,0287	0,1649	2,3697	110,5	804,11	0,7561	0,0536	1,1455
	132,5	990,64	0,0113	0,1123	1,8359	120,5	803,29	0,7634	0,0371	1,1642
						132,0	802,53	0,7707	0,0234	1,1795
					143,0	801,79	0,7772	0,0168	1,1958	
Versuch	x03Tg30h15d1.3V8					x07Tg30h15d1.3V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,378					0,356				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
15	0,00	882,09	0,3000	1,0000	2,4546	0,0	811,06	0,7000	1,0000	0,7529
	8,00	889,87	0,2727	0,8320	2,3919	8,0	810,84	0,7026	0,8034	0,7573
	20,75	907,83	0,2169	0,5903	2,2812	16,5	810,51	0,7051	0,6764	0,7616
	30,75	925,73	0,1679	0,4484	2,1616	31,5	809,97	0,7093	0,3763	0,7687
	43,25	943,66	0,1229	0,3519	2,0568	44,0	809,36	0,7144	0,22770,	0,7775
	54,25	954,61	0,0968	0,2944	1,9286	56,0	808,71	0,7204	1087	0,7879
	66,25	963,02	0,0770	0,2447	1,7943	69,0	808,00	0,7275	0,0530	0,8005
	77,25	969,66	0,0614	0,2084	1,6700	81,0	806,77	0,7364	0,0201	0,8168
	89,50	974,86	0,0494	0,1704	1,5674	93,0	806,12	0,7449	0,0078	0,8331
						105,0	804,66	0,7527	0,0030	0,8488
						118,5	804,03	0,7608	0,0013	0,8661
						130,5	802,71	0,7711	0,0004	0,8897
						139,0	802,37	0,7744	0,0003	0,8978

Versuch	x03Tg30h25d1.3V8					x07Tg30h25d1.3V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,371					0,376				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
25	0,0	881,56	0,3000	1,0000	1,9302	0,0	810,15	0,7000	1,0000	0,6981
	6,0	886,91	0,2812	0,8902	1,8781	11,0	810,11	0,7009	0,7000	0,7007
	17,0	901,40	0,2341	0,6550	1,7477	21,0	809,98	0,7028	0,5210	0,7061
	23,0	907,51	0,2160	0,5833	1,6976	30,0	809,73	0,7043	0,4070	0,7102
	34,0	919,79	0,1817	0,4819	1,6026	35,0	809,48	0,7060	0,3532	0,7148
	45,0	930,42	0,1541	0,3972	1,5262	44,0	809,31	0,7077	0,2728	0,7193
	57,0	937,90	0,1353	0,3412	1,4742	55,5	809,14	0,7094	0,2108	0,7236
	67,0	943,73	0,1211	0,3051	1,4348	68,0	808,89	0,7111	0,1601	0,7279
	79,0	950,72	0,1043	0,2634	1,3883	78,5	808,60	0,7133	0,1282	0,7333
	90,5	956,93	0,0896	0,2358	1,3476	90,0	808,38	0,7152	0,1040	0,7379
	102,5	963,27	0,0745	0,2036	1,3058	101,0	808,29	0,7164	0,0815	0,7407
	113,5	968,13	0,0634	0,1772	1,2751	111,0	808,12	0,7181	0,0628	0,7447
	125,5	972,38	0,0534	0,1582	1,2474	122,0	807,84	0,7201	0,0438	0,7493
	136,5	975,33	0,0467	0,1411	1,2288	136,0	807,33	0,7254	0,0200	0,7611
						148,0	806,65	0,7308	0,0107	0,7728
					160,0	806,09	0,7354	0,0063	0,7827	
					172,0	805,52	0,7406	0,0030	0,7939	

Tabelle A6.3: Ergebnisse der Messungen des Verdunstungsverlaufes für die mittlere Partikelgröße von 1,3 mm und unterschiedliche Schüttungshöhen bei konstanten und gleichen Temperaturen im Kern der beiden Phasen sowie zwei verschiedenen Anfangskonzentrationen.

Betriebsparameter:										
Partikeldurchmesser:		$\bar{d}_p = 2,6 \text{ mm}$				Gasvolumenstrom:		$\dot{V}_{g,0} = 8,0 \text{ l/min}$		
Gastemperatur:		$T_{g,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$				Flüssigkeitstemperatur:		$T_{l,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$		
Versuch	x03Tg30h5d2.6V8					x07Tg30h5d2.6V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,365					0,362				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
5	0,0	881,39	0,3000	1,0000	11,7943	0,0	810,52	0,7000	1,0000	1,2914
	9,0	888,43	0,2626	0,7652	10,5445	4,0	809,97	0,7042	0,9040	1,3050
	17,5	895,42	0,2157	0,6091	9,3128	16,0	807,68	0,7240	0,4034	1,3570
	29,5	906,30	0,1695	0,5005	8,2598	27,0	805,84	0,7408	0,2228	1,3974
	44,0	923,88	0,1355	0,4344	7,3309	38,5	804,20	0,7552	0,1386	1,4350
	53,0	934,12	0,1093	0,3938	6,4488	49,5	802,33	0,7727	0,0755	1,4848
	67,0	951,59	0,0879	0,3524	5,6129	61,5	800,30	0,7944	0,0344	1,5486
	77,0	958,59	0,0694	0,3203	4,8198	69,5	798,32	0,8109	0,0190	1,5940
	90,0	965,29	0,0575	0,2991	4,2866	81,5	796,31	0,8307	0,0087	1,6430
	100,0	969,30	0,0471	0,2754	3,8146	93,5	794,09	0,8530	0,0036	1,6990
	114,0	973,60	0,0376	0,2503	3,3854					
Versuch	x03Tg30h15d2.6V8					x07Tg30h15d2.6V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,360					0,356				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
15	0,0	881,49	0,3000	1,0000	4,0710	0,0	810,21	0,7000	1,0000	0,9834
	10,5	890,07	0,2698	0,8181	3,4722	7,0	809,86	0,7026	0,8463	0,9900
	20,5	901,04	0,2350	0,6797	3,1099	19,0	808,98	0,7102	0,4878	1,0102
	33,5	917,50	0,1875	0,5295	2,9439	31,0	808,13	0,7180	0,2972	1,0322
	45,5	932,57	0,1481	0,4358	2,8688	43,5	807,21	0,7259	0,1976	1,0555
	57,5	944,90	0,1178	0,3708	2,7156	54,5	806,36	0,7329	0,1315	1,0769
	68,5	951,41	0,1022	0,3404	2,5715	67,0	805,46	0,7409	0,0869	1,1017
	82,5	956,68	0,0896	0,3154	2,4113	78,5	804,70	0,7481	0,0609	1,1241
	91,5	959,28	0,0835	0,3028	2,3177	90,5	803,82	0,7563	0,0390	1,1496
	107,5	963,90	0,0727	0,2846	2,1232	103,0	803,00	0,7637	0,0257	1,1720
	117,5	966,63	0,0664	0,2703	1,9914	114,5	802,30	0,7702	0,0163	1,1910
	127,5	969,18	0,0604	0,2596	1,8524	128,5	801,40	0,7792	0,0092	1,2159
	143,0	973,70	0,0499	0,2324	1,5755	139,0	800,80	0,7854	0,0059	1,2318

Versuch	x03Tg30h25d2.6V8					x07Tg30h25d2.6V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,357					0,353				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
25	0,0	881,43	0,3000	1,0000	3,0820	0,0	810,33	0,7000	1,0000	0,8484
	13,0	893,81	0,2573	0,7454	2,8179	6,0	810,21	0,7008	0,8264	0,8496
	22,0	904,30	0,2247	0,6321	2,6163	18,0	809,86	0,7049	0,4627	0,8562
	34,5	922,36	0,1741	0,4877	2,3034	28,0	809,38	0,7076	0,3585	0,8608
	44,5	935,27	0,1410	0,4013	2,0987	40,0	808,98	0,7110	0,2497	0,8667
	55,5	943,34	0,1214	0,3578	1,9775	51,0	808,52	0,7153	0,1791	0,8744
	67,5	948,93	0,1079	0,3243	1,8940	63,5	808,03	0,7197	0,1354	0,8827
	80,0	953,47	0,0969	0,3016	1,8260	75,0	807,60	0,7232	0,1061	0,8894
	91,0	956,98	0,0886	0,2843	1,7746	86,0	807,21	0,7267	0,0788	0,8964
	105,5	961,17	0,0788	0,2638	1,7140	98,0	806,79	0,7302	0,0603	0,9035
	115,5	963,98	0,0722	0,2520	1,6732	109,5	806,36	0,7337	0,0446	0,9107
	129,5	968,22	0,0624	0,2305	1,6126	121,5	805,94	0,7382	0,0320	0,9202
	141,0	970,81	0,0564	0,2185	1,5755	134,0	805,46	0,7417	0,0245	0,9277
	154,0	974,48	0,0478	0,2023	1,5223	145,0	805,03	0,7462	0,0187	0,9374
						157,0	804,54	0,7508	0,0139	0,9475
						169,0	804,04	0,7553	0,0103	0,9574
						181,0	803,59	0,7589	0,0071	0,9654
					195,0	803,07	0,7637	0,0044	0,9760	

Tabelle A6.4: Ergebnisse der Messungen des Verdunstungsverlaufes für die verwendete Partikelgröße von 2,6 mm und unterschiedliche Schüttungshöhen bei konstanten und gleichen Temperaturen im Kern der beiden Phasen sowie zwei verschiedenen Anfangskonzentrationen.

Betriebsparameter:										
Partikeldurchmesser:		$\bar{d}_p = 3,5 \text{ mm}$				Gasvolumenstrom:		$\dot{V}_{g,0} = 8,0 \text{ l/min}$		
Gastemperatur:		$T_{g,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$				Flüssigkeitstemperatur:		$T_{l,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$		
Versuch	x03Tg30h5d3.5V8					x07Tg30h5d3.5V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,356					0,362				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
5	0,0	881,06	0,3000	1,0000	14,4017	0,0	810,48	0,7000	1,0000	2,4009
	7,5	887,99	0,2756	0,8552	13,5435	7,0	808,86	0,7176	0,7294	2,5477
	19,5	901,17	0,2330	0,6826	12,1666	20,0	803,52	0,7636	0,3653	2,9083
	32,5	917,27	0,1867	0,5607	10,7147	27,0	800,90	0,7858	0,2727	3,0518
	45,0	933,06	0,1454	0,4805	9,4011	38,0	798,82	0,8060	0,2021	3,1492
	55,5	944,80	0,1166	0,4304	8,4840	48,0	797,17	0,8227	0,1498	3,2168
	65,5	956,08	0,0896	0,3857	7,6504	58,0	794,22	0,8520	0,0938	3,3169
	74,5	963,31	0,0727	0,3558	7,1579	67,0	792,82	0,8665	0,0719	3,3631
	84,0	969,38	0,0585	0,3264	6,7714	78,0	790,77	0,8876	0,0437	3,4348
	93,5	973,01	0,0502	0,3093	6,5604	89,0	789,12	0,9060	0,0290	3,5098
	104,5	977,72	0,0393	0,2857	6,3036	100,0	787,61	0,9225	0,0184	3,5948
Versuch	x03Tg30h15d3.5V8					x07Tg30h15d3.5V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
Ψ [-]	0,359					0,356				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
15	0,0	881,61	0,3000	1,0000	8,1426	0,0	810,37	0,7000	1,0000	1,2293
	13,0	896,43	0,2497	0,7202	7,3068	11,0	809,32	0,7094	0,6713	1,2505
	24,5	908,94	0,2120	0,6002	6,6804	21,0	808,33	0,7180	0,5394	1,2694
	36,5	925,01	0,1680	0,4976	5,9494	32,0	807,21	0,7276	0,4056	1,2911
	47,5	941,96	0,1252	0,4061	5,2383	44,0	805,59	0,7417	0,2561	1,3268
	59,5	956,96	0,0893	0,3428	4,6418	55,0	804,22	0,7544	0,1727	1,3641
	70,5	964,67	0,0713	0,3143	4,3427	67,5	802,79	0,7672	0,1176	1,4065
	82,5	969,95	0,0589	0,2890	4,1367	77,5	801,63	0,7784	0,0762	1,4463
	93,5	973,92	0,0499	0,2703	3,9872	89,5	800,41	0,7898	0,0500	1,4875
						100,5	799,39	0,7994	0,0317	1,5204
						111,5	798,33	0,8141	0,0174	1,5622
					122,5	797,09	0,8275	0,0096	1,5833	

Versuch	x03Tg30h25d3.5V8					x07Tg30h25d3.5V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
ψ [-]	0,356					0,356				
h [mm]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
25	0,0	881,57	0,3000	1,0000	3,4480	0,0	810,44	0,7000	1,0000	1,0638
	7,0	886,31	0,2832	0,8849	3,4452	11,0	809,79	0,7051	0,7466	1,0682
	19,0	892,84	0,2613	0,7667	3,4386	22,0	809,11	0,7111	0,5751	1,0730
	30,0	899,91	0,2387	0,6753	3,4180	34,0	808,46	0,7162	0,4454	1,0770
	42,0	907,69	0,2154	0,6002	3,3737	45,0	807,91	0,7214	0,3425	1,0814
	53,0	917,57	0,1877	0,5242	3,2848	57,0	807,26	0,7267	0,2361	1,0866
	65,0	928,61	0,1587	0,4543	3,1499	68,0	806,56	0,7328	0,1720	1,0937
	75,5	938,77	0,1331	0,4002	3,0031	80,0	805,84	0,7400	0,1265	1,1039
	87,5	952,10	0,1009	0,3356	2,8034	91,0	805,22	0,7453	0,0870	1,1129
	98,5	959,87	0,0825	0,2966	2,6960	103,0	804,57	0,7507	0,0637	1,1234
	110,5	965,60	0,0682	0,2705	2,6236	113,0	804,00	0,7562	0,0449	1,1355
	120,5	969,44	0,0593	0,2522	2,5859	125,0	803,31	0,7626	0,0312	1,1514
						136,0	802,62	0,7691	0,0227	1,1693
						148,0	801,85	0,7756	0,0155	1,1887
						159,0	801,11	0,7831	0,0102	1,2124
					170,0	800,31	0,7907	0,0069	1,2372	

Tabelle A6.5: Ergebnisse der Messungen des Verdunstungsverlaufes für die größte verwendete Partikelgröße ($\bar{d}_p = 3,5$ mm) und unterschiedliche Schüttungshöhen bei konstanten und gleichen Temperaturen im Kern der beiden Phasen sowie zwei verschiedenen Anfangskonzentrationen.

Betriebsparameter:								
freie Oberfläche				Gasvolumenstrom: $\dot{V}_{g,0} = 8,0 \text{ l/min}$				
Gastemperatur: $T_{g,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$				Flüssigkeitstemperatur: $T_{l,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$				
Versuch	x03Tg30V8				x07Tg30V8			
$\tilde{x}_{1,B,0} [-]$	0,3				0,7			
$\Psi [-]$	1,0				1,0			
	t [h]	$\rho_1 [\text{kg/m}^3]$	$\tilde{x}_{1,B} [-]$	$N_1/N_{1,0} [-]$	t [h]	$\rho_1 [\text{kg/m}^3]$	$\tilde{x}_{1,B} [-]$	$N_1/N_{1,0} [-]$
	0,0	881,53	0,3000	1,0000	0,0	810,30	0,7000	1,0000
	12,0	910,25	0,2076	0,6581	4,0	807,49	0,7240	0,7829
	23,0	942,30	0,1241	0,4924	13,5	799,42	0,7985	0,4750
	35,0	964,80	0,0706	0,3920	23,0	792,16	0,8710	0,2898
	46,0	973,71	0,0500	0,3541	35,0	787,12	0,9264	0,1857
	59,0	982,02	0,0308	0,3132	44,5	784,06	0,9605	0,1240
	70,0	987,72	0,0177	0,2708	58,5	782,41	0,9805	0,0842
	81,0	991,91	0,0080	0,2362	70,5	781,96	0,9858	0,0659
	92,0	995,15	0,0006	0,2013	82,0	781,63	0,9894	0,0602

Tabelle A6.6: Ergebnisse der Messungen des Verdunstungsverlaufes aus der freien Flüssigkeitsoberfläche bei konstanten und gleichen Temperaturen im Kern der beiden Phasen sowie zwei verschiedenen Anfangskonzentrationen.

Betriebsparameter:											
Partikeldurchmesser:		$\bar{d}_p = 3,5 \text{ mm}$				Gasvolumenstrom:		$\dot{V}_{g,0} = 8,0 \text{ l/min}$			
Schüttungshöhe:		$h = 15 \text{ mm}$				Flüssigkeitstemperatur:		$T_{l,B} = 30 \text{ °C}$			
Porosität:		$\psi = 0,36 -$									
Versuch	x03Tg40h15d3.5V8					x07Tg40h15d3.5V8					
$\tilde{x}_{1,B,0} [-]$	0,3					0,7					
$T_{g,B} [\text{°C}]$	t [h]	$\rho_1 [\text{kg/m}^3]$	$\tilde{x}_{1,B} [-]$	$N_1/N_{1,0} [-]$	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6} [\text{m/s}]$	t [h]	$\rho_1 [\text{kg/m}^3]$	$\tilde{x}_{1,B} [-]$	$N_1/N_{1,0} [-]$	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6} [\text{m/s}]$	
40	0,0	881,52	0,3000	1,0000	4,0827	0,0	810,47	0,7000	1,0000	1,1861	
	7,0	886,65	0,2815	0,8750	3,9624	13,0	809,49	0,7085	0,5878	1,2343	
	19,0	895,98	0,2506	0,7089	3,6971	24,0	808,35	0,7179	0,4316	1,2838	
	30,0	905,83	0,2206	0,5964	3,4147	36,0	807,20	0,7284	0,2868	1,3340	
	41,0	916,97	0,1889	0,5070	3,1333	47,0	806,00	0,7390	0,1912	1,3792	
	52,0	929,53	0,1560	0,4318	2,8813	60,0	804,89	0,7488	0,1258	1,4159	
	64,0	943,33	0,1217	0,3676	2,6553	70,0	803,35	0,7625	0,0827	1,4594	
	75,0	954,23	0,0955	0,3175	2,4839	83,0	801,65	0,7783	0,0425	1,4992	
	87,0	962,92	0,0751	0,2771	2,3294	93,0	799,77	0,7903	0,0278	1,5230	
	98,0	969,21	0,0604	0,2442	2,1944	105,0	797,42	0,8097	0,0136	1,5528	
							116,0	795,24	0,8297	0,0064	1,5785
						128,0	792,48	0,8696	0,0026	1,6074	
Versuch	x03Tg50h15d3.5V8					x07Tg50h15d3.5V8					
$\tilde{x}_{1,B,0} [-]$	0,3					0,7					
$T_{g,B} [\text{°C}]$	t [h]	$\rho_1 [\text{kg/m}^3]$	$\tilde{x}_{1,B} [-]$	$N_1/N_{1,0} [-]$	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6} [\text{m/s}]$	t [h]	$\rho_1 [\text{kg/m}^3]$	$\tilde{x}_{1,B} [-]$	$N_1/N_{1,0} [-]$	$\beta_{1,opt} \cdot 10^{-6} [\text{m/s}]$	
50	0,0	881,51	0,3000	1,0000	4,0135	0,0	810,49	0,7000	1,0000	1,0291	
	13,0	896,32	0,2496	0,7073	3,2030	6,0	810,23	0,7025	0,8325	1,0384	
	24,0	908,24	0,2136	0,5747	3,0177	18,0	809,74	0,7068	0,6561	1,0524	
	36,0	924,14	0,1699	0,4546	2,8675	29,0	809,25	0,7102	0,5135	1,0619	
	46,0	938,73	0,1329	0,3769	2,6635	41,0	808,73	0,7153	0,3580	1,0740	
	58,0	951,75	0,1012	0,3122	2,4211	52,5	808,17	0,7196	0,2725	1,0828	
	69,0	960,91	0,0798	0,2699	2,2505	63,5	807,60	0,7249	0,1920	1,0922	
	81,0	968,34	0,0625	0,2307	2,1337	74,5	806,95	0,7301	0,1425	1,1003	
	91,0	973,67	0,0500	0,2051	2,0750	85,5	806,39	0,7354	0,1084	1,1079	
							96,5	805,81	0,7408	0,0818	1,1151
							108,5	805,09	0,7470	0,0535	1,1227
						118,5	804,50	0,7525	0,0409	1,1288	
						130,0	803,81	0,7588	0,0266	1,1346	

Versuch	x03Tg60h15d3.5V8					x07Tg60h15d3.5V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
$T_{g,B}$ [°C]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
60	0,0	881,54	0,3000	1,0000	6,6650	0,0	810,50	0,7000	1,0000	0,8774
	9,0	890,48	0,2685	0,7925	4,5782	8,0	810,10	0,7024	0,8044	0,8787
	21,0	902,79	0,2295	0,6254	3,1301	20,0	809,48	0,7052	0,5614	0,8803
	32,5	917,45	0,1875	0,5007	2,4864	30,0	808,98	0,7081	0,4209	0,8819
	43,5	934,45	0,1533	0,4053	2,3180	42,0	808,43	0,7114	0,2898	0,8838
	54,5	949,05	0,1177	0,3335	2,1982	52,0	807,93	0,7142	0,2057	0,8854
	66,5	960,99	0,0895	0,2780	1,9848	64,0	807,46	0,7175	0,1446	0,8872
	77,5	968,30	0,0725	0,2405	1,7557	75,0	807,06	0,7202	0,1072	0,8887
	89,5	974,16	0,0588	0,2070	1,4983	87,0	806,66	0,7236	0,0771	0,8906
						98,0	806,29	0,7265	0,0567	0,8923
					110,0	806,10	0,7297	0,0378	0,8941	
					120,0	805,60	0,7324	0,0289	0,8956	
Versuch	x03Tg70h15d3.5V8					x07Tg70h15d3.5V8				
$\tilde{x}_{1,B,0}$ [-]	0,3					0,7				
$T_{g,B}$ [°C]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	$\beta_{l,opt} \cdot 10^{-6}$ [m/s]
70	0,0	881,52	0,3000	1,0000	2,8821	0,0	810,15	0,7000	1,0000	U
	9,0	886,14	0,2835	0,8599	2,7078	4,0	810,11	0,7000	0,8785	N
	20,0	897,57	0,2455	0,6594	2,5037	15,0	810,15	0,7000	0,6814	S
	32,0	911,39	0,2044	0,5207	2,3869	25,0	810,12	0,7000	0,5483	E
	42,0	920,81	0,1786	0,4453	2,2852	36,0	810,15	0,7000	0,4060	L
	54,0	940,87	0,1275	0,3335	1,9238	47,0	810,15	0,7000	0,3029	E
	67,0	954,33	0,0953	0,2680	1,5995	57,0	810,12	0,7000	0,2400	K
	80,0	960,51	0,0807	0,2385	1,4443	68,0	810,15	0,7000	0,1797	T
	92,0	966,69	0,0662	0,2000	1,2962	79,0	810,15	0,7000	0,1312	I

Tabelle A6.7: Ergebnisse der Messungen des Verdunstungsverlaufes für konstante Schüttungsparameter ($\bar{d}_p = 3,5$ mm; $h = 15$ mm) und unterschiedliche Gastemperaturen bei konstanter Temperatur im Kern der flüssigen Phase sowie zwei verschiedenen Anfangskonzentrationen.

Betriebsparameter:								
Partikeldurchmesser: $\bar{d}_p = 1,3 \text{ mm}$			Gasvolumenstrom: $\dot{V}_{g,0} = 8,0 \text{ l/min}$					
Schüttungshöhe: $h = 5,0 \text{ mm}$			Anfangskonzentration: $\tilde{x}_{1,B,0} = 0,3$					
Gastemperatur: $T_{g,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$			Flüssigkeitstemperatur: $T_{l,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$					
Porosität: $\psi = 0,36$								
Versuch	x03Tg30h5d1.3V ₁ 40				x03Tg30h5d1.3V ₁ 45			
\dot{V}_l [ml/min]	40				45			
	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]
	0,0	881,49	0,3000	1,0000	0,0	881,61	0,3000	1,0000
	11,0	889,21	0,2729	0,7902	6,0	889,03	0,2740	0,8227
	21,0	896,82	0,2480	0,6885	16,0	906,26	0,2195	0,6327
	32,0	905,61	0,2212	0,5833	27,0	928,15	0,1597	0,4633
	43,5	916,13	0,1913	0,4798	39,0	946,01	0,1155	0,3835
	54,5	926,57	0,1634	0,4201	50,5	956,86	0,0896	0,3293
	64,5	936,38	0,1386	0,3563	62,5	964,67	0,0713	0,2914
	77,0	945,85	0,1154	0,2979	74,5	970,42	0,0580	0,2533
	88,0	953,69	0,0967	0,2628	85,5	974,92	0,0476	0,2278
	100,0	960,31	0,0812	0,2254				
	110,0	965,36	0,0692	0,1982				
Versuch	x03Tg30h5d1.3V ₁ 50				x03Tg30h5d1.3V ₁ 60			
\dot{V}_l [ml/min]	50				60			
	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]
	0,0	881,30	0,3022	1,0000	0,0	881,68	0,3000	1,0000
	12,0	894,00	0,2585	0,7189	12,0	887,17	0,2805	0,8778
	24,0	911,33	0,2062	0,5628	24,0	898,48	0,2435	0,7210
	35,0	928,78	0,1592	0,4717	34,5	910,30	0,2084	0,5955
	47,0	946,84	0,1147	0,3884	46,5	924,96	0,1684	0,4867
	58,5	955,22	0,0947	0,3507	57,5	936,56	0,1389	0,4314
	70,0	961,60	0,0796	0,3168	69,5	946,66	0,1142	0,3837
	83,0	967,80	0,0651	0,2792	80,5	953,92	0,0970	0,3423
	95,0	972,73	0,0538	0,2514	92,5	960,76	0,0808	0,3116
	107,0	974,86	0,0492	0,2366	102,5	965,49	0,0698	0,2861
	118,0	976,73	0,0402	0,2123	114,5	969,98	0,0593	0,2531
					123,5	972,75	0,0528	0,2352

Versuch	x03Tg30h5d1.3V ₁ 62				x03Tg30h5d1.3V ₁ 70			
\dot{V}_l [ml/min]	62				70			
	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B}$ [-]	$N_1/N_{1,0}$ [-]
	0,0	881,43	0,3000	1,0000	0,0	881,52	0,3000	1,0000
	12,0	893,34	0,2590	0,7937	11,0	892,76	0,2609	0,7529
	24,0	910,70	0,2061	0,5875	21,0	902,23	0,2313	0,6271
	32,5	923,02	0,1725	0,5108	33,5	911,47	0,2041	0,5435
	43,5	934,44	0,1433	0,4462	45,5	920,14	0,1805	0,4684
	55,5	942,57	0,1231	0,4056	57,5	928,00	0,1598	0,4130
	66,5	948,16	0,1095	0,3782	66,5	934,66	0,1428	0,3706
	78,5	953,80	0,0962	0,3496	78,5	943,54	0,1212	0,3208
	90,5	958,30	0,0856	0,3253	89,5	951,23	0,1027	0,2803
	102,0	962,30	0,0762	0,3070	101,5	957,57	0,0875	0,2521
	113,0	965,61	0,0685	0,2878	112,5	962,55	0,0758	0,2235
	126,0	969,09	0,0603	0,2650				

Tabelle A6.8: Ergebnisse der Messungen des Verdunstungsverlaufes für konstante Schüttungsparameter ($\bar{d}_p = 1,3$ mm; $h = 5$ mm) und unterschiedliche Durchflussmengen bei konstanten Temperaturen im Kern der beiden Phasen sowie einer Anfangskonzentration von 0,3.

Betriebsparameter:								
Partikeldurchmesser:		$\bar{d}_p = 1,3 \text{ mm}$			$\beta_{g,1} = 1,28 \cdot 10^{-2} \text{ m/s} \quad \beta_{g,2} = 2,74 \cdot 10^{-2} \text{ m/s}$			
Schüttungshöhe:		$h = 15 \text{ mm}$			Gasvolumenstrom: $\dot{V}_{g,0} = 4,0 \text{ l/min}$			
Gastemperatur:		$T_{g,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$			Flüssigkeitstemperatur: $T_{l,B} = 30 \text{ }^\circ\text{C}$			
Porosität:		$\psi = 0,36 -$						
Versuch	x03Tg30h15d1.3V4				x07Tg30h15d1.3V4			
$\tilde{x}_{1,B,0} [-]$	0,3				0,7			
	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B} [-]$	$N_1/N_{1,0} [-]$	t [h]	ρ_1 [kg/m ³]	$\tilde{x}_{1,B} [-]$	$N_1/N_{1,0} [-]$
	0,0	881,50	0,3000	1,0000	0,0	810,34	0,7000	1,0000
	10,0	887,09	0,2801	0,8772	7,0	810,33	0,7002	0,8741
	22,0	894,86	0,2541	0,7506	19,0	810,24	0,7008	0,7202
	33,0	902,18	0,2313	0,6799	30,0	810,08	0,7017	0,5932
	45,0	911,50	0,2041	0,5963	42,0	809,84	0,7042	0,4889
	56,0	918,02	0,1862	0,5393	53,0	809,71	0,7051	0,4120
	68,0	928,53	0,1585	0,4904	65,0	809,56	0,7059	0,3412
	79,0	937,85	0,1349	0,4400	76,0	809,50	0,7068	0,2694
	92,0	946,52	0,1139	0,4002	89,0	809,41	0,7076	0,2164
	103,0	952,97	0,0984	0,3721	99,5	809,26	0,7085	0,1753
	114,0	958,65	0,0849	0,3419	111,5	809,18	0,7093	0,1340
	126,0	963,28	0,0741	0,3196	122,5	809,04	0,7110	0,1103
	138,0	967,36	0,0646	0,3003				
	149,0	970,54	0,0574	0,2787				
	161,0	973,38	0,0507	0,2623				

Tabelle A6.9: Ergebnisse der Messungen des Verdunstungsverlaufes für konstante Schüttungsparameter ($\bar{d}_p = 1,3 \text{ mm}$; $h = 15 \text{ mm}$) und einen relativ kleinen Gasdurchsatz von 4,0 l/min sowie bei konstanten Temperaturen im Kern der beiden Phasen und zwei verschiedenen Anfangskonzentrationen.

Literaturverzeichnis

- [Bén 1] Bénard, H.: Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide, *Rev. Gen. Sci. Pures Appl. Bull. Assoc. Franc. Avan. Sci.*, 11(1900), 1261-1271, 1309-1328
- [Bén 2] Bénard, H.: Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide transportant de la chaleur par convection en régime permanent, *Ann. Chim. Phys.*, 23(1901), 62-144
- [Blu 1] Blumberg, W.: Selektive Konvektions- und Kontakttrocknung im Drehrohr, *VDI-Verlag Reihe 3*, Nr. 384, Düsseldorf 1995 (Dissertation, Universität Karlsruhe)
- [Dan 1] D'Ans, J.; Lax, E.: Taschenbuch für Chemiker und Physiker, *Springer-Verlag*, 3. Aufl., Berlin/Heidelberg/New York 1967
- [Dav 1] Davis, S. H.; Müller, U.; Dietsche, C.: Pattern selection in single-component systems coupling Bénard convection and solidification, *J. Fluid Mech.*, 144(1984), 133-151
- [Gil 1] Gilliland, E. R. in Sherwood, T. K.: Absorption and extraction, *McGraw-Hill*, 1. Aufl., New York 1949
- [Gme 1] Gmehling, J.; Onken, U.; Arlt, W.: Vapor-liquid equilibrium data collection, *DE-CHEMA*, Deutschland, 1(1981)1a
- [Jeb 1] Jebsen-Marwedel, H.: Qualitative Lösungsmechanik: 1. Kapillare Wirkung auf Anordnung und Schwund von Schlieren, *Angew. Chem.*, 19(1947)7, 186-190
- [Jeb 2] Jebsen-Marwedel, H.: Qualitative Lösungsmechanik: 2. Hydrodynamische Wirkung molekularer Kräfte bei kapillaren Vorgängen an löslichen Flüssigkeitspaaren, *Angew. Chem.*, 19(1947)7, 239-246
- [Jet 1] Jettmar, W.; Roesler, F. C.: Zur "kapillaren Hydrodynamik" nach H. Jebsen-Marwedel, *Kolloid Zeitschr.*, 111(1948)1, 46-53
- [Kos 1] Koschmieder, E. L.: Bénard cells and Taylor vortices, *Cambridge University Press*, 1993
- [Koz 1] Kozeny, J.: Über kapillare Leitung des Wassers im Boden, *Sitzungsberichte Akad. Wiss. Wien, Math. Naturwiss. Kl., Abt. IIa*, 136(1927), 271-306
- [Kra 1] Krauss, R.: Stoffwerte von Luft, *VDI-Wärmeatlas*, Abschnitte Db15-Db27, VDI-Verlag, 8. Aufl., Düsseldorf 1997
- [Kri 1] Krischer, O.; Kast, W.: Trocknungstechnik - Die wissenschaftlichen Grundlagen der Trocknungstechnik, *Springer-Verlag*, Bd. 1, Berlin/Heidelberg/New York 1992
- [Kri 2] Krishna, R.; Standart, G. L.: A multicomponent film model incorporating a general matrix method of solution to the Stefan-Maxwell-equations, *AIChE J.*, 22(1976), 383-389

- [Kri 3] Krishna, R.; Standart, G. L.: Mass and energy transfer in multicomponent systems, *Chem. Eng. Commun.*, 3(1979), 201-275
- [Kro 1] Kroepelin, H.; Neumann, H. J.: Betrachtungen über inhomogene Grenzflächen, *Abh. Braunschweig. Wiss. Ges.*, 9(1957), 135-146
- [Lew 1] Lewis, J. B.; Pratt, H. R. C.: Oscillating droplets, *Nature*, 171(1953), 1155-1156
- [Lie 1] Lieberam, A.: Kalorische und kritische Daten, *VDI-Wärmeatlas*, Abschnitte Dc1-Dc38, VDI-Verlag, 8. Aufl., Düsseldorf 1997
- [Mar 1] Marangoni, C. G. M.: Sull'e espansione delle gocce di un liquido galleggiante sulla superficie di altro liquido, *Fusi. Pavia*, 1865
- [Mar 2] Marangoni, C. G. M.: Über die Ausbreitung der Tropfen einer Flüssigkeit auf der Oberfläche einer anderen, *Ann. Phys.*, 143(1871), 337-354
- [Mar 3] Martinez, J.; Setterwall, F.: Gas-phase controlled convective drying of solids wetted with multicomponent liquid mixtures, *Chem. Eng. Sci.*, 46(1991), 2235-2252
- [Mer 1] Mersmann, A.: Thermische Verfahrenstechnik, *Springer-Verlag*, Berlin/Heidelberg/New York 1980
- [Pea 1] Pearson, J. R. A.: On convection cells induced by surface tension, *J. Fluid. Mech.*, 4(1958), 489-500
- [Pos 1] Post, St.: Zum Einfluss von Grenzflächenkonvektion auf die Stoffübertragung am Beispiel der selektiven Verdunstung eines binären Gemisches aus ebenen Spalten, *VDI-Verlag Reihe 3*, Nr. 722, Düsseldorf 2002 (Dissertation, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg)
- [Pos 2] Post, St.; Tsotsas, E.: Verbesserung des Stofftransports durch Mikrokonvektion: Experimenteller Zugang, Quantifizierung und erste Ansätze zur Korrelation, *Chem. Ing. Tech.*, 72(2000)9, 1025-1026
- [Pos 3] Post, St.; Tsotsas, E.: Combined heat transfer, mass transfer and interfacial convection during evaporation of binary mixtures from planar gaps, *Proc. 3rd European Thermal Sciences Conference*, Heidelberg 2000, 911-916
- [Pos 4] Post, St.; Tsotsas, E.: Analyse und Quantifizierung von während und aufgrund der Stoffübertragung eines binären Gemisches durch senkrechte Spalte induzierter Grenzflächenkonvektion, *Chem. Ing. Tech.*, 73(2001)10, 1310-1314
- [Pra 1] Pratt, K. C.; Wakeham, W. A.: The mutual diffusion coefficient for binary mixtures of water and isomers of propanol, *Proc. R. Soc. Lond. A.*, 342(1975), 401-419
- [Pre 1] Press, W. H., Flannery, B. P., Teukolsky, S. A., Vetterling, W. T.: Numerical recipes, *Cambridge University Press*, Cambridge 1989

- [Qui 1] *Quincke, G.*: Über die physikalischen Eigenschaften dünner, fester Lamellen; Über periodische Ausbreitung an Flüssigkeits-Oberflächen und dadurch hervorgerufene Bewegungserscheinungen, *Ann. Physik*, 35(1888), 580
- [Ray 1] *Lord Rayleigh*: On convection currents in a horizontal layer of fluid, when the higher temperature is on the under side, *Phil. Mag.*, 32(1916), 529-541
- [Rie 1] *Riede, Th.*: Selektive Durchströmungstrocknung im Festbett, *VDI-Verlag Reihe 3*, Nr. 215, Düsseldorf 1990 (Dissertation, Universität Karlsruhe)
- [Ros 1] *Rost, M.*: Dynamik von Strukturen auf instabilen Oberflächen, *Dissertation*, Universität – Gesamthochschule Essen 1997
- [Saw 1] *Sawistowski, H.; James, B. R.*: Einfluss von Oberflächenerscheinungen auf die Stoffdurchgangszahlen bei der flüssig-flüssig Extraktion, *Chem. Ing. Tech.*, 35(1963)3, 175-179
- [Saw 2] *Sawistowski, H.; Goltz, G. E.*: The effect of interface phenomena on mass transfer rates in liquid-liquid extraction, *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 41(1963), 174-181
- [Saw 3] *Sawistowski, H.*: Surface-tension-induced interfacial convection and its effect on rates of mass transfer, *Chem. Ing. Tech.*, 45(1973)18, 1093-1104
- [Saw 4] *Sawistowski, H.*: Grenzflächenphänomene, 291-358, aus *Hanson, C.*: Neuere Fortschritte der flüssig-flüssig Extraktion, Aarau: Sauerlaender 1974
- [Sch 1] *Schlünder, E. U.*: Einführung in die Stoffübertragung, *Georg Thieme-Verlag*, Stuttgart/New York 1984
- [Sch 2] *Schlünder, E. U.*: Selektives Trocknen gemischhaltiger Produkte, *Chem. Ing. Tech.*, 59(1987)11, 823-833
- [Sch 3] *Schlünder, E. U.; Riede, Th.*: Selektive Verdunstung eines binären Gemisches in trockene oder feuchte Luft, *Chem. Eng. Process.*, 27(1990), 83-93
- [Sch 4] *Schlünder, E.U.; Tsotsas, E.*: Einführung in die Wärmeübertragung, *Georg Thieme-Verlag*, Stuttgart/New York 1988
- [Sch 5] *Schuster, J.*: Strömungs- und Porositätsverteilung in Schüttungen, *Dissertation*, TU München 1982
- [Sch 6] *Schwarzbach, J.*: Selektive Trocknung in der Wirbelschicht, *Dissertation*, Universität Karlsruhe 1989
- [Sch 7] *Schwarzbach, J.; Nilles, M.; Schlünder, E. U.*: Microconvection in porous media during pervaporation of a liquid mixture – an experimental study, *Chem. Eng. Process.*, 22(1987), 163-175
- [Scr 1] *Scriven, L. E.; Sternling, C. V.*: The Marangoni effects, *Nature*, 187(1960), 186-188

- [Scr 2] Scriven, L. E.; Sternling, C. V.: On cellular convection driven by surface-tension gradients: effect of mean surface tension and surface viscosity, *J. Fluid Mech.*, 19 (1963), 321-340
- [Sig 1] Sigwart, K.; Nassenstein, H.: Zum Mechanismus des Stofftransportes durch die Grenzflächen zweier flüssiger Phasen, *VDI-Zeitschr.*, 98(1956)11, 453-461
- [Ste 1] Stephan, K.; Hildwein, H.: Recommended data of selected compounds and binary mixtures, *DECHEMA Chemistry Data Series*, 9(1987)
- [Ste 2] Sternling, C. V., Scriven, L. E.: Interfacial turbulence: hydrodynamic instability and the Marangoni effect, *AIChE J.*, 5(1959)4, 514-523
- [Sti 1] Stiess, M.: Mechanische Verfahrenstechnik 1, *Springer-Verlag*, Berlin/Heidelberg/New York 1992
- [Str 1] Straub, J.: Stoffwerte von Wasser, *VDI-Wärmeatlas*, Abschnitte Db1-Db14, VDI-Verlag, 8. Aufl., Düsseldorf 1997
- [Tho 1] Thomson, J.: On certain curious motions observable at the surface of wine and other alcoholic liquors, *Philos. Mag.*, 10(1855)4, 330-333
- [Thu 1] Thurner, F.: Selektivität bei der Konvektionstrocknung von Gütern bei Beladung mit binären Gemischen, *Dissertation*, Universität Karlsruhe 1985
- [Tok 1] Tokarz, A.: Stofftransport durch gedehnte Phasengrenzflächen, *VDI-Verlag Reihe 3*, Nr. 552, Düsseldorf 1998 (Dissertation, Universität Hannover)
- [Tso 1] Tsotsas, E.: Wärmeleitfähigkeit von Schüttschichten, *VDI-Wärmeatlas*, Abschnitt Dee, VDI-Verlag, 8. Aufl., Düsseldorf 1997
- [Web 1] Weber, E. H.: Mikroskopische Beobachtungen sehr gesetzmäßiger Bewegungen, welche die Bildung von Niederschlägen harziger Körper aus Weingeist begleiten, *Technischer Bericht*, Königl. Sächs. Gesell. d. Wiss. zu Leipzig, bei S. Hirzel, 1854
- [Whi 1] Whitman, W. G.; Lewis, W. K.: Principles of gas absorption, *Ind. Eng. Chem.*, 116 (1924), 1215-1220
- [Wol 1] Wolf, S.: Phasengrenzkonvektionen beim Stoffübergang in flüssig-flüssig Systemen, *VDI-Verlag Reihe 3*, Nr. 584, Düsseldorf 1999 (Dissertation, Technische Universität München)
- [Zeh 1] Zehner, P.; Schlünder, E. U.: Wärmeleitfähigkeit von Schüttungen bei mäßigen Temperaturen, *Chem. Ing. Tech.*, 42(1970), 933-941

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name	Ilina Urukova
Geburtsdatum	10.02.1974
Geburtsort	Haskovo, Bulgarien
Familienstand	ledig
Staatsangehörigkeit	bulgarisch

Schulbildung

1981 – 1988	Grundschule in Dimitrovgrad, Bulgarien
1988 – 1993	Fremdsprachiges Gymnasium in Haskovo, Bulgarien Schwerpunkt: Deutsche Sprache Abschluss: Allgemeine Hochschulreife

Studium

09/1993 – 03/1999	Studium des Chemieingenieurwesens an der Universität für Chemische Technologie und Metallurgie in Sofia, Bulgarien Vertiefungsrichtung: Verfahrenstechnik Abschluss: Dipl.-Ing. (März 1999)
09/1996 – 10/1996	Fachpraktikum am Institut für Verfahrenstechnik der Universität Hannover, Prof. Dr.-Ing. D. Mewes
07/1997 – 08/1997	Betriebspraktikum bei der „Neochim“ AG, Dimitrovgrad, Bulgarien
05/1998 – 02/1999	Diplomarbeit am Institut für Verfahrenstechnik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg mit dem Thema: „Modellierung des gekoppelten Stoff- und Wärmetransports bei der selektiven Verdunstung eines binären Stoffgemisches (Isopropanol-Wasser)“, Prof. Dr.-Ing. E. Tsotsas

Berufliche Tätigkeit

05/1999 – 08/1999	Hilfswissenschaftliche Tätigkeit am Institut für Verfahrenstechnik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg
08/1999 – 01/2000	Absatzmanager bei der Firma „Agrowet“, Dimitrovgrad, Bulgarien
02/2000 – 09/2003	Promotionsstipendiatin am Lehrstuhl für Thermische Verfahrenstechnik der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Prof. Dr.-Ing. E. Tsotsas
seit 10/2003	Wissenschaftliche Mitarbeiterin am Lehrstuhl für Technische Thermodynamik der TU Kaiserslautern, Prof. Dr.-Ing. G. Maurer